

UTILIZACIÓN INDUSTRIAL DE DESECHOS DE FRUTAS

¹Cardona Alzate, C. A. ♦
 Matallana Pérez, L. G. ♦
 López Suárez, F. E. ♦

RESUMEN

La digestión anaerobia es un proceso establecido para el tratamiento de muchos tipos de desechos orgánicos, tanto sólidos como líquidos. La conversión biológica de biomasa a productos de alto valor agregado como metano y etanol han recibido gran atención en los últimos años. Desechos sólidos de plantas, frutas, hierbas, maderas, hierbas de maderas y biomasa de agua dulce y marina han sido explorados en su potencial para producir metano por digestión anaerobia. Características de proceso, operacionales, y resultados experimentales preliminares obtenidos en el contexto de desechos orgánicos disponibles desde mercados de venta al por mayor de frutas han sido reportadas. En la producción de metano se analizó y estudió el desarrollo de un reactor anaeróbico en condiciones termofílicas (55 °C) y en condiciones mesofílicas (35°C) a escala de laboratorio. El tiempo de retención hidráulico fue considerado en un rango de 10 a 30 días. La producción de biogás en las condiciones realizadas fue establecida en aspectos relevantes como estabilización del proceso y en el rendimiento de este. Para la producción de etanol se incluyen procesos de hidrólisis, que se utilizan para recuperar compuestos tales como la glucosa y furfural, y otros de conversión química utilizados para recuperar compuestos como ácidos sintéticos, gas y acetato de celulosa. Estos procesos no se utilizan ordinariamente para la transformación de la fracción orgánica de los residuos sólidos urbanos debido a que se pueden utilizar otros residuos que contienen porcentajes mayores el sustrato en cuestión, por ejemplo el bagazo de caña.

INTRODUCCIÓN

Los desechos sólidos de las frutas y vegetales representan una fuente de energía potencial si pueden ser propiamente y biológicamente convertidas a metano, etanol y otros compuestos orgánicos de alto valor agregado. Estos son renovables y su contribución neta de CO₂ a la atmósfera es cero.

La biomasa se ha definido como una materia de la planta contemporánea formada por la captura fotosintética de energía solar y almacenada como energía química. La reciente crisis del petróleo y la consecuente elevación en el precio han forzado un considerable interés en la exploración de energía de origen renovable. La Bio-energía puede ser la más significativa fuente de energía de origen renovable en las próximas décadas hasta que la energía solar o oleica ofrezcan una alternativa económicamente atractiva a gran escala.

La energía que contiene la biomasa puede ser recuperada por varios métodos. El criterio para la selección del proceso de conversión y las ventajas de la digestión anaerobia (DA) son señaladas por Chynoweth et al [1]. El presente documento examina y evalúa la posibilidad de implementación de un proceso para la producción de metano y etanol a partir de los desechos de frutas obtenidos de la plaza de mercado de la ciudad de Manizales y de algunas procesadoras de alimentos que no utilizan estos desechos en la obtención de un producto el cual puede ser utilizado como fuente de energía para la integración energética de su sistema de producción. Ya que la disposición de estas cantida-

¹Universidad Nacional de Colombia sede Manizales. Carrera 27 No. 64-60. GTA en Procesos Químicos Catalíticos y Biotecnológicos

des húmedas, basuras orgánicas putrefactas representa formidables problemas económicos y ambientales.

En los últimos años se han propuesto algunas ideas para la utilización de desechos. Estos han sido clasificados desde la hidrólisis química de la celulosa desechada para proveer materia prima para la manufactura de una sola celda de proteína [2] a el uso de gusanos para el reciclo de desechos orgánicos [3]. Sin embargo, la digestión anaerobia de desechos orgánicos producen energía en forma de biogás es, por lo tanto, la opción de mas interés a nivel comercial, proporcionado benéficos económicos favorables. Una reciente revisión, sin embargo, ha mostrado que el uso de la digestión anaerobia para el tratamiento de desechos sólidos de fracción orgánica municipal puede disminuir la emisión de dióxido de carbono [4].

