

4 APRESENTAÇÃO E DISCUSSÃO DOS RESULTADOS

4.1. Ensaio Microbiológicos

4.1.1. Curvas de correlação entre absorbância e número de células

Como primeiro passo para a obtenção dos resultados, foram traçadas as curvas de correlação entre absorbância e número de células. As equações de correlação são de fundamental importância para a determinação das concentrações de ingresso e saída de bactérias introduzidas nas colunas para o ensaio ADS.

As curvas foram feitas em duplicata para água e para meio de cultura TSB (Figura 4.1.). Através dos resultados obtidos foi possível definir as diluições que deveriam ser usadas para a obtenção dos pontos da curva no setor em que a Lei de Beer Lambert é válida.

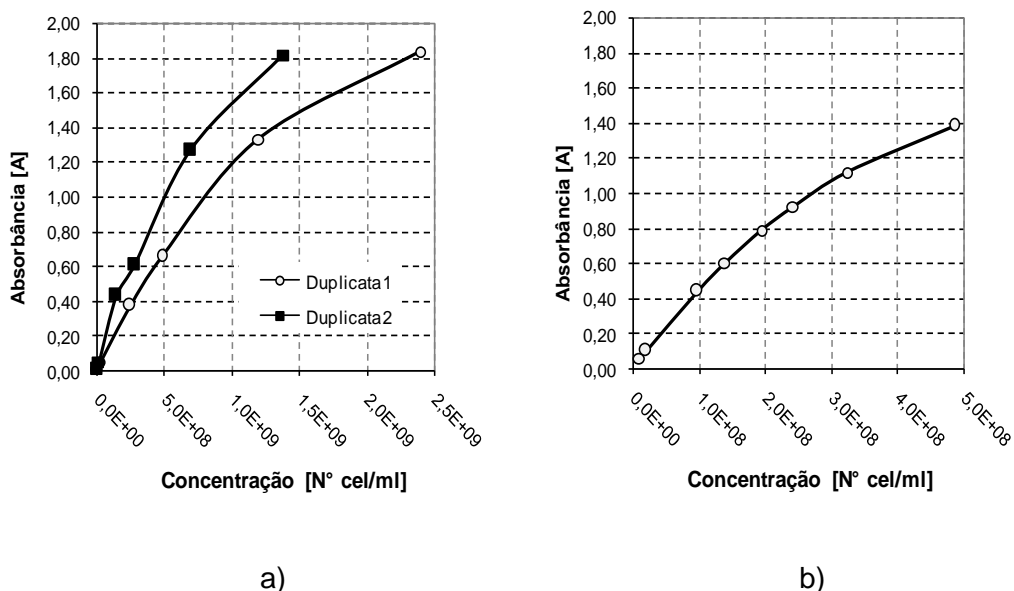


Figura 4.1. Curvas de correlação entre Número de Células e Absorbância (a) para meio TSB; (b) para água destilada

A seguir, as Figuras 4.2 e 4.3 mostram as curvas de ajuste linear para as correlações Absorbância versus Número de células, respectivamente para; a leitura de absorbância das diferentes diluições da suspensão celular em meio TSB a 600 nm e para a leitura da absorbância do mesmo material em água a 410 nm.

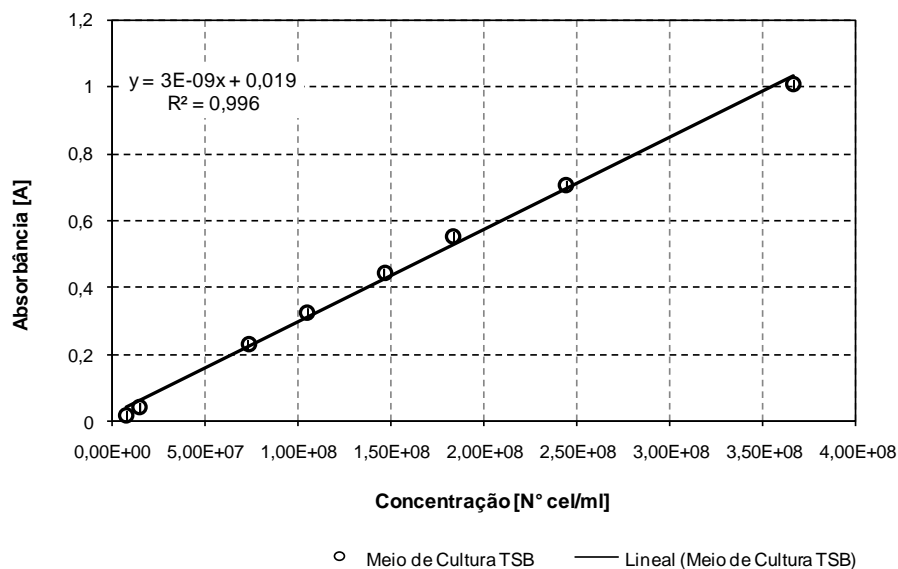


Figura 4.2. Curva de Correlação para células suspensas em meio de cultura TSB

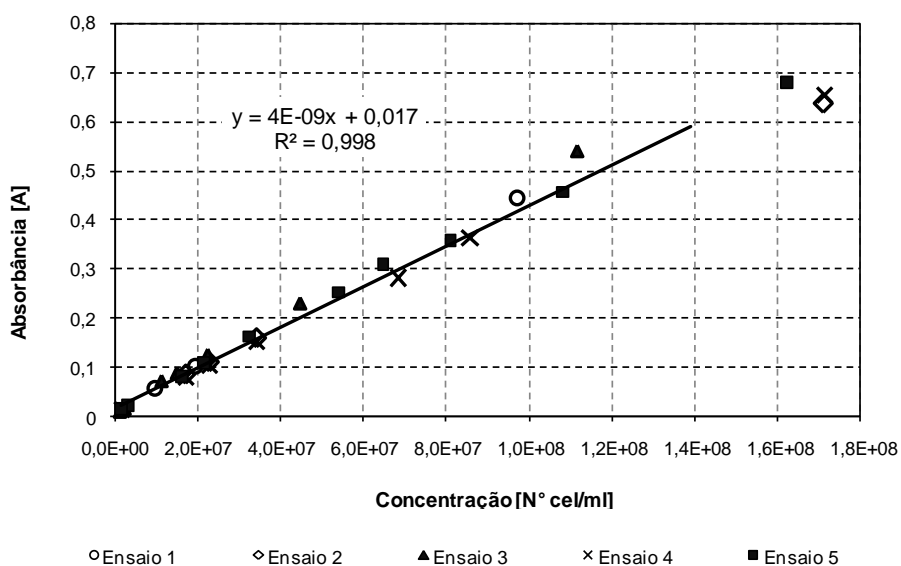


Figura 4.3. Curva de Correlação para células suspensas em água destilada

Foram realizados de 2 a 5 ensaios para cada condição e após o ajuste da curva, obtidos os coeficientes de correlação, $R=0,996$ para a leitura da suspensão bacteriana em meio TSB e de $R= 0,998$ para a leitura da suspensão bacteriana em água.

No caso da suspensão de células bacterianas em água destilada, foram realizados 5 ensaios, para uma ampla gama de diluições dentro do ramo inicial da curva apresentada no gráfico da Figura 4.1.b. Foi calculada a média dos resultados obtidos e ajustados os pontos a uma curva linear neste caso a faixa de validade da equação de ajuste, está definido entre 0 e 0,6.

Obtidas assim as equações de regressão e todas as condições permanecendo constantes é suficiente ler a absorbância da suspensão e calcular, usando essas equações, a concentração de células.

$$\text{Para Meio de Cultura TSB} \quad C \left[\frac{N^{\circ} \text{ cel}}{\text{ml}} \right] = \frac{\text{Absorbância} - 0,0193}{2,7694 \times 10^{-9}}$$

$$\text{Para Água Destilada} \quad C \left[\frac{N^{\circ} \text{ cel}}{\text{ml}} \right] = \frac{\text{Absorbância} - 0,0172}{4,1265 \times 10^{-9}}$$

4.1.2.

Curva de Crescimento *Escherichia coli* em meio TSB

As curvas de crescimento obtidas para os ensaios realizados são apresentadas no gráfico da Figura 4.4. São observados, para ambas as curvas, limites de tempo coincidentes entre as fases de crescimento lag, exponencial e estacionária.

