

UNIVERSIDAD
DE GRANADA



DEPARTAMENTO DE INGENIERÍA CIVIL
INSTITUTO DEL AGUA

***Contaminación en redes de distribución de agua
potabilizada mediante membranas de ultrafiltración***

—
***Contamination in drinking water distribution network of
water produced using ultrafiltration membrane***

Tesis Doctoral realizada por

Rocio Álvarez Arroyo

Directores de tesis:

Dr. Miguel Ángel Gómez Nieto
Dr. Jorge Ignacio Pérez Pérez

Granada, Junio 2017

Editor: Universidad de Granada. Tesis Doctorales
Autora: Rocío Álvarez Arroyo
ISBN: 978-84-9163-403-4
URI: <http://hdl.handle.net/10481/47937>

Memoria de tesis presentada para optar al grado de Doctor por la Universidad de Granada con
Mención Internacional

Fdo. Miguel Ángel Gómez Nieto

Fdo. Jorge Ignacio Pérez Pérez

Fdo. Rocío Álvarez Arroyo

Granada, junio de 2017

El doctorando / *The doctoral candidate* **Rocío Álvarez Arroyo** y los directores de a tesis /*and the thesis supervisor/s*: **Miguel Ángel Gómez Nieto** y **Jorge Ignacio Pérez Pérez**

Garantizamos, al firmar esta tesis doctoral, que el trabajo ha sido realizado por la doctoranda bajo la dirección de los directores de la tesis y hasta donde nuestro conocimiento alcanza, en la realización del trabajo, se han respetado los derechos de otros autores a ser citados, cuando se han utilizado sus resultados o publicaciones.

/

Guarantee, by signing this doctoral thesis, that the work has been done by the doctoral candidate under the direction of the thesis supervisor/s and, as far as our knowledge reaches, in the performance of the work, the rights of the other authors to be cited (when their results or publications have been used) have been respected.

Lugar y fecha / *Place and date*:

Granada, junio de 2017

Director/es de la tesis / *Thesis supervisor/s*:

Doctorando / *Doctoral candidate*:

Firma / *Signed*

Firma / *Signed*

Dr. Miguel Ángel Gómez Nieto
Catedrático de Universidad
Departamento de Ingeniería Civil
Universidad de Granada

Dr. Jorge Ignacio Pérez Pérez
Profesor Titular de Universidad
Dpto. de Ingeniería de la Construcción y
Proyectos de Ingeniería
Universidad de Granada

Rocío Álvarez Arroyo
Ingeniera Química
Ingeniera Técnica Industrial

A mis padres

AGRADECIMIENTOS

La realización de esta tesis es el resultado del esfuerzo y el apoyo de varias personas, no únicamente el mío propio, y por ello me gustaría expresar mi agradecimiento a ellas.

Primero de todo, a mis directores de tesis: Jorge, del que admiro su visión globalizada de la ingeniería y facilidad para llevarla a la práctica; y especialmente a Miguel Ángel, del que también he aprendido mucho, por guiarme constantemente y por “comprarme la moto” en aquellas ocasiones en las que creí firmemente en algo, además de agradecerle su paternal trato en muchos momentos.

A todos mis compañeros del Departamento de Ingeniería Civil de la Universidad de Granada, sobre todo a mis compis de laboratorio (Juan, Eugenio, Manolo, Fátima, Ángela, Juan Carlos, Elena, Lore...) y en especial a mis “chicas del sótano” (Luzmi y Cris), por hacer más amenas las largas horas de trabajo y los ánimos en la recta final, y a Jaime, por estar siempre dispuesto a resolver mis dudas en el café de las 5:00 p.m.; a Bernabé, por su ayuda como técnico de laboratorio y sus charlas de descansillo; y al personal de limpieza y conserjería (Vane, Jesús...), por su labor y trato familiar. También quisiera agradecer la colaboración del personal del Instituto del Agua, del Centro de Instrumentación Científica y del Parque de las Ciencias de Granada, donde se llevó a cabo gran parte de la experimentación.

Al Dipartimento di Ingegneria Civile e Architettura de la Università degli Studi di Catania, por permitirme realizar allí mi estancia, especialmente a los profesores Paolo Roccaro y Federico Vagliasindi, y a Massi Sgroi, que me facilitó enormemente mi adaptación al centro y siempre tuvo en su mesa un plato de auténtica pasta italiana para mí.