PRODUCCIÓN DE METANO

El proceso de digestión anaeróbico es tecnología usada para producir energía así como para reducir el contenido orgánico de los desechos. La cantidad de biogás producida como una función de cantidad de materia prima alimentada puede ser variable de acuerdo a varios factores tales como, la calidad de la materia orgánica y los parámetros del ambiente [5].

La intensidad de actividad microbiana de la cual la producción de metano depende, es una función de la temperatura del ambiente [6]. Hay tres posibles rango de temperatura donde los procesos pueden ser llevados (criofílicas 15–25 .C, mesofílicas 35–37 .C y termofílicas 50–60 .C). Demeyer et al. [7] muestran que la producción de biogás tiene dos óptimos, uno en el rango mesofílico (35 C) y otro en el rango termofílico (55 C).

La digestión bajo condiciones mesofílicas tiene muchas ventajas tales como altas velocidades metabólicas y altas destrucción de patógenos y semillas de mala hierba. Por otro lado, el tratamiento termofílico tiene algunas desventajas tales como menos estabilidad comparado con las condiciones mesofílicas. Además, los requerimientos de energía de sistemas termofílicos son más altos que los de sistemas mesofílicos [8]. El efecto de la temperatura es particularmente importante sobre el paso de la hidrólisis. La velocidad de hidrólisis de la celulosa en condiciones termofílicas es cerca de 5 a 6 veces mas grande que el observado en condiciones mesofílicas [9]. Zennaki-Bensouda et al. [10] muestra que para buenos progresos de la digestión anaeróbica, la temperatura debe ser mantenida estable. Álvarez et al. [11] muestran que las fluctuaciones en la temperatura decrecen la productividad del biogás de la digestión.

Generalmente, la elección del rango de temperatura depende estrictamente de las condiciones bioclimáticas. En suiza, por ejemplo, la investigación se emprende actualmente para una digestión anaerobia posible bajo condiciones de baja temperatura [12]. En USA, la digestión anaeróbica de lodos bajo condiciones termofílicas ha sido abandonada, si bien en Europa es bien establecida, especialmente para el tratamiento de desechos sólidos municipales [13]. En países tropicales, como, Tunisia, la temperatura ambiente es más alta que 25 C durante un periodo de más de 8 meses en el año. La digestión anaeróbica termofílica es realmente aplicada.

La operación satisfactoria de la biotecnología anaeróbica para el tratamiento de desechos depende de la composición del sustrato. Esta composición de sustrato la cual indica la estabilidad del proceso y la elección de los microorganismos. Las características importantes las cuales indican la factibilidad del tratamiento anaeróbico puede el ser conjugado de su fuerza orgánica, composición y parámetros tales como pH, VFA, alcalinidad etc.

PRODUCCIÓN DE ETANOL

En la producción de etanol a partir de residuos orgánicos, como son los de frutas, se incluyen procesos de hidrólisis y otros de conversión química o bioquímica. Estos procesos no se utilizan ordinariamente para la transformación de la fracción orgánica de los residuos sólidos debido a que se pueden utilizar otros residuos que contienen porcentajes mayores el sustrato en cuestión, por ejemplo el bagazo de caña. La viabilidad de estos procesos esta íntimamente relacionada con el costo de otros residuos alternativos. Es decir, en general es mucho más barato utilizar, actualmente, residuos de frutas de procedencia netamente agrícola, que su correspondientes urbanos ya sean separados en fuente o mecánicamente.

Para llevar a cabo la conversión bioquímica de la biomasa de los residuos de frutas en un combustible se puede realizar la digestión anaeróbica o la fermentación. Ambas tecnologías están comercialmente disponibles y, para ciertos procesos y en algunos países, su aplicación es masiva.

En lo referente al tema en la producción regional se estableció que la implementación de un proceso integrado obteniendo como productos etanol, compost, metano, productos orgánicos puede ser también aplicado para el tratamiento de este tipo de desechos [14].

Materiales y Métodos de Análisis

Producción de metano. Con el fin de evaluar el desarrollo de la digestión anaerobia de los desechos de frutas obtenidas en la plaza de mercado de la ciudad de Manizales se llevó a cabo el siguiente procedimiento experimental y se registraron las variables de diseño correspondientes para el análisis general del proceso y para su posterior comparación con los resultados obtenidos en la simulación.

