



## **XII SIMPÓSIO DE RECURSOS HÍDRICOS DO NORDESTE**

### **AValiação das diferentes formas de extração do coagulante natural da *Moringa oleifera* para o tratamento de águas superficiais.**

A. T. A. BAPTISTA<sup>1</sup>; E. F. de MORAIS<sup>1</sup>; N. L. de MIRANDA<sup>1</sup>; R. G. GOMES<sup>1</sup>; A. M. S. VIEIRA<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Universidade Estadual de Maringá, Departamento de Engenharia de Alimentos;

**RESUMO** – O uso de coagulantes naturais apresenta vantagens em relação aos coagulantes químicos no tratamento de água, principalmente com relação à biodegradabilidade, baixa toxicidade e baixo índice de produção de lodos residuais, como é o caso da *Moringa oleifera* Lam. Várias são as formas de obtenção do coagulante de Moringa, e este trabalho teve como objetivo avaliar a eficiência dos coagulantes obtidos em diferentes valores de pH, com água e solução salina, na remoção de cor, turbidez e carbono orgânico total residual na água tratada. Como resultado, pode-se destacar que dentre as diferentes formas de extração, as melhores remoções foram obtidas com a Moringa em pH 10 com percentual de remoção de 93,45% de cor e 91,26% de turbidez juntamente com a Moringa salina com 89,65% e 91,65% de remoção destes mesmos parâmetros. Com relação à presença de matéria orgânica na água tratada, o coagulante salino foi o que apresentou melhores resultados, com um COT residual de 4,86 mg/L.

**ABSTRACT**– The use of natural coagulant, such as *Moringa oleifera* Lam, has advantages over chemical coagulants in water treatment, particularly with respect to biodegradability, low toxicity and low production rate of waste sludge. There are several ways to obtain the natural coagulant from Moringa seeds. The aim of this work was to evaluate different coagulant extraction conditions. The effectiveness of the coagulants obtained was evaluated in the removal of color, turbidity and residual total organic carbon in the treated water. As a result, it may be noted that among the different ways of extracting the best removals were reached with coagulant solution obtained at pH10 with removal percentage of 93.45% to 91.26% for color and turbidity along with the solution

1) UEM, Av. Colombo, 5790. 87020-900, Maringá-Pr, Brasil. Fone: 44 30114782; [alinetakaoka\\_17@hotmail.com](mailto:alinetakaoka_17@hotmail.com)

2) UEM, Av. Colombo, 5790. 87020-900, Maringá-Pr, Brasil. Fone: 44 30114782; [manu\\_fmoraes@hotmail.com](mailto:manu_fmoraes@hotmail.com)

3) UEM, Av. Colombo, 5790. 87020-900, Maringá-Pr, Brasil. Fone: 44 30114782; [naylmiranda@hotmail.com](mailto:naylmiranda@hotmail.com)

4) UEM, Av. Colombo, 5790. 87020-900, Maringá-Pr, Brasil. Fone: 44 30115093; [rguttri02@gmail.com](mailto:rguttri02@gmail.com)

5) UEM, Av. Colombo, 5790. 87020-900, Maringá-Pr, Brasil. Fone: 44 30115093; [amsvieira@uem.br](mailto:amsvieira@uem.br)

obtained by saline extraction which reached 89.65% and 91.65% removal of these same parameters. Regarding the presence of organic matter in the treated water, the saline coagulant solution showed the best results with a residual TOC of 4.86 mg / L.