Observa-se, no gráfico apresentado, o fim da fase logarítmica em aproximadamente 24 horas após o início da incubação, seguida da fase estacionária. O fim da fase logarítmica foi escolhido para ser usado como tempo de incubação porque nesta fase o número de células que se dividem equivale a quantidade de células que morrem, mantendo assim, o número de células estável durante o tempo no qual os ensaios irão transcorrer. O número de bactérias determinado após este período mostrou-se também constante, tanto para estes, como para os ensaios seguintes, na ordem de 10^9 cel/mL, sendo possível, após centrifugar as células obtidas do crescimento do inóculo, ressuspendê-las no mesmo volume ou em volume maior, obtendo concentrações iniciais para introduzir na coluna com células nas mesmas condições numéricas para todos os ensaios ADS (entre $1,0 \times 10^8$ até $1,79 \times 10^8$ cel/mL). Este tempo

de incubação foi o mesmo utilizado por Foppen *et al.* (2005) para a obtenção de aproximadamente 10^9 cel/mL de *Escherichia coli* ATCC25922.

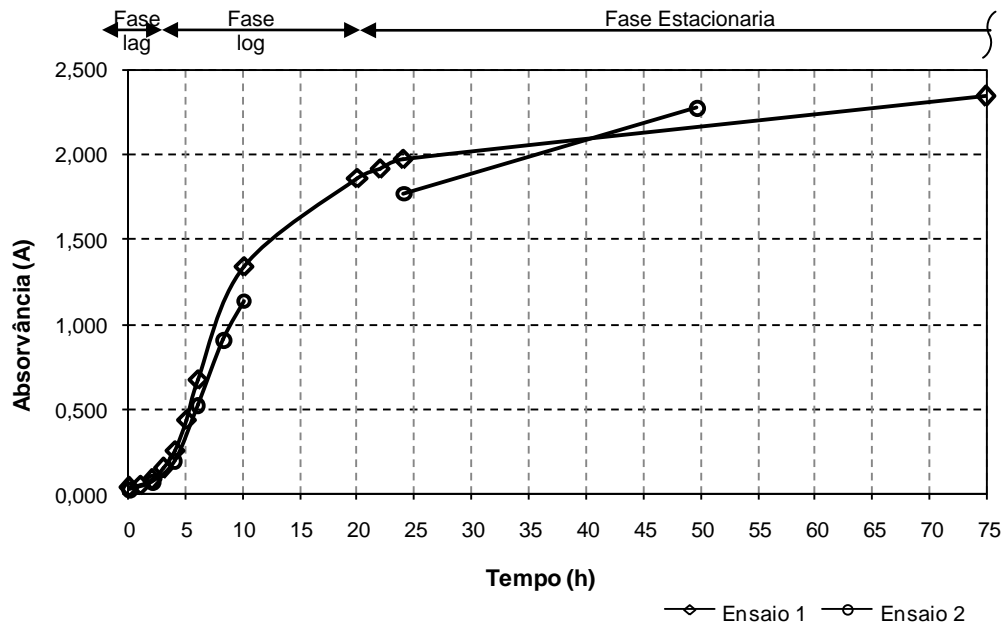


Figura 4.4. Curvas de crescimento da *Escherichia coli* ATCC 11229

4.1.3. Avaliação da sobrevivência de *E. coli* em água

Esses ensaios foram realizados com o objetivo de avaliar a constância numérica da população bacteriana presente na suspensão que iria ser introduzida na coluna, durante os ensaios ADS.

Os Resultados apresentados na Tabela 4.1 indicam que o número de células viáveis se manteve constante até o último período de tempo analisado (35 horas), superior ao tempo de duração dos ensaios que tiveram até, no máximo, aproximadamente 12 horas de duração. Este resultado garantiu que o número de células da bactéria *E. coli* ATCC11229 suspensas em água destilada, não sofreria variações no tempo, sendo desprezado o efeito do crescimento e de morte dos microrganismos durante a execução dos ensaios de batelada e principalmente nos ensaios ADS.

Tabela 4.1. Cálculo da concentração de células viáveis suspensas em água destilada pela Técnica dos Tubos Múltiplos

Tempo	NMP/mL
	* 9,59E+08
2	2,40E+08
11	2,40E+08
25	2,40E+08
35	2,40E+08

Tempo de incubação 24 horas

* Concentração inicial determinada através de leitura de densidade óptica (Número de células Totais).

4.2. Ensaio de Adsorção em Batelada

Os ensaios de adsorção foram executados sob condições de temperatura entre 22 e 24°C; pH neutro; e baixa força iônica, entre 10 e 20 μ S/cm.

Os resultados finais, dos ensaios de adsorção da *E. coli* ATCC11229 em areia de quartzo limpa, obtidos para cada concentração (10^9 , 10^8 , 10^7 e 10^6) encontram-se resumidos na Tabela 4.2. Os dados determinados no laboratório se encontram dispostos no Apêndice A.

Tabela 4.2. Resultados obtidos através da técnica de contagem em placa

C_o UFC/mL	N_t UFC	N_s UFC	P_a %	C_s cel/g	C_w cel/mL
3,08E+09	6,15E+10	1,35E+10	78,0	2,40E+10	6,77E+08
3,91E+08	3,91E+08	3,91E+08	31,9	1,25E+09	2,66E+08
2,34E+07	4,68E+08	3,37E+08	25,2	6,56E+07	1,68E+07
2,13E+06	4,26E+07	3,81E+07	10,6	2,26E+06	1,90E+06

C_o :concentração Inicial da suspensão bacteriana; N_t :número total de células na suspensão bacteriana; N_s : número total de células no sobrenadante; P_a :percentagem de adsorção; C_s :concentração de células sorvidas no solo; C_w :concentração de células na solução.

Os dados obtidos para as concentrações de células da bactéria no solo e no sobrenadante, C_s e C_w respectivamente, foram plotados em um gráfico de escala logarítmica dupla (Figura 4.5) e, ajustados à isoterma de Freundlich ($C_s = K C_w^m$) para a determinação do potencial máximo de sorção da bactéria na areia de quartzo limpa.

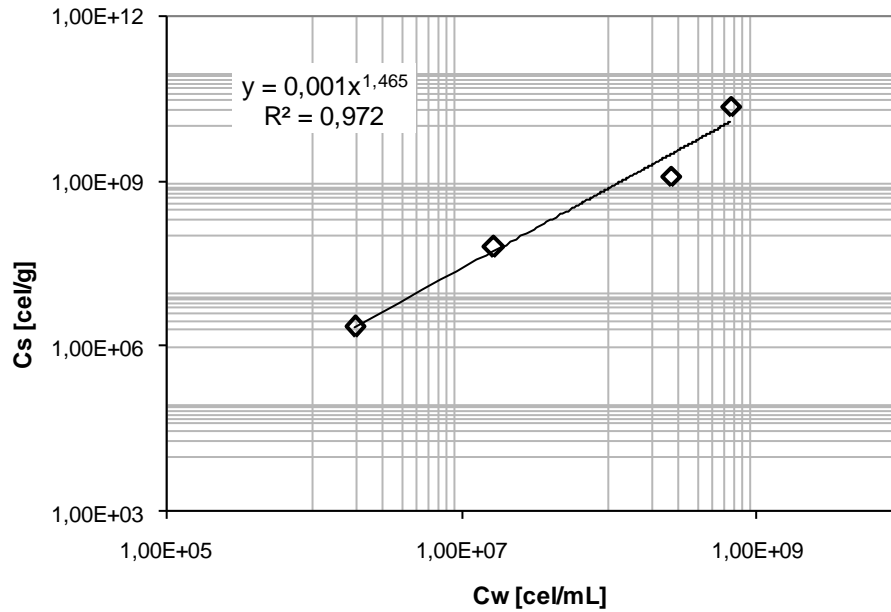


Figura 4.5. Isoterma de adsorção da *E. coli* em areia de quartzo

A partir da equação de ajuste são obtidos os parâmetros $K_D=0,001$ mL/g e $m=1,465$, com um coeficiente de determinação $r^2=0,972$. O valor do expoente reflete a forma da curva, e neste caso, mostra que a relação entre C_s e C_w não foi completamente linear. O valor de K_D reflete o alcance da sorção, assim $K_D=0,001$ mL/g significa que de cada célula que ficou adsorvida na areia, 1000 se mantiveram no sobrenadante, mostrando uma baixa adesão da bactéria a este solo.

Jiang *et al.* (2007), estudaram a adsorção das células da bactéria *E. coli* (strain D) suspensas em água deionizada em areia de sílica fina e grossa separadamente, e obtiveram valores de K_D de 10 e 0,01 mL/g respectivamente, apontando uma diferença de até 3 ordens de grandeza entre ambos os valores. No caso deste estudo foi obtido um valor de K_D de uma ordem de grandeza menor que o valor obtido por Jiang *et al.* (2007) para areia grossa. Esta diferença pode ser atribuída à pequena massa de 2 gramas utilizada nos ensaios de batelada, além de se tratar com uma areia de quartzo bem graduada.