- ✓ **Recolección de materias primas:** Se efectuó la recolección de los desechos de frutas de las zonas de desechos de la plaza de mercado de la ciudad de Manizales. Las mezclas fueron secadas al sol, molidas y almacenadas a 12 °C y usadas a través del estudio.
- ✓ **Caracterización del alimento:** El contenido de los desechos recolectados se caracteriza por presentar mayores porcentajes relacionados con cáscaras y desechos de productos, tales como papa, plátano y el producto en cosecha: mango, naranja, mandarina, piña, aguacate, banano, etc. Otros productos en descomposición como cebolla, papaya y tomate entre otros también fueron analizados. Las muestras de materia prima se tomaron en el rango de tiempo de 3 meses, con composiciones diferentes en su mayoría como consecuencia de la cosecha de turno. La composición promedio de los desechos presentes en las muestras objeto de este estudio (Tabla 1).

Tabla 1. Composición promedio de los desechos

Composición	Peso (%)
Papa	22.0
Cáscara de Papa	20.0
Otras hortalizas	13.0
Aguacate	6.0
Cáscara de Piña	8.0
Cáscara de naranjas y Naranjas descompuestas	12.0
Papaya descompuesta	4.0
Cáscaras de Banano y Banano descompuesto	10.0
Mango	5.0

- ✓ La composición aproximada de muestras de los desechos son listados en la tabla 1. Es importante anotar que la contribución principal de las cáscaras es celulosa y por lo tanto son ellas las que más aportan a la presencia de este sustrato en la mezcla inicial.
- ✓ Digestor: Un tanque de vidrio inerte de capacidad de 8 litros que representan 9.8 Kg. de residuos y estabilizado en un pH neutro con bicarbonato de sodio. Dicho botellón se encuentra encaquetado por un recámara exterior para mantener las condiciones de temperatura adecuada. Se utilizan dos biodigestores, uno para los desechos obtenidos después de la hidrólisis de la materia prima y otro para desechos obtenidos de la plaza de mercado.
- ✓ Variables Medidas. La producción del biogás purificado fue registrada por medio de arrastre de agua en una botella invertida. Los sólidos totales y volátiles, el contenido total de nitrógeno y carbono fueron determinados de acuerdo con los métodos establecidos por AOAC (1975) [15].

Tabla 2. Caracterización de los Residuos Sólidos

Propiedad	Promedio aritmético
Humedad	81%
Almidón	10.326 g/100g
Azúcares Reductores	1.243 g/100 ml
Celulosa	16.51 g/100g
Nitrógeno Orgánico	74.73 g/100g
Carbono/Nitrógeno	24
Sólidos Totales	19 (fracción peso)
Sólidos Volátiles	16.5 (fracción peso)

Porcentajes en base seca

Producción de etanol. Se utilizó la misma materia prima (desechos de frutas) que la utilizada en la producción de metano.

Para la producción de etanol se procede a la fermentación teniendo en cuenta procedimientos previos tales como:

- Hidrólisis Enzimática de almidón.
- Filtración y centrifugación.
- Pretratamiento con NaOH.
- Hidrólisis de celulosa.

Hidrólisis de Almidón. Para este paso previo se determino en primer lugar las condiciones de operación tomando una base de muestra de residuos orgánicos de 600 gramos donde se tuvo en cuenta los niveles de operación óptima para la enzima NATURALZYME GA – 300 donde se realizan una serie de reacciones catalizadas por esta enzima para la formación de glucosa. En segundo lugar se determino el potencial de hidrógeno (pH) que se refiere a la cantidad de hidrógenos dispuestos a reaccionar en la hidrólisis esto se fijo por el uso de una base como el bicarbonato de sodio. El pH óptimo encontrado para realizar la hidrólisis fue de 6.