Al Ministerio, por becar este trabajo y mi estancia en el extranjero, porque ello me ha dado la oportunidad de conocer y amar este mundo de la investigación y, además, despertarme la pasión por la docencia. Y fue, precisamente, en un curso de formación para docentes donde tuve la fortuna de conocer al grupo “Futuro de la UGR!”, en el que encontré un gran apoyo en sus inicios y del que me llevo más amigos que compañeros de profesión (#somoslaresistencia). También agradecer a mis recientes compañeros del Departamento de Didáctica de la Matemática de la UGR su recibimiento y ayuda, porque ello me ha permitido compatibilizar la finalización de esta tesis con el desarrollo de mi faceta como docente en este nuevo campo.

No quisiera olvidar mis agradecimientos a otras personas o cosas que, de forma directa o indirecta, las considero un empuje para haber llegado hasta aquí: a mis familiares (abuelos, tíos y primos), por esas comidas en compañía que aligeran la mente (aunque no el cuerpo); a Silver, porque si hubiera una guerra, sé

que estaría en mi trinchera; un guiño a Alexandra Elbakyan, por su filosofía del libre acceso universal al conocimiento científico; al deporte, que siempre libera tensiones; y a mi ciudad, Granada.

A los que ya no están en mi vida, sea de manera involuntaria o por decisión propia, pero que alguna vez formaron parte de ella antes y durante el doctorado, porque sin duda han contribuido a mi ser, hacerme más fuerte y crecer para alcanzar esta meta que hoy es un hecho.

Y por último, a mi familia directa: a mis hermanos, César y Javier, agradecerles las acaloradas discusiones científicas de uno, y los momentos lúdicos (y tan necesarios) del otro, que suelen darse en el bar del tito. A mis padres, Rafi y Paco, no sólo porque a ellos les debo mi vida, sino también mi persona, por enseñarme a ser perseverante para lograr lo que tanto trabajo cuesta, por creer en mí, y por facilitarme todos los quehaceres diarios y los obstáculos mismos de la vida.

A todos, GRACIAS.

ÍNDICE

RESUMEN	2
ABSTRACT	12
1. INTRODUCCIÓN	22
1.1. CALIDAD DE AGUAS DE CONSUMO HUMANO	24
1.1.1. <i>Características organolépticas</i>	24
1.1.2. <i>Problemas de contaminación microbiana</i>	26
1.1.3. <i>Contaminación química</i>	30
1.1.3.1. Contaminantes químicos presentes en el influente	31
1.1.3.2. Contaminación química por sustancias adicionadas/generadas en el tratamiento	34
1.2. POTABILIZACIÓN DE AGUAS	36
1.2.1. <i>Reseña histórica</i>	36
1.2.2. <i>Tratamiento convencional</i>	37
1.2.3. <i>Potabilización con membranas</i>	40
1.2.3.1. Conceptos de la tecnología de membranas	40
1.2.3.2. Tipología de membranas.....	41
1.2.3.3. Potabilización de aguas con membranas	43
1.2.3.4. Ventajas e inconvenientes de los procesos de membrana	45
1.3. REDES DE DISTRIBUCIÓN	48
1.3.1. <i>Tipología de redes</i>	48
1.3.2. <i>Gestión de redes</i>	50
1.3.3. <i>Contaminación de aguas en redes de distribución</i>	52
1.3.3.1. Biopelículas	52
1.3.3.2. Subproductos de desinfección	57
1.3.3.2.1. Formación y tipos de DBPs.....	57
1.3.3.2.2. Factores que influyen en la formación de DBPs.....	59
1.3.3.2.3. Control de la formación de DBPs.....	61
1.3.3.3. Materia orgánica	63
2. OBJETIVOS	66
3. MATERIALES Y MÉTODOS	68

3.1. DESCRIPCIÓN DE LA INSTALACIÓN EXPERIMENTAL.....	68
3.1.1. Sistema de alimentación de agua.....	70
3.1.2. Módulo de Ultrafiltración	71
3.1.3. Pretratamiento de Coagulación-Floculación	72
3.1.4. Pretratamiento de Ozonización	73
3.1.5. Red de distribución de agua potable	74
3.2. DESARROLLO EXPERIMENTAL.....	76
3.2.1. Fases experimentales del estudio	76
3.2.1.1. Fase de estudio evolutivo	76
3.2.1.2. Fases de estudio comparativo	77
3.2.2. Agua de alimentación.....	78
3.2.3. Condiciones operacionales de la planta	79
3.2.4. Muestreo.....	80
3.2.5. Variables y parámetros del sistema	81
3.3. METODOLOGÍA ANALÍTICA	84
3.3.1. Variables de control continuo.....	84
3.3.1.1. Temperatura	84
3.3.1.2. pH.....	84
3.3.1.3. Cloro residual libre	84
3.3.2. Turbidez	85
3.3.3. Materia orgánica natural	85
3.3.3.1. Carbono orgánico total y disuelto.....	85
3.3.3.2. Absorbancia ultravioleta a 254 nm	86
3.3.3.3. Índice SUVA.....	86
3.3.4. Subproductos de desinfección	87
3.3.4.1. Trihalometanos	87
3.3.4.2. Ácidos haloacéticos.....	87
3.3.5. Recuento de colonias a 22°C en muestras de agua	89
3.3.6. Recuento de <i>Escherichia coli</i> en muestras de agua	90
3.3.7. Evaluación de la biopelícula: recuento total de bacterias adheridas a las paredes de la red de distribución.....	91
3.4. TRATAMIENTO DE DATOS Y ANÁLISIS ESTADÍSTICO	91
3.4.1. Herramientas matemáticas y estadísticas	91