Observa-se que a porcentagem de adsorção se incrementa na medida em que se aumenta a concentração inicial da suspensão bacteriana (Tabela 4.2) mostrando a dependência da adsorção com relação à concentração da suspensão, ainda utilizando areia de quartzo da mesma distribuição granulométrica para todos os casos.

O valor do coeficiente de distribuição K_D próximo a zero obtido a partir do ajuste, indica que a adesão das bactérias na areia de quartzo é nula, o que é de se esperar devido à carga elétrica negativa da *E. coli* e da areia de quartzo, criando uma força eletrostática repulsiva. A utilização de água destilada como solução, contribui a criar condições desfavoráveis para a adesão em decorrência de sua baixa força iônica. Isto sugere que a presença de qualquer óxido na areia de quartzo tem efeito desprezível na deposição de bactérias, que poderia ter sido originado pelo processo de peneiramento mecânico (Brown *et al.*, 2002).

Em função destes resultados também se desprezam os efeitos de bloqueamento (*blocking*), já que este processo está presente em um sistema onde tanto o colóide quanto o meio poroso estão opostamente carregados (Deshpande e Shonnard, 1999).

4.3. Ensaio ADS

Foram conduzidos 8 ensaios ADS, um de cada vez, devido às exigências do procedimento do ensaio. Todos os ensaios foram executados sob condições de fluxo em regime permanente e na temperatura ambiente entre 22 e 24°C, pH e força iônica similares às condições de execução dos ensaios de batelada. Na Tabela 4.3 são apresentadas as condições hidráulicas do sistema durante a etapa de saturação.

Tabela 4.3. Condições hidráulicas durante a saturação da areia

ENSAIO	i	Q ml/min	K cm/d	v_d cm/d	pV	pH	EC μS/cm
1	0,09	4,70	2,89E-02	213,48	4,0	7,3	9,8
2	0,09	3,26	2,01E-02	148,24	3,0	6,5	18,1
3	0,09	3,62	2,23E-02	164,47	4,6	—	—
4	0,09	4,70	2,89E-02	213,48	4,2	6,7	9,0
5	0,09	5,46	3,36E-02	248,14	4,0	6,8	8,4
6	0,10	5,02	2,76E-02	228,05	4,4	7,0	11,4
7	0,09	4,29	2,64E-02	194,88	5,8	7,1	12,5
8	0,09	3,09	1,90E-02	140,50	4,9	6,9	11,4

i: gradiente hidráulico; Q: vazão; K_s : condutividade hidráulica saturada; v_d : velocidade de Darcy; PV: volume de poro; EC: condutividade elétrica.

A saturação da areia foi realizada aplicando o mesmo gradiente hidráulico de 0,09, considerando-se esse valor baixo suficiente para uma boa saturação da areia e alto o suficiente para permitir a passagem de 3 a 4 volume de poros em um tempo apropriado para proceder à preparação da seguinte etapa do ensaio.

Na Tabela 4.3 também são apresentados os valores de pH e condutividade elétrica da água destilada medida no final da etapa de saturação, e considerados os valores iniciais na etapa de injeção da suspensão bacteriana.

No ensaio ADS 1 o gradiente hidráulico imposto foi o mínimo possível devido às baixas velocidades que apresenta um aquífero natural (<1m/d). Assim, nos ensaios ADS posteriores o gradiente foi sendo incrementado, sendo realizados os ensaios ADS dentro de uma faixa de gradiente hidráulico de 0,03 até 0,36.

A Tabela 4.4 apresenta os valores de gradiente definidos para cada ensaio e os valores médios de vazão de saída do efluente (Q), da velocidade de Darcy (v_d) e da condutividade hidráulica saturada (K_s), embora os valores de condutividade hidráulica não tenham se mantido constantes, particularmente para gradientes maiores que 0,24. Também são apresentados os valores de densidade seca (ρ_{bulk}), determinada no final dos ensaios e com base a este valor calculados os valores de porosidade (n) e velocidade intersticial (v). A variação da condutividade hidráulica é analisada no item 4.3.2.

Tabela 4.4. Condições hidráulicas do sistema experimental durante a injeção da suspensão de *E. coli*

ENSAIO	Co cel/mL	i	* v_d cm/d	* K_s cm/s	* Q mL/min	ρ_{bulk} g/cm ³	n	v cm/d
1	1,07E+08	0,03	70,17	2,66E-02	1,54	1,89	0,28	247,36
2	1,65E+08	0,06	205,57	3,93E-02	4,52	1,86	0,29	698,46
3	1,55E+08	0,06	179,05	3,43E-02	3,94	1,86	0,30	604,93
4	1,79E+08	0,06	174,01	3,33E-02	3,83	1,86	0,29	592,55
5	1,63E+08	0,16	374,39	2,79E-02	8,23	1,87	0,29	1280,91
6	1,40E+08	0,24	544,06	2,67E-02	11,97	1,87	0,29	1861,41
7	1,31E+08	0,24	411,13	2,02E-02	9,04	1,89	0,28	1442,92
8	1,31E+08	0,36	681,32	2,19E-02	14,98	1,90	0,28	2446,46

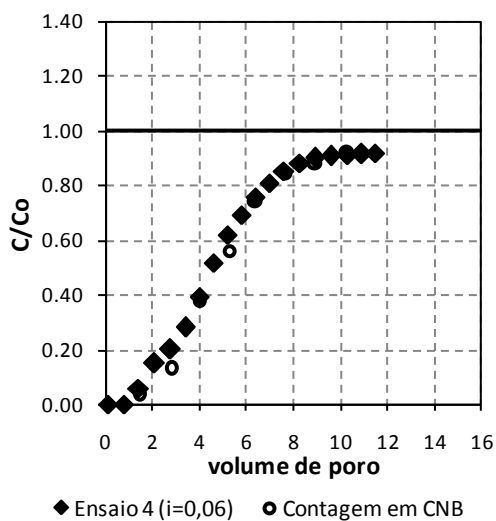
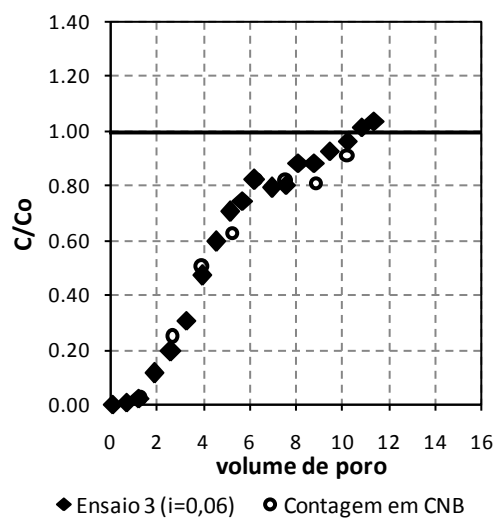
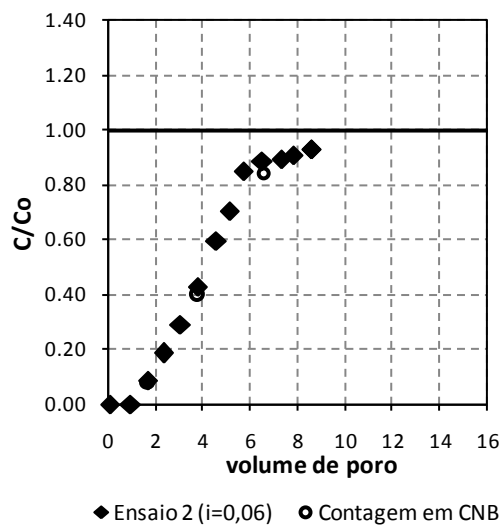
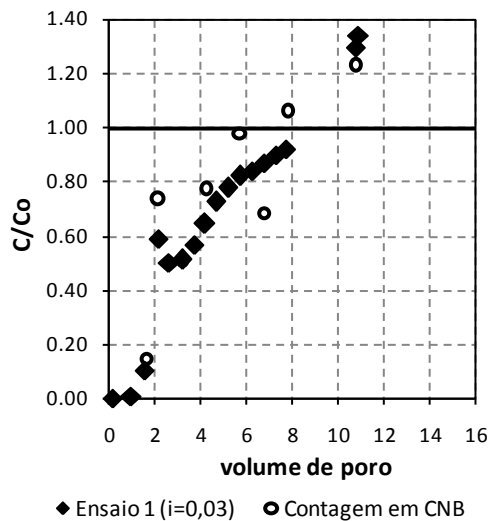
* Valor médio para cada ensaio

4.3.1. Curvas de chegada

As curvas de chegada para *E. coli* construídas para 8 ensaios ADS com injeção contínua são discutidos nesta seção. As Tabelas de amostragem, controle de saída de volume de poros e determinação do número de microrganismos são apresentados no Apêndice C1.