**Palavras-Chave** – *Moringa oleifera*, coagulação/floculação, água potável.

## 1 – INTRODUÇÃO

Para um controle da qualidade da água é necessário o monitoramento de diversos indicadores juntamente com a realização do seu tratamento. No processo de coagulação/floculação o coagulante inorgânico sulfato de alumínio é o mais comumente utilizado (Kawamura, 1991). Contudo, o uso deste coagulante apresenta algumas desvantagens, como seu efeito coagulante ser fortemente dependente do pH, podendo ao final do tratamento ficar presente uma alta concentração de alumínio residual na água acarretando danos à saúde, além de não ser biodegradável e poder causar um sério problema à disposição e tratamento do lodo gerado (Huang *et al.*, 2000). Neste contexto aumentou-se o interesse por coagulantes naturais pelo fato de serem biodegradáveis e seguros para a saúde humana (Okuda *et al.*, 2001; Madrona *et al.*, 2012). Uma planta que vem sendo amplamente pesquisada e tem ganhado destaque é a *Moringa oleifera* Lam (MO) pertencente à família *Moringaceae*, nativa da Índia e amplamente cultivada nos trópicos de todo o mundo (Karadi *et al.*, 2006). Suas sementes são uma alternativa viável de agente coagulante em substituição aos sais de alumínio, utilizados no tratamento de água em todo o mundo (Madrona *et al.*, 2010). A eficiência de sua semente como coagulante natural para o tratamento de águas superficiais e residuárias já foi comprovada por vários autores (Madrona *et al.*, 2010; Vieira *et al.*, 2010). Alguns autores relatam em seus estudos que a *Moringa* atua como agente clarificante de águas devido à presença de uma proteína catiônica de alto peso molecular, que desestabiliza as partículas contidas na água desempenhando a função de coagulante natural (Ndabigengesere *et al.*, 1995).

O uso da *Moringa* como coagulante apresenta diversas vantagens como não alterar significativamente o pH da água após o tratamento, não ser tóxica, não ocasionar problemas de corrosão e ser biodegradável (Almeida, 2010). Desta forma este trabalho teve como objetivo avaliar as diferentes formas de obtenção do coagulante natural de *Moringa oleifera* e sua aplicação no processo de coagulação/floculação de águas superficiais de baixa turbidez.

## 2 - MATERIAL E MÉTODOS

Utilizou-se água bruta provida diretamente da bacia do Rio Pirapó, coletada na Companhia de Saneamento do Paraná – SANEPAR, localizada na cidade de Maringá – Paraná. As sementes de moringa utilizadas no experimento foram obtidas de Aracaju – SE.

### 2.1 - Extração do composto ativo

Foram realizadas extrações do composto ativo da semente de Moringa com água, solução salina (NaCl) e tampões em diferentes pH's para obtenção dos coagulantes a serem utilizados nos ensaios. Os tampões utilizados foram: tampão citrato (pH 3, pH 4, pH 5 e pH 6), tampão tris hidroximetil aminometano (pH 7, pH 8, pH 9) e tampão carbonato-bicarbonato (pH 10, pH 11), todos com baixa força iônica (5mM).

### *2.1.1 - Obtenção dos coagulantes*

Para o preparo do coagulante aquoso de Moringa utilizou-se 1 g de semente para 0,1L de água destilada. As sementes descascadas e pesadas foram trituradas em liquidificador por 3 minutos, em seguida passaram por agitação em agitador magnético durante 30 minutos e, finalmente a filtração com papel filtro qualitativo da solução (Madrona *et al.*, 2012). Para o preparo do coagulante salino seguiu-se o mesmo procedimento descrito anteriormente substituindo apenas a água destilada por solução salina de NaCl 1M (Madrona *et al.*, 2010). O preparo dos coagulantes obtidos com diferentes valores de pH foi realizado da mesma forma, porém utilizando como solução extratora as soluções tampão no pH escolhido.

## **2.2 – Teor de Proteína**

O método de Lowry *et al.* (1951) foi utilizado para quantificação das proteínas totais presentes nos extratos aquoso, salino e de diferentes pH's.

## **2.3 - Ensaios de coagulação/floculação**

### *2.3.1- Caracterização da água bruta*

Foram avaliados os parâmetros de cor (espectrofotômetro DR 5000 Hach), turbidez (turbidímetro 2100P Hach) e pH (pHmetro Thermo-Scientific VSTAR92 Orion Versastar) segundo metodologia descrita no Standard Methods (APHA, 2005). Esta caracterização foi realizada no momento da coleta e durante a execução dos ensaios a fim de verificar a homogeneidade das características da água utilizada nos experimentos e os percentuais de remoção de cor e turbidez após os ensaios de coagulação/floculação.