Para determinar el porcentaje (cantidad de materia prima hidrolizable durante el proceso) se utilizó el método titulométrico de Von Asboth. El procedimiento seguido es el siguiente:



- Inicialmente se determina el contenido de humedad y de almidón de la muestra. Se determina cuantas partes de agua corresponden a una parte de almidón. Se debe establecer una relación 1:8. Si esta es menor se debe agregar agua a la materia prima preparada.
- Se coloca la muestra en un baño termostatazo para mantener la muestra a temperatura constante, y se fija el pH con bicarbonato de sodio. Luego de esto, se lleva la muestra a gelatinización para hinchar, con agua, los gránulos de almidón. Este procedimiento consiste en elevar la muestra, a temperaturas superiores a 70 °C, por un tiempo no inferior a 15 minutos. Físicamente se observa un cambio de color de verde claro a café oscuro.
- Se enfría la muestra a temperatura deseada, y se agrega la cantidad de enzima previamente determinada. Se realiza la hidrólisis durante un tiempo de 90 minutos, con agitación.
- Para el seguimiento de la reacción, se realizan pruebas analíticas de almidón inicial y final, para determinar la transformación ocurrida.

Figura 1. Procedimiento para la Hidrólisis Enzimática de Almidón

Hidrólisis de Celulosa. Se transforma la cantidad presente de celulosa en la materia prima, con el fin de aumentar el porcentaje de azúcares fermentables de la materia prima o mosto.

Debido a que la lignina recubre la celulosa y no permite que actúen las celulasas, se debe realizar un tratamiento de materia prima con el fin de romper las cadenas lignocelulosicas y liberar a la celulosa. Se han explorado varios métodos para romper estas cadenas; los más comunes son el tratamiento con vapor vivo y el ataque químico con hidróxido de sodio. El tratamiento con vapor vivo consiste en poner en contacto la celulosa con vapor durante un determinado lapso de tiempo, seguido de una rápida despresurización, este método presenta los mejores rendimientos, pero es un procedimiento sumamente costoso. El segundo tratamiento es un ataque químico, se recomienda un tratamiento con hidróxido de sodio al 1% en peso, a una temperatura de 80 °C, durante 1.5 horas, relación materia prima – base 1:5, este fue el método utilizado.

El procedimiento seguido para esta hidrólisis es el siguiente:

- Se realiza el pretratamiento por ataque químico con NaOH a 1% en peso, durante 1.5 horas a una temperatura de 80 °C.
- Debido a la utilización de una base, el PH de la muestra se eleva hasta valores de PH aproximadamente de 10 – 11, por lo tanto se le adiciona un ácido débil como el ácido acético para fijar el PH deseado. Un PH de 6.
- Se añade la enzima Celulasa TR – 5000.
- Para estudiar la reacción se realizan análisis de azúcares reductores tanto al inicio como al final para determinar el rendimiento.



Figura 2. Procedimiento para la Hidrólisis Enzimática de Celulosa

Por medio de las hidrólisis tanto de almidón como de celulosa, se obtuvo materia prima para fermentación alcohólica representada en los azúcares reductores presentes, los cuales pueden ser convertidos a etanol. Se continuó con una evaporación de parte de agua presente en la muestra, para así, aumentar el porcentaje de azúcares reductores.

RESULTADOS

Producción de Etanol. Los resultados obtenidos en cada uno de los ensayos permitieron evaluar los diferentes comportamientos cinéticos de las reacciones que tomaron lugar en el proceso. El modelo de *Michaelis Menten* fue el más aproximado en estos casos. Para hidrólisis de almidón en la producción de azúcares reductores se presentaron los perfiles de concentración de consumo de sustrato y generación de producto, (ver figura 3 y 4).