Na Figura 4.6, são plotadas as curvas de chegada de células de *E. coli*, para cada ensaio, junto com os pontos de controle medidos com a técnica de contagem em câmara de Neubauer. Observa-se a proximidade dos pontos determinados em CNB com os pontos definidos através das leituras de absorbância, o que é de se esperar em virtude dos valores de absorbância medidos estiverem entre 0,002 até 0,707, ou seja, dentro da faixa de validade da equação de correlação.

A curva de transporte caracteriza-se por apresentar forma de uma sigmóide, esta configuração é observada apenas nas curvas correspondentes a baixos gradientes hidráulicos isto é para 0,03, 0,06 até 0,16. Para gradientes maiores, a curva é mais parecida com uma função quadrática.



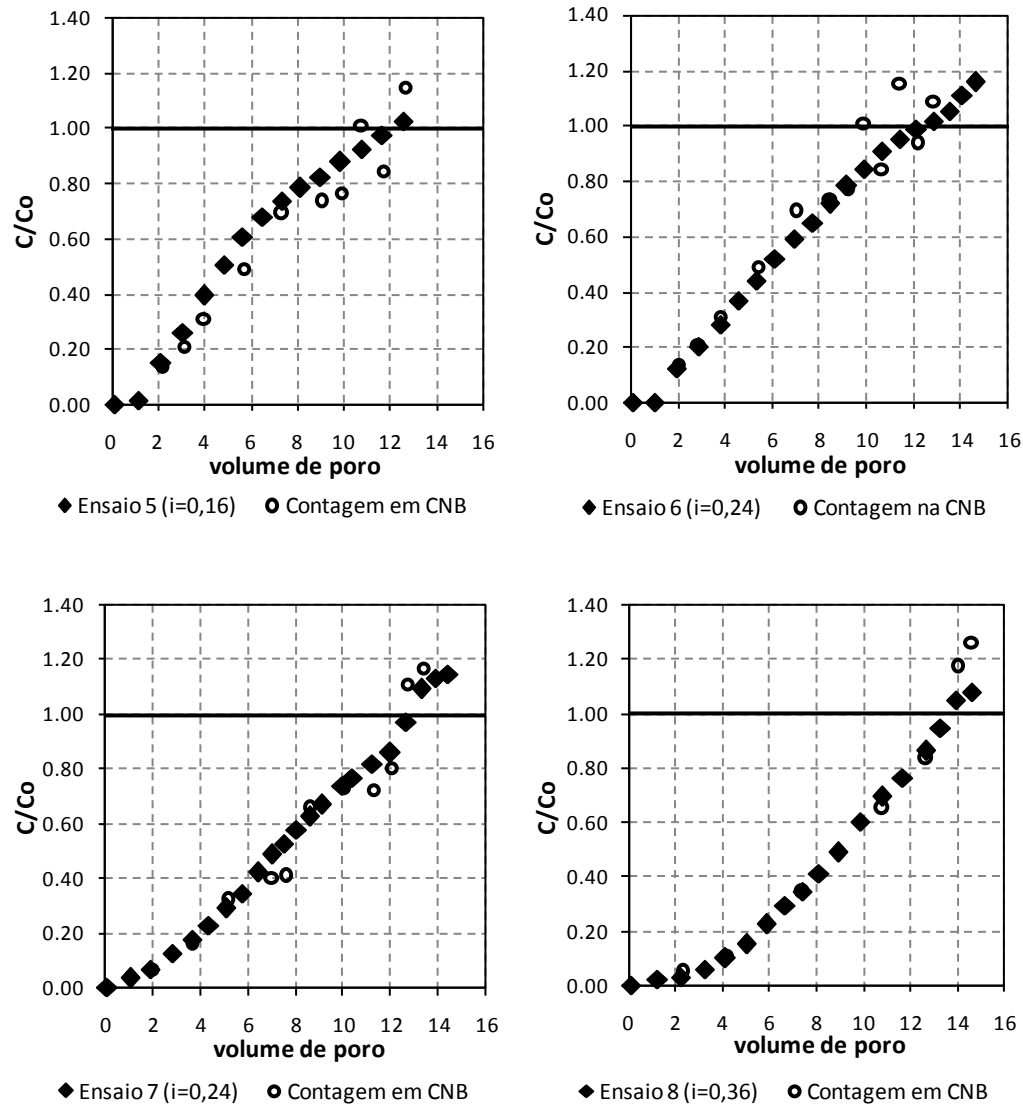


Figura 4.6. Curvas de chegada para cada ensaio ADS

Pode-se observar uma estabilização da concentração do efluente antes da curva superar o valor de C/C_o igual à unidade, para as curvas que apresentam o formato de uma sigmóide. A formação deste patamar sugere a capacidade de atenuação de *E. coli* pela areia de quartzo. Porém observa-se também nos ensaios 1 e 3, uma tendência ao desprendimento das células que puderam ficar retidas na medida que o fluxo continua.

No entanto, a determinação de C/C_o no patamar da curva permite calcular a eficiência real do coletor único (η) através da equação (2.27), valor adimensional que representa as oportunidades que o biocolóide tem para colidir com os grãos de areia. O valor teórico da eficiência do coletor calculada através da equação (2.22) comparado com o valor real ou experimental determina a eficiência da adesão (α).

Neste caso, o patamar claramente definido só foi atingido na curva que corresponde ao ensaio 4, sendo o valor de C/C_0 igual a 0,9 aproximadamente. Nesse caso o valor da eficiência de colisão (α) é de 0,05, o que é de se esperar devido a que o ensaio foi realizado sob condições desfavoráveis (presença da barreira de energia repulsiva) e que ainda mais reforça o resultado obtido no ensaio de adsorção exposto no item 4.2.

A curva correspondente ao menor gradiente ($i=0,03$) mostra um patamar temporário para o valor de C/C_0 igual a 0,5. A formação deste patamar parece estar relacionada com a baixa velocidade do ensaio, contrário da análise apresentada por Foppen *et al.* (2005), que sugeriram que o patamar não é afetado pelas variações da taxa de fluxo e sim pela concentração inicial, sendo que neste estudo a concentração inicial foi mantida constante. Mas também, de acordo com Foppen *et al.* (2005), a formação do patamar na curva de chegada pode ser atribuída à presença de poros pequenos demais para a passagem da bactéria através de eles, o que pode ter influenciado nos resultados do presente estudo.

Esse processo conhecido como filtração mecânica, pressupõe que o volume destinado à retenção de partículas (bactérias) é fixo para um determinado meio poroso devido a sua dependência com a geometria do grão e da bactéria. A determinação da quantidade de bactérias que o meio poroso é capaz de reter pode ser expressa pelo valor do volume de bactérias retidas por unidade de volume de meio poroso (σ) e os cálculos, a análise e a possível explicação para o comportamento das curvas de chegada, com base ao processo associado, são discutidas no item 4.4.2.

4.3.2. Fator de Retardamento e Dispersão Hidrodinâmica

Os indicadores de transporte: retardamento (R) e dispersão hidrodinâmica (D_h) foram determinados para cada ensaio conforme o método indicado em Azevedo *et al.* (2002).

Esse método permite obter, de forma gráfica e direta, o valor do retardamento a partir das curvas de chegada, como também calcular o valor da dispersão hidrodinâmica através da determinação gráfica do parâmetro b . Os gráficos mostrando a aplicação do método descrito em Azevedo *et al.* (2002), são apresentados no Apêndice B2.

A Tabela 4.5 resume os valores de R e b medidos graficamente e o valor calculado de (D_h) com base nesses valores.

Tabela 4.5. Parâmetros de transporte: Retardamento e Dispersão hidrodinâmica

Ensaio	i	C_0 cel/mL	v_d cm/d	v cm/d	R	b	D_h cm ² /min	P_e
1	0,03	1,07E+08	70,17	247,36	3,3	1,2	1,74E-02	197,1
2	0,06	1,65E+08	205,57	698,46	4,1	1,5	2,04E-02	475,3
3	0,06	1,55E+08	179,05	604,93	4,0	1,6	1,63E-02	514,7
4	0,06	1,79E+08	174,01	592,55	4,5	1,5	1,44E-02	572,6
5	0,16	1,63E+08	374,39	1280,91	4,9	1,1	4,87E-02	365,1
6	0,24	1,31E+08	411,13	1442,92	6,0	0,9	5,47E-02	366,4
7	0,24	1,40E+08	544,06	1861,41	7,4	2,0	9,39E-03	2752,5
8	0,36	1,31E+08	681,32	2446,46	9,0	3,5	2,73E-03	12469,0

i : gradiente hidráulico; C_0 : concentração Inicial da suspensão bacteriana; v_d : velocidade de Darcy; v : velocidade intersticial; R : retardamento; b : parâmetro da curva de chegada obtido de forma gráfica; D_h : Dispersão hidrodinâmica; P_e : número de Peclet.