3.4.2. Depuración de datos.....	92
4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN.....	96
4.1. ANÁLISIS EVOLUTIVO DE LA RED DE DISTRIBUCIÓN	96
4.1.1. Estudio estadístico previo	96
4.1.2. Análisis estadístico complementario	97
4.1.3. Evolución de las variables de control continuo.....	100
4.1.3.1. Temperatura	100
4.1.3.2. pH.....	102
4.1.3.3. Cloro residual libre.....	105
4.1.4. Análisis para el control del proceso	107
4.1.4.1. Turbidez	107
4.1.4.2. Materia orgánica natural	112
4.1.4.2.1. Carbono orgánico total y disuelto	112
4.1.4.2.2. Absorbancia ultravioleta a 254 nm	118
4.1.4.2.3. Índice SUVA	123
4.1.5. Subproductos de desinfección: trihalometanos.....	131
4.1.6. Parámetros microbiológicos.....	138
4.1.6.1. Recuento de colonias a 22 °C.....	138
4.1.6.2. Recuento de Escherichia coli.....	143
4.1.7. Análisis de la evolución de la biopelícula.....	145
4.2. ANÁLISIS DE LA INFLUENCIA DEL TRATAMIENTO EN LA VARIACIÓN DE LA CALIDAD DEL AGUA EN LA RED DE DISTRIBUCIÓN	153
4.2.1. Estudio estadístico previo	154
4.2.2. Análisis estadístico complementario	156
4.2.3. Variables de medición continua.....	164
4.2.3.1. Temperatura del agua.....	164
4.2.3.2. pH.....	167
4.2.3.3. Cloro residual libre	171
4.2.4. Parámetros de control del proceso.....	174
4.2.4.1. Turbidez	174
4.2.4.2. Materia orgánica natural	180
4.2.4.2.1. Carbono orgánico total y disuelto	181
4.2.4.2.2. Absorbancia ultravioleta a 254 nm	187
4.2.4.2.3. Índice SUVA	193

4.2.5. Parámetros microbiológicos.....	202
4.2.5.1. Recuento de colonias a 22 °C.....	202
4.2.5.2. Recuento de Escherichia coli.....	206
4.3. GENERACIÓN DE SUBPRODUCTOS DE DESINFECCIÓN EN LA RED DE DISTRIBUCIÓN: EFECTO DEL TRATAMIENTO.....	208
4.4. ANÁLISIS DE LA INFLUENCIA DEL TRATAMIENTO EN EL ENSUCIAMIENTO DE LA RED DE DISTRIBUCIÓN: EVALUACIÓN DE LA BIOPELÍCULA.....	215
4.4.1. Análisis cualitativo del ensuciamiento en la red.....	215
4.4.2. Análisis cuantitativo del ensuciamiento en la red.....	221
5. CONCLUSIONES / CONCLUSIONS	226
6. LÍNEAS FUTURAS DE INVESTIGACIÓN	230
7. APORTACIONES CIENTÍFICAS	232
7.1. PUBLICACIONES EN REVISTAS.....	232
7.2. EVENTOS DE DIFUSIÓN CIENTÍFICA.....	232
8. REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	234
9. ANEXOS	266
9.1. ÍNDICE DE FIGURAS.....	266
9.2. ÍNDICE DE TABLAS.....	270
9.3. LISTA DE ABREVIATURAS	273

RESUMEN

RESUMEN

La calidad del agua de consumo humano depende de la calidad del recurso hídrico, del tipo de tratamiento aplicado para su potabilización y de las alteraciones que pueda sufrir en la distribución. Esta calidad está regulada para garantizar la seguridad de los consumidores, ya que las enfermedades hídricas pueden representar una importante amenaza para la salud humana, siendo éstas el origen del 80% de todas las enfermedades en los países en vías de desarrollo (OMS, 2006).