### *2.3.2 - Ensaios de coagulação/floculação*

Os coagulantes aquoso, salino e de tampões em diferentes pH's foram avaliados no processo de coagulação/floculação em ensaios no Jar test simples, Milan - Modelo JT 101/6 de seis provas. As condições operacionais do Jar test foram de tempo de mistura rápida de 3 min com gradiente de mistura rápida de 100rpm e tempo de mistura lenta de 15 min com gradiente de mistura de 15 rpm (Madrona *et al.*, 2012), seguido de 30 min de decantação ao final deste processo.

As dosagens dos coagulantes avaliados foram calculadas com base na concentração de proteína presente em cada solução. Foram escolhidas quatro concentrações com base em estudos prévios (Baptista, 2013), sendo elas 0,17; 6,89; 20,68 e 55,14 mg/L de proteína coagulante.

Juntamente com estes ensaios realizou-se um ensaio controle no qual não houve adição de coagulante, a fim de avaliar a influência da sedimentação das partículas no processo.

#### 2.4 - Carbono orgânico total (COT)

A análise de carbono orgânico total (COT) foi realizada nas soluções coagulantes e nas águas tratadas que apresentaram os melhores resultados nos ensaios de coagulação/floculação. A concentração de COT foi determinada no equipamento TOC Analyser, da marca Shimadzu, modelo 5000<sup>a</sup>, sendo medida em mg/L, segundo procedimento descrito no Standard Methods (APHA, 2005).

### 3 - RESULTADOS E DISCUSSÃO

A água bruta utilizada nos ensaios de coagulação/floculação apresentou parâmetros médios de pH 7,98, cor de 441,86 mgPtCo/L e turbidez de 99,49 NTU.

#### 3.1 - Proteína por lowry

Os valores de proteínas obtidos para cada coagulante foram determinados e se encontram expressos na Tabela 1.

Tabela 1 – Teor de proteínas (mg/L) presentes nos diversos coagulantes de Moringa

Aquoso	Salino	pH 3	pH 4	pH 5	pH 6	pH 7	pH 8	pH 9	pH 10	pH 11
1222,7	5308,0	3807,6	3349,6	4661,1	4596,8	2097,5	3602,5	3705,2	2778,6	2531,5

Com base nos resultados da Tabela 1, pode-se observar que a extração do coagulante com solução salina é a mais eficiente e em contra partida, a extração aquosa apresentou menor eficiência com relação ao teor de proteínas, obtendo-se, respectivamente, 5308,00 mg/L e 1222,73 mg/L de proteína.

Ao se comparar esses dois coagulantes pode-se notar que o salino promoveu uma extração 4,4 vezes maior que o aquoso, sendo estes resultados condizentes com o encontrado por Okuda *et al.* (1999), o qual comprovou que a extração da proteína com solução salina é mais eficiente que a extração realizada com água. A proteína coagulante apresenta maior solubilidade em água com maior concentração de íons (Okuda *et al.*, 2001). Este fato pode ser explicado por uma denominação chamada de salting-out, que melhora a eficiência da extração salina por aumentar a força iônica e a solubilidade dos componentes ativos presentes nas sementes (Okuda *et al.*, 2001; Ndabigengesere e Narasiah, 1998).

Com relação à extração em diferentes pH's, pode-se observar que as melhores remoções foram alcançadas nos pH 5 e pH 6, com valores acima de 4500 mg/L. Menores quantidades de proteínas extraídas foram nos pH's 7, 10 e 11. Para os pH's 10 e 11 a baixa solubilização das

proteínas pode estar relacionada ao seu ponto isoelétrico, que de acordo com Gassenschmidt *et al.* (1995) e Ndabigengesere *et al.* (1995), está acima de pH 10.

### 3.2 - Ensaios de coagulação/floculação

Os volumes dos coagulantes utilizados nos ensaios de coagulação/floculação foram calculados a fim de se atingir as mesmas concentrações de proteínas para os diferentes coagulantes. Estes valores estão apresentados na Tabela 2 e foram utilizados nos processos de coagulação/floculação com os diferentes coagulantes.