Na Figura 4.7 pode-se observar claramente o comportamento das curvas de chegada em função da variação do gradiente hidráulico, considerando que, no caso do gradiente hidráulico igual a 0,06, a curva é o resultado da média dos valores de C/C_0 dos ensaios 2, 3 e 4 e para o gradiente hidráulico 0,24, o resultado da média dos valores de C/C_0 para os ensaios 6 e 7.

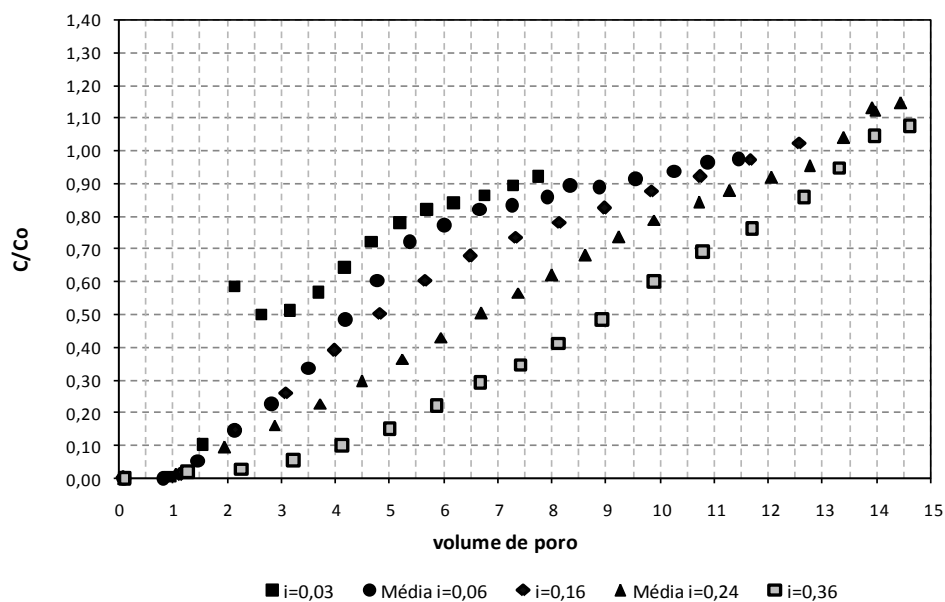


Figura 4.7. Curvas de chegada para diferentes gradientes hidráulicos

Observa-se que todas as curvas atingem a metade da concentração inicial, ($C/C_0=0,5$) para valores de volume de poro maiores do que a unidade, ou seja, todas as curvas de chegada apresentam retardamento. Este incremento do fator de retardamento com relação ao gradiente imposto apresenta um comportamento linear contrário ao comportamento esperado para um problema de transporte de contaminantes, como mostra o gráfico da Figura 4.8, onde na medida em que a velocidade aumenta o retardamento diminui. E ainda mais, considerando o resultado do ensaio de adsorção, poderia se esperar que as curvas não apresentem retardamento nenhum.

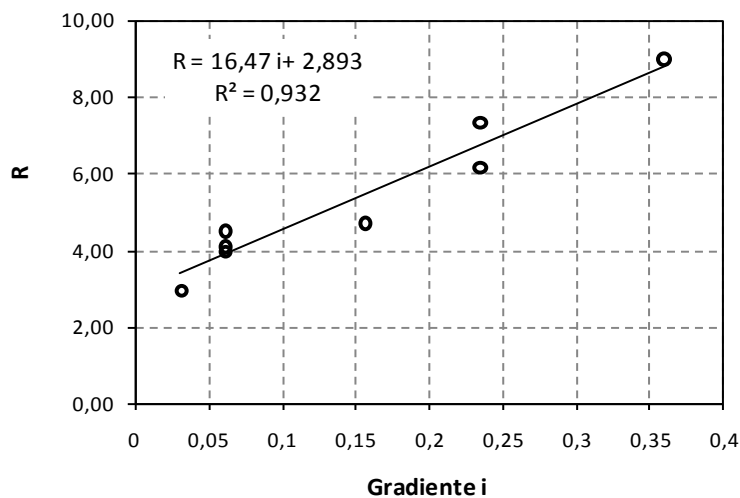


Figura 4.8. Variação do fator de Retardamento com relação ao gradiente hidráulico

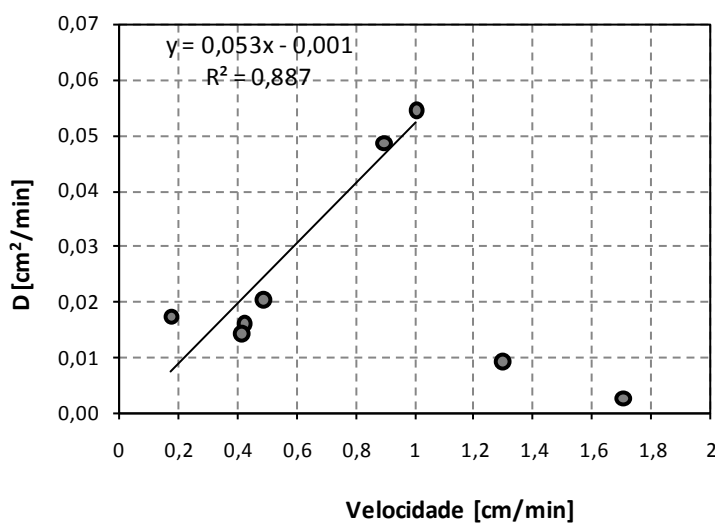


Figura 4.9. Variação da Dispersão Hidrodinâmica com relação à velocidade de poros

No gráfico da Figura 4.9, mostra-se a relação entre a dispersão e a velocidade. Os valores de dispersão hidrodinâmica foram calculados em função de R e b apresentados na Tabela 4.5, assim como também em função da velocidade de poros, que corresponde à média dos valores medidos para cada ensaio. Através da equação de correlação pode-se obter o valor de dispersividade $\alpha_L=0,053$ cm.

Teoricamente existe uma relação linear dada pela equação (2.9) entre ambos os parâmetros dispersão hidrodinâmica e velocidade de poros, sendo a inclinação da reta o fator da dispersividade longitudinal (α_L) e a interseção com o eixo vertical a difusão molecular (D_m). No caso do presente estudo, os valores que apresentam esta tendência teórica são os primeiros pontos do gráfico, ou seja, para os ensaios com gradiente menor que 0,24 e como será visto mais adiante, para aqueles ensaios em que não houve diminuição notável da condutividade hidráulica. Assim, a redução da dispersividade hidrodinâmica a partir da velocidade de 14,43 m/d (1 cm/min) pode estar relacionada com a diminuição de canais de poro disponíveis para a propagação do fluxo, que se manifesta através da redução da condutividade hidráulica.

Nos gráficos da Figura 4.10 apresentam-se as variações de condutividade hidráulica com relação ao número de volume de poros. Os valores de condutividade hidráulica foram obtidos durante a execução do ensaio ADS através da medida da vazão do efluente. Note-se que esses valores assim determinados no início dos ensaios encontram-se muito próximos ao valor de condutividade hidráulica determinado durante a caracterização da areia de quartzo, valor este representado pela linha tracejada nos gráficos da Figura 4.10.

Cada um dos ensaios ADS foi realizado aplicando um gradiente hidráulico constante, porém os ensaios executados com valores de gradiente superiores a 0,24 (ensaios 7 e 8) mostraram uma notável diminuição da condutividade hidráulica (de 0,03 até 0,01 cm/s), como pode ser observado na Figura 4.10 (c) e em consequência também da velocidade de percolação. Esta observação, permite afirmar que durante os ensaios 7 e 8 houve uma diminuição da porosidade, mudando as condições iniciais desses ensaios, e consequentemente conduzindo a um erro no cálculo da dispersão hidrodinâmica correspondente a esses ensaios, conforme valores plotados no gráfico da Figura 4.9.