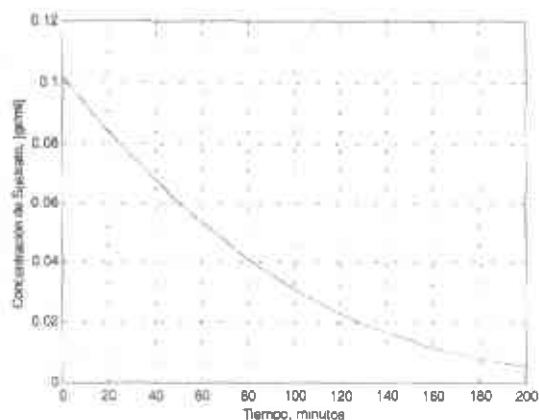


Figura 3. Consumo de sustrato en la hidrólisis enzimática de almidón

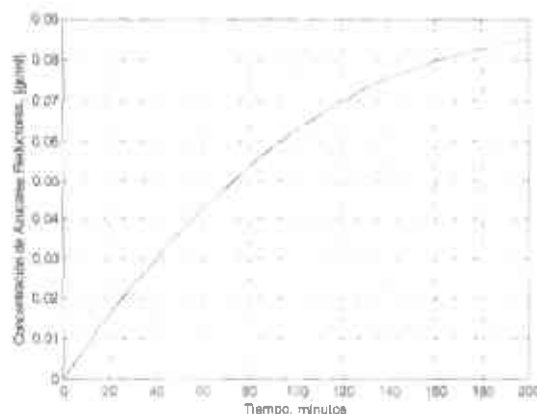


Figura 4. Producción de azúcares reductores en la hidrólisis enzimática de almidón

Debido a la alta riqueza obtenida en azúcares reductores (figuras 3 y 4) de la solución lograda a partir de la hidrólisis enzimática de almidón, se examinó el comportamiento de este sustrato como fuente productora de etanol. En esta etapa del trabajo se fermentó aproximadamente un litro (1 L), a temperatura ambiente (18 °C), de la solución azucarada a una concentración de 10% en azúcares reductores, ver tabla 2.

Tabla 2. Fermentación sin adicionar levadura

Parámetro	Cantidad
Azúcares reductores iniciales	9.9 g/100 ml
Azúcares reductores finales	7.15 g/100 ml
Conversión	27.78 %
Tiempo utilizado	4 días

Para darle mayor grado de conversión y selectividad al producto, se optó por agregar levadura al caldo de fermentación (levadura *fleischman*). Los datos obtenidos en esta fermentación se muestran en la tabla 3.

Tabla 3. Condiciones de fermentación con adición de la levadura

Parámetro	Valor	Parámetro	Valor
Volumen inicial	2080 ml	Levadura	2 g
pH	4.06	Tiempo	8 días
Azúcares reductores	11.11 gr/ml	Azúcares reductores	9.68 g/ml
Urea	1 g	Conversión	15 %
Sulfato de amonio	0.5 g		

La levadura presenta una concentración muy baja (15 %) y el proceso no se observa reaccionado. Se procedió entonces a realizar fermentaciones a diferentes concentraciones con una activación de 1.8 gr de levadura *Saccharomyces Cerevisiae*, realizada en 30 ml de melaza a 10 ° Brix, para agregar 30 ml en 300 ml de seis concentraciones diferentes. El tiempo de activación fue de dos horas a 35 °C y un pH aproximado de 4.0.

Se prepararon soluciones de 4, 6, 8, 10, 12 y 14 ° Brix (ver tabla 4), a las cuales se le adiciona la levadura activada y se midieron los azucares reductores resultantes por un periodo de 22 días notándose una apreciable disminución de estos.

Tabla 4. Soluciones preparadas para la fermentación

° Brix	° Brix con levadura	Azucares reductores g/100 ml	pH
4	5.5	2.34	4.29
6	7.5	1.08	3.83
8	8.5	3.96	4.12
10	10.5	4.84	3.82
12	13	5.17	3.87
14	14	5.5	4.02

Producción de Metano

La relación carbono - nitrógeno según Sanders & Bloodgood [16] debe estar en el rango entre 20 y 30 para una generación de biogás óptima. El ajuste de dicha relación puede ser realizada con fertilizantes sintéticos tales como la urea y sulfato de amonio, pero dicha operación es desfavorable a nivel económico [17], pero la formulación de un alimento con desechos complementarios es un método efectivo de sobrepasar estos problemas.

El comportamiento de la producción de biogás obtenida tanto a condiciones criogénicas y mesofilicas es ilustrado en las figuras 5 y 6 respectivamente al igual que los resultados obtenidos por simulación, los cuales fueron reproducidos de acuerdo con el modelo de *Michaelis Menten*.