Tabela 2 - Volume dos coagulantes (mL) e suas respectivas concentrações protéicas (mg/L) utilizadas no processo de coagulação/floculação

Concentração Proteína (mg/L)	Aquoso	Salino	pH 3	pH 4	pH 5	pH 6	pH 7	pH 8	pH 9	pH 10	pH 11
0,17	0,06	0,02	0,06	0,02	0,01	0,01	0,03	0,02	0,02	0,02	0,03
6,89	2,25	0,52	0,72	0,82	0,59	0,6	1,31	0,76	0,74	0,99	1,09
20,68	6,77	1,56	2,17	2,47	1,77	1,8	3,94	2,3	2,23	2,98	3,27
55,14	18,04	4,16	5,79	6,58	4,73	4,8	10,51	6,12	5,95	7,93	8,71

Ao observar a Tabela 2 pode-se perceber que os volumes de coagulante aquoso utilizados foram superiores ao usados com coagulante salino e coagulante tampão em diferentes pH's, pois o coagulante aquoso apresentou teor de proteínas inferior quando comparado aos demais coagulantes. Esta variação no volume de coagulante utilizado é importante quando se pensa em processos em larga escala, influenciando também na matéria orgânica residual da água tratada, como poderá ser observado na análise de COT.

Os resultados de remoção de cor obtidos com o uso dos coagulantes aquoso, salino e de tampão em diferentes pH's são apresentados na Figura 1.

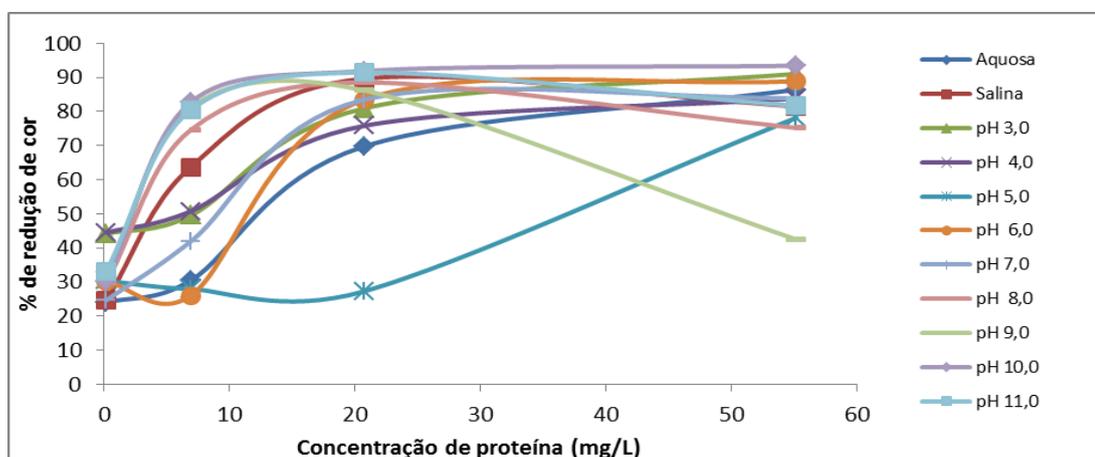


Figura 1 – Percentual de redução de cor utilizando os diferentes coagulantes, em relação à concentração de proteína.

Ao observar a Figura 1, pode-se verificar que para praticamente todas as concentrações de proteínas, o pH 5 foi o que apresentou a menor porcentagem de redução de cor com aproximadamente 25% na dosagem de 20 mg/L de proteína. Em contrapartida, para esta mesma concentração protéica, 20 mg/L, os coagulantes em pH's 10 e 11 apresentaram resultados mais satisfatórios na clarificação da água, com 90% de remoção. Com o aumento da dosagem de proteínas em 55 mg/L o coagulante em pH 10 continuou com bons percentuais de remoção, cerca 93%, enquanto o coagulante em pH 9 apresentou um declínio na redução de cor, chegando a 48%.

Da mesma forma que para o parâmetro cor, os diferentes coagulantes foram avaliados quanto à capacidade de redução de turbidez e os resultados obtidos encontram-se expressos na Figura 2.