Nos casos de gradientes mais baixos, a permeabilidade também apresentou variações, mas em menor proporção e com uma tendência distinta,

às vezes aumentando outras diminuindo, que pode se atribuir a variações da velocidade de agitação da suspensão dentro do frasco de Mariotte.

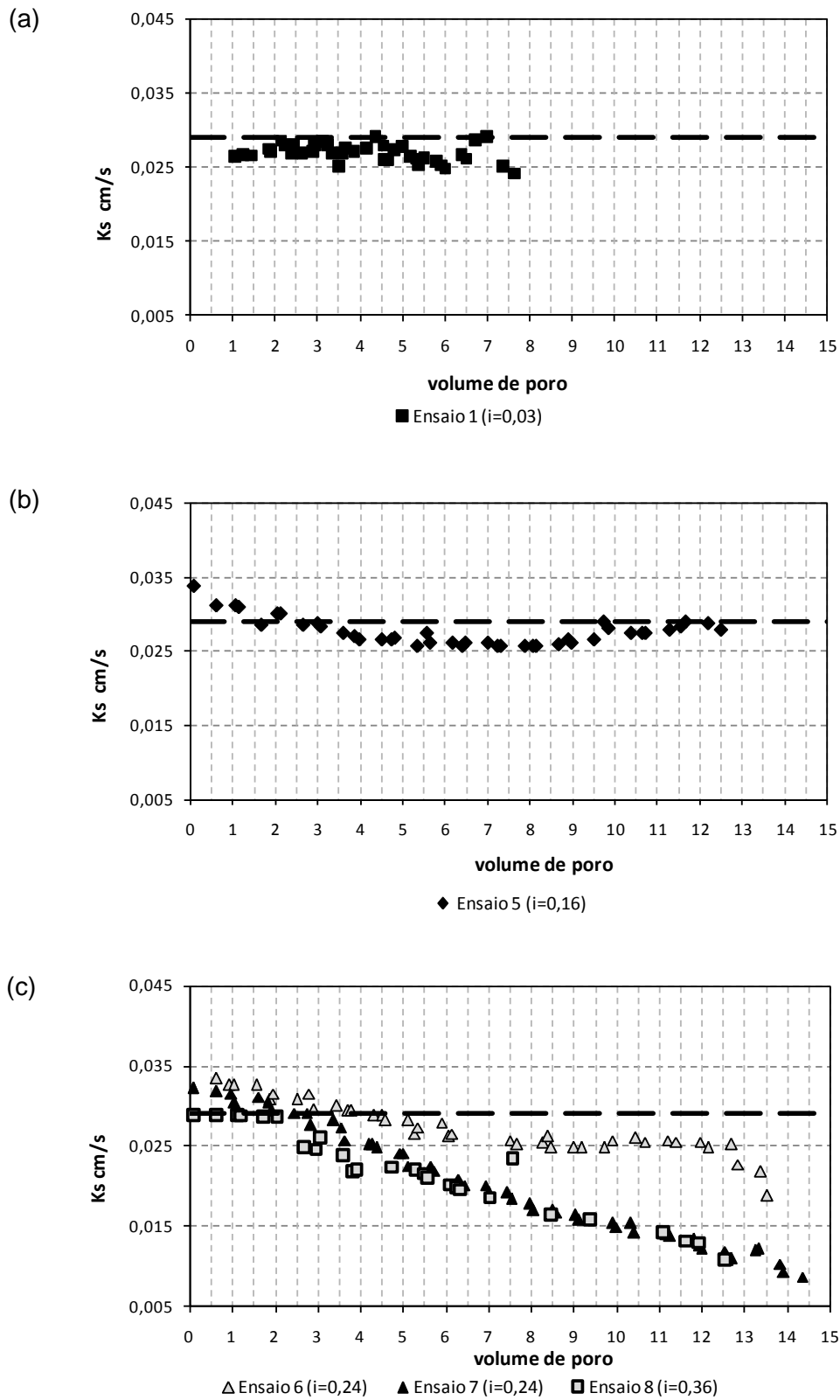


Figura 4.10. Variabilidade da condutividade hidráulica no ensaio ADS

De acordo com McDowell-Boyer *et al.* (1986), a mais importante manifestação dos mecanismos de filtração é a redução da condutividade hidráulica como o entupimento dos poros, o que explica a diminuição da condutividade hidráulica observada.

4.3.3. Ensaio de controle

Na Tabela 4.6 são apresentados os resultados obtidos através da técnica dos Tubos Múltiplos correspondentes ao ensaio ADS 1, para a determinação da concentração de bactérias retidas ao longo da coluna de areia após a passagem da suspensão bacteriana de forma contínua e constante. Pode-se observar que a maioria da massa de *E. coli* foi depositada próximo ao local de ingresso da suspensão na coluna.

Tabela 4.6. Concentração de *E. coli* retida ao longo da coluna de areia (Ensaio ADS 1)

Seção da coluna	NMP/100mL	NMP/10mL	Peso do solo úmido (g)	umidade % ω	Peso solo seco Ws (g)	Concentração de células por grama de solo (cel/g)
Base	2,10E+10	2,10E+09	1,600	6,8	1,50	1,40E+09
Metade	9,30E+08	9,30E+07	1,139	6,9	1,07	8,73E+07
Topo	4,00E+07	4,00E+06	1,631	21,0	1,35	2,97E+06

As determinações da concentração de bactérias ao longo da coluna de areia indicaram que, à medida que esses microrganismos percolam através da coluna, sua concentração diminui, com presença de uma concentração celular mais elevada nas primeiras camadas e menor concentração no final da coluna. Este comportamento é de se esperar considerando a equação da eficiência do filtro formulada conforme a teoria da filtração equação (2.25).

Na Figura 4.11 são apresentadas as curvas granulométricas obtidas através da análise por peneiramento, efetuada para amostras correspondentes a três seções ao longo da coluna de areia comparada com a curva granulométrica determinada para a caracterização do meio poroso (linha tracejada). Os resultados mostram que na houve diferença significativa entre as curvas granulométricas correspondentes a porções de areia retiradas da base, metade e topo da coluna, o que permite afirmar que a distribuição dos grãos foi mantida constante ao longo da coluna de areia durante a execução dos ensaios ADS.

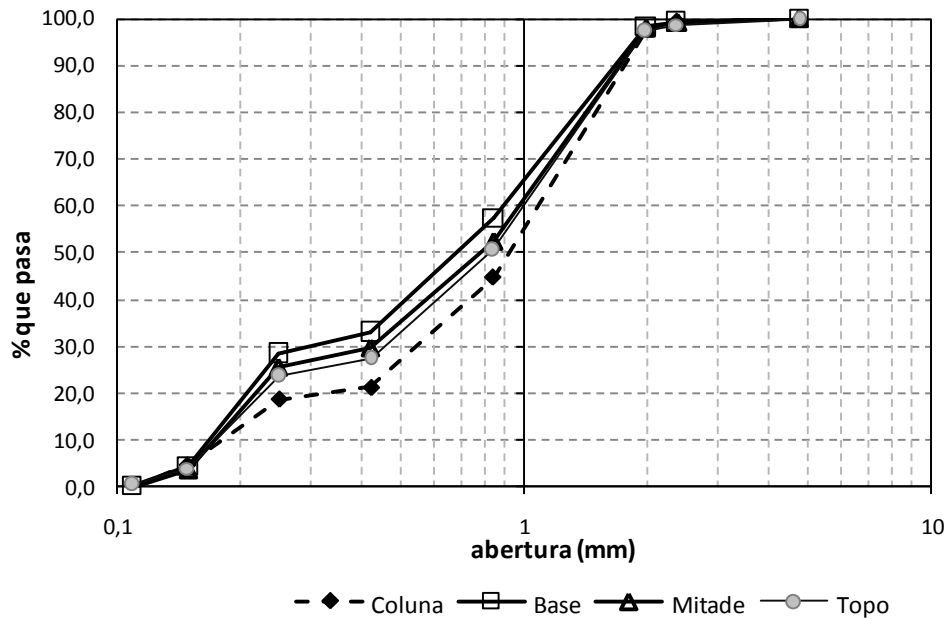


Figura 4.11. Distribuição do tamanho dos grãos ao longo da coluna de areia

4.4. Discussão

4.4.1. Retardamento

Valores do fator de retardamento para *Escherichia coli*, determinados através de experimentos de laboratório, utilizando colunas de areia com injeção contínua são reportados pela literatura como próximos à unidade, a partir de 0,56 até 2,06 (Pang *et al.*, 2003; Powelson e Mills., 2001 citado em Foppen e Schijven, 2006).