El comportamiento del pH con el tiempo fue registrado para la operación a condiciones mesofilicas, figura 7, en el cual se puede apreciar un incremento al iniciar la operación, pero posteriormente disminuye manteniéndose constante. Como se puede observar el comportamiento del pH se mantuvo en el rango de operación adecuado según lo establecido en este tipo de operaciones.

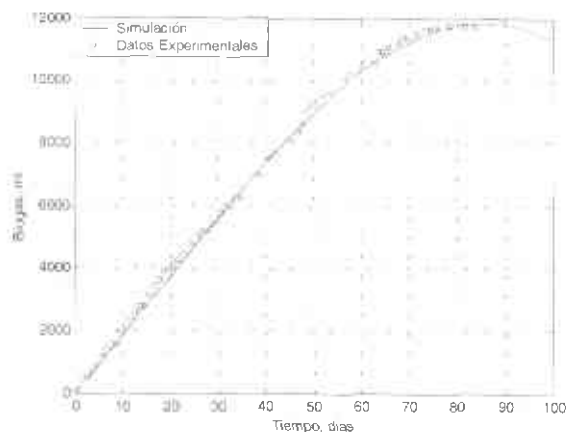


Figura 5. Comportamiento del volumen producido de gas con respecto al tiempo en la metanogénesis criogénica

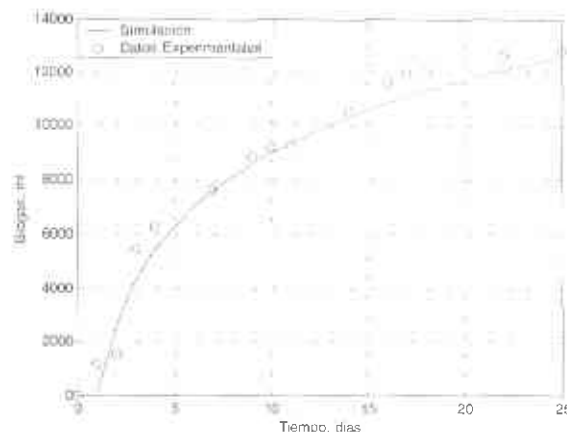


Figura 6. Comportamiento del volumen producido de gas con respecto



Figura 7. Comportamiento del pH con respecto al tiempo para la producción de metano a condiciones mesofílicas

Se puede además, apreciar que a condiciones mesofílicas una la producción de biogás requiere de un menor tiempo que para condiciones criofílicas. En general se pudo establecer que la producción de biogás a partir de los desechos obtenidos en la plaza de mercado presenta comportamientos adecuados y óptimos tanto a nivel experimental como a nivel de simulación

CONCLUSIONES

Las condiciones de operación planteadas y los valores de carga orgánica y condiciones del alimento permitieron realizar y obtener resultados positivos en las operaciones de producción de etanol y metano.

Los resultados muestran la viabilidad de implementar dichos procesos que aunque es claro que el precio de los productos de valor agregado obtenidos no es competitivo con los productos obtenidos por otros caminos, si se perfilan como una posible solución a problemas medioambientales, además de servir como fuente de auto abastecimiento de energía para procesos o entes donde estos materia prima era considerada como un problema a tratar.

La producción de biogás se desarrolla de forma mucho mejor a condiciones de temperatura mesofílicas. El pH y la relación de carbono nitrógeno se encontraron en los rangos óptimos para la producción de biogás.

Para la producción de etanol se hicieron varios ensayos donde no se tuvo en cuenta la adición de la levadura dentro del caldo de cultivo determinando las concentraciones de consumo de azúcares reductores tomando un tiempo de conversión muy elevado. Cuando se adiciono la levadura se tuvieron en cuenta los parámetros de actividad de esta para obtener las condiciones óptimas del proceso.

Se pudo establecer una buena concordancia entre los datos obtenidos en la parte experimental con en los arrojados por los modelos presentados.

A partir del seguimiento de las curvas biocinéticas de consumo de sustrato y formación de producto para la hidrólisis enzimática de almidón, se pudo establecer el modelamiento del proceso a partir del modelo de *Michaelis Menten*. La obtención del modelo matemático para la hidrólisis de almidón es una herramienta con la cual se puede observar el comportamiento a diferentes concentraciones de sustrato de residuos orgánicos.