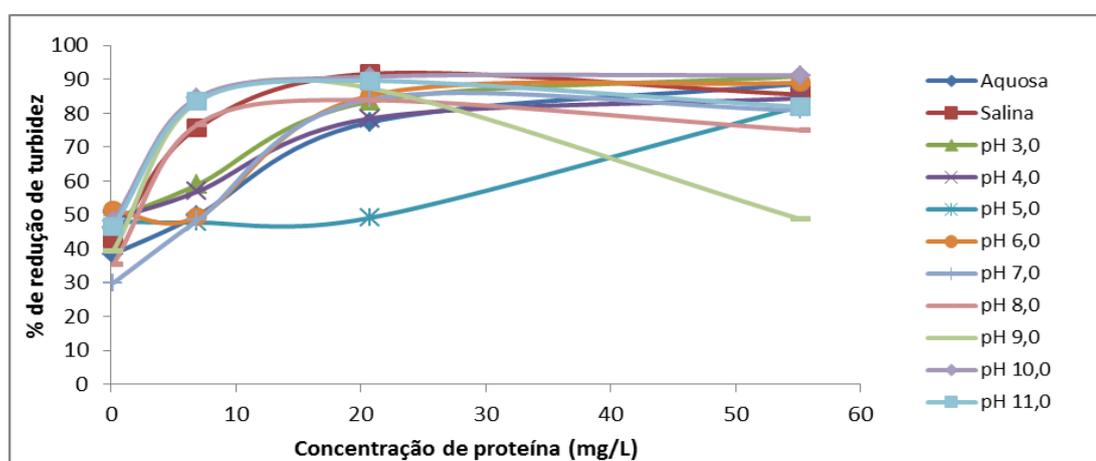


Figura 2 – Porcentagem de redução da turbidez utilizando os diferentes coagulantes, em relação à concentração de proteína.

Observa-se que para uma concentração de aproximadamente 20 mg/L de proteína os coagulantes salino, pH 10 e 11 foram os que obtiveram maiores porcentagens de redução de turbidez com 91,7%, 90,8% e 89,3% respectivamente. Na mesma concentração, os pH's 5 e 7 apresentaram as menores porcentagens de redução, 47,7% e 48,4%, aproximadamente.

Com o aumento da concentração de proteína em 55,14 mg/L, o coagulante tampão em pH 10 continuou apresentando o melhor resultado para diminuição da turbidez com percentual de 91,3%. Em contrapartida, a remoção deste parâmetro com o coagulante em pH 9 apresentou declínio acentuado obtendo valor de 48,8% nesta mesma concentração proteica, mesmo perfil observado na remoção de cor. Este comportamento pode ser explicado pelo fato de que em altas dosagens de Moringa poder haver uma reversão de cargas, resultando em um restabelecimento das partículas desestabilizadas, o que pode causar um aumento da turbidez da água (Muyibi; Evison, 1995).

Desta forma, as melhores condições de remoção de cor e turbidez, assim como os valores residuais encontrados para cada condição de extração são expressas na Tabela 3.

Tabela 3 - Porcentagens de remoção de cor e turbidez e seus valores residuais considerando as diferentes formas de extração do composto ativo da Moringa

Condições	Dosagem (mg/L)	% Remoção Cor	Cor residual (mgPtCo/L)	% Remoção Turbidez	Turbidez residual (NTU)
Aquosa	55,14	86,43	60,0	88,76	11,2
Salina	20,68	89,65	45,7	91,69	8,3
pH 3,0	55,14	91,08	39,4	90,99	9,0
pH 4,0	55,14	83,79	71,6	84,48	15,4
pH 5,0	55,14	78,21	96,3	82,08	17,8
pH 6,0	55,14	88,93	48,9	89,03	10,9
pH 7,0	20,68	83,47	73,0	84,11	15,8
pH 8,0	20,68	88,52	50,7	83,91	16,0
pH 9,0	20,68	86,22	60,9	87,45	12,5
pH 10,0	55,14	93,45	28,9	91,26	8,7
pH 11,0	20,68	91,43	37,9	89,61	10,3