Como foi visto para este estudo, os valores de retardamento obtidos a partir da curva de transporte, variam proporcionalmente com a velocidade, a partir de valores de 3 até 9, sendo muito superiores aos valores encontrados na literatura.

Normalmente a existência de fatores de retardamento muito elevados é atribuída à participação de processos de adsorção físico-química durante o transporte, ou seja, a interações entre os grãos do solo e o contaminante (bactéria), devido a forças físicas (forças de van der Waals e forças

eletrostáticas) ou, em alguns casos ligações químicas, que originam a fixação das células da bactéria aos grãos do solo.

Contudo, no presente estudo os ensaios foram executados sob condições desfavoráveis à adsorção físico-química, devido à utilização de água destilada, que apresenta baixa condutividade elétrica e pH próximo ao neutro, além da carga eletrostática negativa do quartzo e da *E. coli*, esta última por sua natureza hidrofílica. Este fato foi confirmado através dos resultados obtidos nos ensaios de batelada obtendo um coeficiente de partição próximo a zero ($K_p=0,001\text{mL/g}$) permitindo afirmar que, sob as condições dos ensaios de transporte as bactérias são muito pouco retidas no meio poroso.

Portanto, o fator de retardamento calculado com base ao coeficiente de partição, através da equação (2.12) resulta ser aproximadamente igual à unidade, contrariamente às observações realizadas com base nas curvas de chegada nos ensaios ADS. Nesse sentido, a participação do processo de adsorção físico-química no transporte de *E. coli* suspensa em água destilada, em areia de quartzo nas condições avaliadas, é considerada desprezível.

Por outro lado, a teoria da filtração desenvolvida para estudar a deposição de partículas em uma primeira etapa, na qual o leito de areia encontra-se limpo, está baseada na proporcionalidade entre o incremento da taxa de deposição de primeira ordem com relação ao incremento da velocidade dos poros de acordo com a equação (2.28) (Tufenkji, 2004; Kretzschmar *et al.*, 1999). Resultados obtidos por Pang *et al.* (2003) para *E. coli*, utilizando água subterrânea e solos nativos, verificaram esta relação entre a taxa de deposição e a velocidade de fluxo, com valores de retardamento próximos à unidade, concluindo que a filtração é o processo dominante na remoção ou atenuação de bactérias. Contudo, a teoria da filtração não prediz adequadamente o comportamento da deposição, em presença de interações repulsivas da dupla camada eletrostática (Kretzschmar *et al.*, 1999), condições impostas no presente trabalho. Além disso, não foi encontrada na literatura nenhuma relação entre a taxa de deposição e o retardamento.

Outros estudos (Li *et al.*, 2004, Bradford *et al.*, 2006) avaliaram a retenção da bactéria *E. coli* para diferentes velocidades de fluxo, sob condições não favoráveis. Os resultados destas pesquisas mostraram tendência de produzir elevadas concentrações no efluente para maiores velocidades de fluxo, contrariamente a teoria da filtração anteriormente descrita. Observaram também que a forma da curva de chegada é afetada pela ocorrência da filtração mecânica, principalmente no caso de areias finas.

Consequentemente, uma explicação para a obtenção de fatores de retardamento muito elevados, como os obtidos no presente trabalho, pode ser atribuída à influência da filtração mecânica, como é descrito a seguir.

4.4.2.

Filtração Mecânica como processo dominante no transporte de *E. coli* nos ensaios ADS

De acordo com Foppen *et al.* (2005), a capacidade do meio poroso para capturar as bactérias pode ser determinada através do cálculo do volume de poros disponíveis para a retenção de bactérias por unidade de volume de meio poroso (σ). De acordo com a literatura, a significância do processo de filtração mecânica está associada à relação d/d_g , considerando os diâmetros das partículas e dos grãos completamente esféricos. Devido ao fato da *E. coli* ser uma bactéria em forma de bastão, para este estudo foi utilizado como diâmetro da bactéria (d), o valor médio da dimensão maior, isto é 3 μm . Utilizar a dimensão menor de (1 μm) subestimaria a influência do processo de filtração mecânica. No caso do diâmetro de grão foram utilizados para os cálculos o diâmetro característico $d_{50}= 920 \mu\text{m}$ e o diâmetro efetivo $d_{10}=180 \mu\text{m}$. Com estas definições, a relação d/d_g foi igual a 0,003 e 0,02 para d_{50} e d_{10} , respectivamente, que resulta ser maior do que 0,002, para valores inferiores a este. De acordo com Tufenkji (2004), o processo de filtração mecânica não tem impacto sobre o transporte. Devido ao valor muito baixo para d/d_g comparado com valores referenciais antigamente definidos como 0,05 (Pekdeger e Matthes, 1983) esperava-se que filtração mecânica tivesse pouca significância. Porém o comportamento das curvas de chegada mostra o contrário.

Para o melhor entendimento do processo de filtração mecânica, no presente estudo, foi calculado o valor de (σ) utilizando a equação (2.29), proposta por Herzig (1970) e também através da integração da função de densidade de poro, proposta por Wise *et al.* (1994), ambas as estratégias citadas em Foppen *et al.* (2005) e descritas no item 2.6.4. Os parâmetros de van Genuchten utilizados para o cálculo dos coeficientes da função de poro foram determinados pelo método de redes neuronais Schaap *et al.* (1998).

Considerando a velocidade de poros constante para cada ensaio, como também a concentração inicial, haverá um tempo para o qual todos os sítios disponíveis estejam preenchidos e, conseqüentemente, também haverá um número definido de volume de poros, que pode ser calculado através da relação dada pela equação (2.30). A partir do estudo realizado por Foppen *et al.* (2005)

foi deduzido o valor do número de células por grama de biomassa igual a $6,36E+11$, que permite transformar as unidades de concentração inicial de (cel/mL) para (g/mL) e assim calcular o número de volume de poros que são necessários passar através da coluna de areia para preencher os canais de poro que teoricamente estão disponíveis para a retenção de células. Os resultados são apresentados na Tabela 4.7.

Tabela 4.7. Número de volume de poros necessários para preencher com bactérias os espaços de poro destinados à filtração mecânica

	σ [-]	% σ	C_o (cel/mL)	C_o (g/mL)	pV	S_{max}
Equação Herzig <i>et al.</i> , 1970						
dg=d ₅₀	6,71E-06	0,001	1,46E+08	2,30E-04	0,10	3,58E-06
dg=d ₁₀	3,98E-04	0,040	1,46E+08	2,30E-04	6,16	2,12E-04
Função de densidade de poro	2,47E-03	0,247	1,46E+08	2,30E-04	38,15	1,32E-03

C_o : valor médio de todos os ensaios. Para a determinação da função de densidade de poro foram considerados os parâmetros de van Genuchten $\alpha_v=3,01$ (1/m) e $n_v=3,9966$ com base nas propriedades da areia: $\rho_{bulk}=1,89$ e $n=0,3$.

Note-se que o valor do volume de bactéria que pode ser retido no meio poroso (σ) de acordo com a equação da função de densidade de poros é superior ao valor calculado através das aproximações baseadas na relação de aspecto (d/d_g), que pode ser interpretado pelo fato de que esta última aproximação considera os grãos do solo como esferas do mesmo diâmetro enquanto que a função de densidade de poro considera a distribuição do tamanho dos poros.

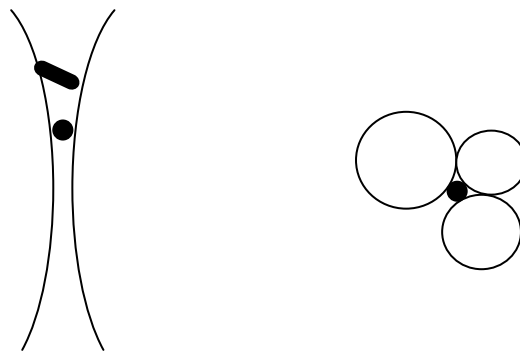
Assim, os resultados obtidos indicam que, para uma areia bem graduada como a utilizada neste estudo considerar o valor de diâmetro efetivo está mais próximo do comportamento real do que considerar o diâmetro característico d_{50} .

Por outro lado, com base ao ensaio de capilaridade, foi determinado um diâmetro médio de poro igual a 352 μm , que resulta maior do que 124 μm , este último calculado a partir da função de densidade de poro. Isto significa que o valor de (σ) real será menor que 0,25% valor apresentado na Tabela 4.7. O valor mais próximo à realidade pode ser então calculado mediante a determinação da curva característica da areia no laboratório.