BIBLIOGRAFÍA

1. CHYNOWETH DP, TURICK CE, OWENS JM, JERGER DE, PECK MW. 1993. Biochemical Methane Potential of Biomass and waste feedstocks. *Biomass Bioenergy* 1993;5(1):95-111.

2. **FORSTER CF, JONES JC. 1976.** The Bioplex Concept. In: Birch GG, Parker KJ, Worgan JT, editors. *Food from waste*. London: Applied Science Publishers Ltd., 1976, p. 278–89.
3. **SHARMA N. 1994.** Recycling of organic wastes through earthworms: an alternative source of organic fertiliser for crop growth in India. *Energy Conserv Management* 1994;35:25–50.
4. **MATA-ALVAREZ J, MACUE S, LLABRUES P. 2000.** Anaerobic digestion of organic solid wastes. An overview of research achievements and perspectives. *Bioresource Technology* 2000;74:3–16.
5. **CONVERTI A, DELBORGHI A, ZILLI M, ARNI S, DELBORGHI M. 1999.** Anaerobic Digestion of the Vegetable Fraction of Municipal refuses: mesophilic versus thermophilic conditions. *Bioprocess Eng* 1999;21:371–6.
6. **KETTUNEN RH, RINTALA JA. 1997.** The Effect of Low Temperature (5–29 C) and Adaption on the Methanogenic Activity of Biomass. *Appl Microbiol Biotechnol* 1997;48:570–6.
7. **DEMEYER A, JACOB F, JAY M, MENGUY G, PERRIER J. 1981.** *La Conversion Bioénergétique du Rayonnement Solaire et les Biotechnologies*. Edition technique et documentation, Paris; 1981. 309 pp.
8. **ZABRANSKA J, DOHANYOS M, JENICEK P, ZAPLATILKOVA P, KUTIL J. 2002.** The Contribution of Thermophilic Anaerobic Digestion to the Stable Operation of Wastewater Sludge Treatment. *Water Sci Technol* 2002;46:447–53.
9. **ELMASHAD HM, ZEEMAN G, LETTINGA G. W. 2001.** Thermophilic Anaerobic Digestion of Cow Manure. Effect of Temperature on Hydrolysis. In: *Proceedings of the 9th World Congress Anaerobic Digestion*. Belgium: IWA Antwerpen; 2–6 September 2001.
10. **ZENNAKI-BENSOUDA Z, ZAID A, LAMINI H, AUBINEAU M, BOULIF M. 1996.** Fermentation Méthanique des Déchets de Bovins: étude du temps de rétention, de la température et de la concentration en substrat. *Tropicultura* 1996;14:134–40.
11. **ALVAREZ JA, ZAPICO CA, GOMEZ M, RUIZ I, SOTO M. 2001.** Anaerobic Treatment and Pre-treatment of Municipal Wastewater at Low Ambient Temperature. In: *Proceedings of the 9th World Congress Anaerobic Digestion*. Belgium: IWA Antwerpen; 2–6 September 2001.
12. **BOHN I, SIVERSSON B, BATSTONE D, BJÖRNSSON L, MATTIASSON B. 2001.** Anaerobic Digestion of Agriculture Residues Under Psychrophilic Conditions. In: *Proceedings of the 9th World Congress Anaerobic Digestion*. Belgium: IWA Antwerpen; 2–6 September 2001.
13. **AHRING BK, MLADENOVSKA Z, IRANPOUR R, WESTERMANN P. 2002.** State Of The Art And Future Perspectives Of Thermophilic Anaerobic Digestion. *Water Sci Technol* 2002;45:298–308.
14. **RAMÍREZ A, J.A. ALZATE R, L.E. 1999.** Biodregadación de Desechos Orgánicos de Procedencia Urbana. Universidad Nacional de Colombia sede Manizales, 1999.
15. **AOAC. 1975.** *Official Methods of Analysis*, 12th edn. ed. W. Horwitz. Association of Official Analytical Chemists, Washington, DC, pp. 135,198,606.