Comparando os valores obtidos, observa-se que os melhores resultados foram com o uso do coagulante em pH 10 na concentração de 55 mg/L de proteína, com valores de remoção superiores a 91% nos dois parâmetros avaliados, seguido da solução salina, com 89% de remoção de cor e 91% de remoção da turbidez na dosagem de 20 mg/L. Resultados semelhantes foram encontrados por Ndabigengesere e Narasiah (1998) que obtiveram uma remoção de 90% de turbidez de uma amostra de água bruta com 105 NTU, após utilização de extrato de sementes de moringa na dosagem de 50 mg/L. Com base nos percentuais de remoção obtidos verificou-se que a água tratada com coagulante em pH 10 apresentou valores residuais de 28,9 mgPtCo/L de cor e 8,7 NTU de turbidez e a água tratada com o coagulante salino apresentou residuais de 45,7 mgPtCo/L e 8,3 NTU. Madrona *et al.* (2010) e Okuda *et al.* (1999) mostraram que a força iônica da solução extratora melhora a eficiência de extração do componente ativo a partir de sementes de Moringa, resultando assim num melhor desempenho do coagulante salino comparando-se com o coagulante aquoso, condizendo com o resultado obtido.

### 3.3 - Carbono orgânico total

A análise do teor de carbono orgânico total (COT) foi realizada nos coagulantes, nas águas tratadas com estes coagulantes e seus resultados são apresentados na Tabela 4.

Os resultados da Tabela 4 mostram que os valores de COT foram condizentes com o teor de proteínas encontrado em cada coagulante obtendo desta forma o mesmo comportamento. O maior valor de proteína foi encontrado no coagulante salino que também apresentou maior valor de

carbono orgânico total com 1604,08 mg/L, seguido do coagulante em pH 10 e o aquoso com 1342,88 mg/L e 1001,57 mg/L de carbono orgânico total, respectivamente.

Tabela 4: Carbono orgânico total encontrado nos coagulantes, nas águas tratadas e na água bruta.

Amostra	COT (mg/L)
Moringa aquosa	1001,57
Moringa salina	1604,08
Moringa pH 10	1342,88
Água tratada com Moringa aquosa	39,01
Água tratada com Moringa salina	4,86
Água tratada com Moringa pH 10	31,78
Água bruta	4,73
Controle	3,38

Observa-se que a quantidade de COT presente nas águas tratadas com a Moringa aquosa é a maior de todas as condições (39,01 mg/L), seguido da água tratada com Moringa em pH 10 (31,78mg/L) e com Moringa salina (5,86mg/L). Desta maneira, pode-se relacionar tais resultados com as quantidades de volume do coagulante utilizados nos ensaios, sendo a extração aquosa a que utilizou maior quantidade, 18,04 mL, e, por conseguinte apresentou maior resultado de COT, quando comparado com a extração salina que utilizou volume do coagulante de 1,56 mL. Ainda com a utilização da solução salina, verifica-se que, em relação ao controle, não há grande aumento de carbono orgânico total sendo uma vantagem quando se compara com os valores de COT presentes nas águas tratadas com Moringa aquosa (Okuda *et al.*, 2001) e com tampão 10.

A menor quantidade de matéria orgânica na água tratada diminui problemas com sabor, odor e o desenvolvimento de microorganismos durante o armazenamento, além de reduzir o risco de formação de trihalometanos durante o processo de desinfecção por cloro.

#### 4 - CONCLUSÃO

Os resultados obtidos a partir dos ensaios de coagulação/floculação e sedimentação com coagulantes de solução tampão pH 10 e salina de Moringa, apresentaram-se como uma boa alternativa para o tratamento de água bruta. O coagulante obtido com tampão pH 10 apresentou os maiores valores de remoção de cor e turbidez, 93,45% e 91,26%, respectivamente, seguido pelo coagulante salino com remoções de 89,65% de cor e 91,69% de turbidez. Com relação à presença de matéria orgânica na água tratada, o coagulante salino foi o que apresentou melhores resultados, com um COT residual de 4,86 mg/L.

## AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem ao apoio financeiro recebido pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPQ), Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES) e a Fundação Araucária.