Contudo, as curvas de chegada obtidas neste trabalho mostraram que houve um tempo para o qual a concentração do efluente superou o valor da

concentração inicial, o que sugere que ainda existam espaços disponíveis à deposição devido ao processo de filtração mecânica, a deposição resulta ser reversível devido ao elevado gradiente hidráulico aplicado nos ensaios. Só foi possível observar a formação do patamar para os ensaios realizados com gradientes menores que 0,06. Com maior definição para os ensaios 2 e 4 ($v=5,9$ m/d) e, no caso do ensaio 1 ($v=2,47$ m/d), foi observado um patamar temporário para um valor de C/C_o de aproximadamente 0,5.

Este comportamento pode ser explicado mediante a análise da Figura 4.12, onde pode se observar a forma como o solo pode reter bactérias, tanto nas contrações dos poros como nos canais de poro que apresentam uma extremidade com diâmetro igual a zero, esses últimos denominados por Foppen *et al.* (2005) como DEP (*Dead End Pore*).



a) Tipo A. Constrição de poro

b) Tipo B. DEP (*Dead End Pore*)

Figura 4.12. Tipos de locais dentro do meio poroso, susceptíveis à retenção de bactérias devido ao processo de Filtração mecânica

Com base a essas considerações, para ensaios realizados com elevadas velocidades (>6 m/d), a areia é capaz de reter bactérias mais rapidamente, seja nas regiões tipo A ou tipo B. Porém, forças hidrodinâmicas, consequência da elevada velocidade do ensaio, podem atuar com maior intensidade sobre as bactérias retidas na região tipo A, forçando-as a atravessar a estreiteza do canal de poro. Esta suposição tem como base a afirmação feita por Bradford *et al.*(2006), que assumiram que as células de *E. coli* podem se agregar quando um grande número delas monodispersas são depositadas na constrição dos poros ou nos locais de filtração mecânica. Quando a *E. coli* depositada atinge uma concentração crítica no local de filtração mecânica, a *E. coli* O157:H7

agregada pode ser liberada dentro a solução aquosa como resultado de forças hidrodinâmicas de cisalhamento.

Este fenômeno pode explicar também as elevadas concentrações no efluente determinadas para velocidades maiores a 6m/d ($C/C_o > 1$), evidenciando que o processo de filtração mecânica para velocidades de fluxo muito elevadas é menos eficiente como processo de atenuação de patogênicos.

O comportamento observado confirma a afirmação, realizada por Bradford *et al.* (2002), que um modelo de remoção de partículas que considera tanto a adsorção cinética (irreversível) junto com a filtração mecânica é mais real, particularmente para sistemas com partículas e tamanhos de grão intermediários.

No entanto, o processo de filtração mecânica tem uma clara influência sobre a atenuação de bactérias, vários estudos (Bradford *et al.*, 2006; Li *et al.*, 2004) demonstraram que quanto mais baixa a velocidade de fluxo, maior a capacidade de atenuação do meio poroso, o que é observado através da estabilização da curva para um determinado valor de C/C_o menor que a unidade. Este tipo de deposição devido à filtração mecânica foi mostrado por Bradford (2006) através de fotos ampliadas 600 vezes (Figura 4.13). É por esta razão que o processo de filtração mecânica é modelado também como um processo irreversível (Pang *et al.*, 2003).

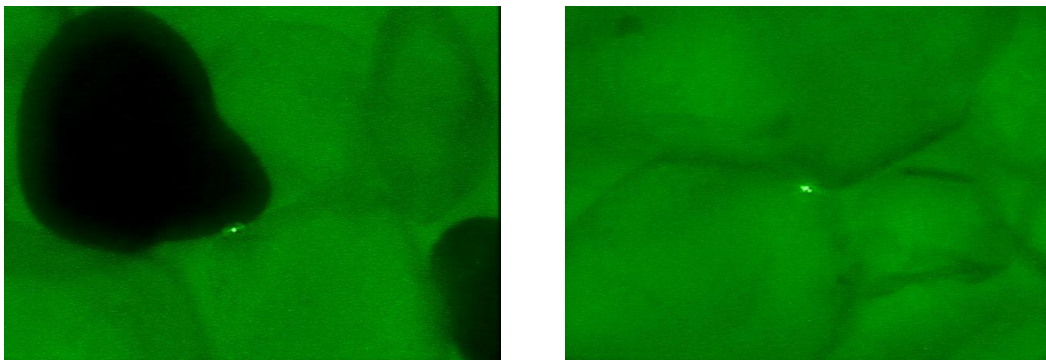


Figura 4.13. Fotos ampliadas 600 vezes, da deposição de *E.coli* O157: H7 em areia de 150 μm (Bradford *et al.*, 2006)

4.4.3. Influencia das propriedades do meio poroso

Foi mostrado que a filtração mecânica pode explicar o comportamento das curvas de chegada, mas por outro lado, nesta seção é discutida a influência da

forma do grão, além do tamanho como sobre os processos de transporte e retenção.

No estudo realizado por Bradford *et al.* (2002), utilizando colóides carboxílicos, carregados negativamente e areia quartzosa de diferentes tamanhos, os autores concluíram que o pico do efluente decresce com o incremento do tamanho dos colóides e diminuição do tamanho dos grãos, variáveis que foram mantidas constantes no presente estudo. Também concluíram, que a concentração de colóides no efluente é altamente dependente da distribuição do tamanho dos grãos, porém utilizaram areias com coeficientes de uniformidade entre 1 e 3, menores que o valor de 6,11 correspondente à areia utilizada neste trabalho.

Embora os experimentos realizados por Bradford *et al.* (2002) não tenham sido dirigidos à determinação do fator de retardamento, não foi observado retardo nas curvas de chegada, o que poderia estar relacionado com a utilização de meios porosos com distribuição uniforme dos grãos.

Foppen e Shijven (2006) apresentam resultados obtidos por Mathess *et al.* (1995a), que demonstram que o coeficiente de uniformidade não afeta o valor do coeficiente de filtração (ou coeficiente de adesão k_{att}) que está diretamente relacionado com o valor de C/C_o (patamar da curva de chegada). Entretanto, a influência deste parâmetro na forma da curva de chegada e conseqüentemente no retardamento, não foi analisada.

Portanto, pode-se afirmar que embora o coeficiente de uniformidade não afete a eficiência de filtração, pode, sim, influenciar a forma da curva chegada.

Quanto à análise da forma dos grãos, experimentos realizados por Tufenkji *et al.* (2004) comparam o transporte de *Cryptosporidium parvum* oocysts e microesferas de látex, através de areia de quartzo e de esferas de vidro de tamanho comparável com o tamanho da areia. Estes estudos revelaram que a forma do grão contribui consideravelmente no potencial de filtração mecânica do meio poroso, como pode ser observado na Figura 4.14. Deste modo, Tufenkji *et al.* (2004) demonstraram que comparado com a sílica esférica, a sílica britada resulta numa maior atenuação de microesferas e *Cryptosporidium* devido ao efeito de filtração mecânica.

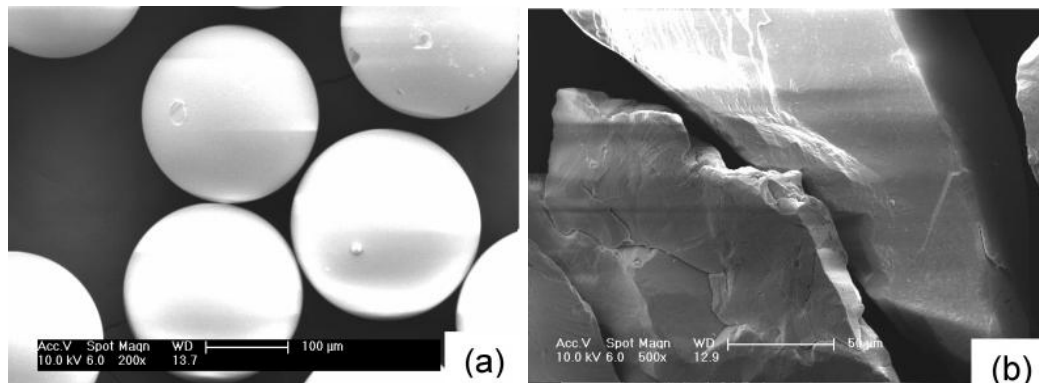


Figura 4.14. Imagens ESEM (*Environmental Scanning Electron Microscope*) de a) leito de esferas de vidro (ampliadas 200 vezes, b) quartzo com forma irregular (ampliada 500 vezes) (Tufenkji *et al.*, 2004)

Com base neste estudo, pode se afirmar que a forma predominantemente angulosa da areia de quartzo comercial utilizada neste trabalho, pode ter contribuído ainda mais na retenção de bactérias devido ao processo de filtração mecânica.