## BIBLIOGRAFIA

- ALMEIDA, I. L. S. “*Avaliação da Capacidade de Adsorção da Torta de Moringa Oleífera para BTEX em Amostras Aquosas*”. (2010). Dissertação de Mestrado. Programa de Pós Graduação do Instituto de Química, Universidade Federal de Uberlândia, Uberlândia.
- APHA-American Public Health Association. (2005). “*Standard methods for the examination for water and wastewater*”. 20th ed. Washington, D.C.
- BAPTISTA, A. T. A. “*Concentração de proteínas presentes nas sementes de Moringa oleífera Lam. responsável pelo processo de coagulação da água*”. (2014) Dissertação apresentada ao Programa de Pós-graduação em Ciência de Alimentos da Universidade Estadual de Maringá, Março de 2014.
- GASSENSCHMIDT, U.; JANY, K. D.; TAUSCHER, B.; NIEBERGALL, H. (1995). “*Isolation and characterization of a flocculating protein from Moringa oleífera Lam.*”. *Biochimica et Biophysica Acta* 1243 (3), pp. 477 - 481.
- HUANG, C.; CHEN, S.; PAN, R. J. (2000). “*Optimal condition for modification of Chitosan: a biopolymer for coagulation of colloidal particles*”. *Water Research* 34 (3), pp. 1057 - 2000.
- KARADI, R.V.; GADGE, N. B.; ALAGAWADI, K. R.; SAVADI, R. V. (2006). “*Effect of Moringa oleífera Lam. root-wood on ethylene glycol induced urolithiasis in rats*”. *Journal of Ethnopharmacology*, 105, pp. 306 – 311.
- KAWAMURA, S. (1991). “*Effectiveness of natural polyelectrolytes in water treatment*”. *Journal American Water Works Association* 79 (6), pp. 88-91.
- LOWRY, O. H.; ROSEBROUGH, N. J.; FARR, A. L.; RANDALL, R. J. (1951). *Journal of Biological Chemistry*, 193, pp. 265.
- MADRONA, G. S., BRANCO, I. G., SEOLIN, V. J., ALVES FILHO, B. de A., FAGUNDES-KLEN, M. R., BERGAMASCO, R. (2012). “*Evaluation of extracts of Moringa oleífera Lam seeds obtained with NaCl and their effects on water treatment*”. *Acta Scientiarum Technology*, 34 (3), pp. 289 - 293.
- MADRONA, G. S.; SERPELLONI, G. B.; VIEIRA, A. M. S.; NISHI, L.; CARDOSO, K. C; BERGAMASCO, R. (2010). “*Study of the effect of saline solution on the extraction of the Moringaoleífera seed’s active component for water treatment*”. *Water, Air, & Soil Pollution*,. 211, pp. 409 - 415.
- MUYIBI, S. A.; EVISON L. M. (1995). “*Optimizing Physical Parameters affecting coagulation of turbid water with Moringaoleífera seeds*”. *Water Research* 29 (12), pp. 2689 - 2695.
- NDABIGENGESERE, A.; NARASIAH, K. S. (1998). “*Quality of Water Treated by Coagulation Using Moringa oleífera Seeds*”. *Water Research* 32 (3), pp. 781 - 791.
- NDABIGENGESERE, A.; NARASIAH, K. S.; TALBOT, B. G. (1995). “*Active agents and mechanism of coagulation of turbid waters using Moringa oleífera*”. *Water Research*, 29 (2), pp. 703 - 710.
- OKUDA, T.; BAES, A. U.; NISHIJIMA, W.; OKADA, M. (2001). “*Isolation and characterization of coagulant extracted from Moringaoleífera seed by salt solution*”. *Water Research* 35 (2), pp. 405 - 410.
- OKUDA, T.; BAES, A.U.; NISHIJIMA, W.; OKADA, M. (1999). “*Improvements of extraction method of coagulation active components from Moringa oleífera seed*”. *Water Research* 33 (15), pp. 3373 - 3378.

VIEIRA, A. M. S.; VIEIRA, M. F.; SILVA, G. F.; ARAÚJO, A. A.; FAGUNDES-KLEN, M. R.; VEIT, M. T.; BERGAMASCO, R. (2010). "*Use of Moringa oleifera Seed as a Natural Adsorbent for Wastewater Treatment*". Water, Air, & Soil Pollution, 206, pp. 273 - 281.