Los estándares para el agua de consumo humano en Europa se marcan en la Directiva 98/83/CE y la Directiva (UE) 2015/1787, por la que se modifican los anexos II y III de la anterior. Esto se transpuso al marco legislativo español mediante el RD 140/2003, el cual ha sido modificado por el RD 314/2016 en lo que a sustancias radiactivas se refiere.

El agua, una vez potabilizada en las plantas de tratamiento, se convierte en un producto perecedero y vulnerable a la contaminación. Existen diversos motivos por los cuales puede producirse dicha contaminación a lo largo de una red de distribución de agua potable (RDAP) como, por ejemplo, la corrosión y liberación de partículas causada por el deterioro de los sistemas de almacenamiento y distribución del agua (Sousa *et al.*, 2010; Robertson *et al.*, 2003; Bucheli-Witschel *et al.*, 2012; Peng y Korshin, 2011); los acúmulos de suciedad en el interior de éstos y el crecimiento bacteriano derivado del contenido en materia orgánica del agua; (Gauthier *et al.*, 1999; Liu *et al.*, 2002); la formación de biopelículas como consecuencia de la presencia de microorganismos en el agua (Liu *et al.*, 2013; EPA, 2002; Wingender y Flemming, 2011; Farkas *et al.*, 2013); o la aparición de subproductos de desinfección (DBPs) generados por la reacción de la materia orgánica con los agentes de desinfección (Hua *et al.*, 2015; Villanueva *et al.*, 2003; Singer, 1994).

La tecnología de membranas tiene diversas aplicaciones, pero entre las más destacadas se encuentra el tratamiento del agua, surgiendo además como una buena alternativa a la potabilización convencional (Jacangelo, 2004). Una membrana es una película delgada que actúa de barrera física, permitiendo la retención de algunos de los componentes de un fluido y el paso de otros, realizando una separación selectiva (Madaeni, 1999). La implementación de la tecnología de membranas está en crecimiento por sus numerosas ventajas, como ser modulares y compactas, de fácil automatización, permiten realizar una desinfección física, etc.; pero sin olvidar sus inconvenientes principales: el atascamiento de la membrana (oclusión y ensuciamiento) y su baja eficiencia en retención de materia orgánica disuelta (Rojas *et al.*, 2008; Y. Zhang *et al.*, 2015; Rojas-Serrano *et al.*, 2015a). Existen diversas clasificaciones de membranas según se atiende al mecanismo de separación, tamaño de poro, configuración geométrica, naturaleza del material, estructura o morfología, aunque el tamaño de poro es el parámetro descriptivo de mayor interés en potabilización. En

este sentido, son las membranas de ultrafiltración (UF) las que mayor aplicación tienen en potabilización del agua. Sin embargo, su baja retención en materia orgánica disuelta obliga a la implantación de tratamientos previos a la UF que mejoren los rendimientos, entre los que destacan la ozonización (O₃) o la coagulación-floculación (CF) (Rojas-Serrano *et al.*, 2016; Rojas *et al.*, 2011).

Este trabajo de investigación nace a instancia de conocer la contaminación que sufre el agua tras su paso por la RDAP en el caso de que haya sido potabilizada mediante membranas UF. De aquí surgen dos objetivos principales: i) conocer y comparar la evolución de la calidad del agua de consumo humano en la RDAP en función del tratamiento aplicado para su potabilización mediante membranas de UF, como único proceso o asociado a pretratamientos (O₃ o CF) y ii) evaluar el ensuciamiento sufrido por la propia RDAP a lo largo del tiempo.

Para dar respuesta a los objetivos planteados, se contó con una instalación experimental situada en las instalaciones del Parque de las Ciencias de la ciudad de Granada, junto a la llamada Acequia Gorda por la que discurre el agua procedente del embalse de Canales, río Genil. Esta instalación disponía de un sistema de captación de agua, tanto de la acequia como de un tanque empleado para la preparación de agua sintética, y contaba con los siguientes módulos de tratamiento:

- *Módulo de ultrafiltración (UF)*: compuesto principalmente por una membrana de UF de fluoruro de polivinilideno arrollada en espiral (tamaño de poro de 0,03 μm , tolerancia al cloro de 2000 mg/L y presión transmembrana de $\pm 0,7$ bar) aireada en continuo, capaz de producir 2 m³/h de permeado, y con el equipamiento necesario para realizar contralavados periódicos cada 20 minutos; un sistema de registro de datos y sondas de temperatura y presión transmembrana.
- *Pretratamiento de coagulación-floculación (CF)*: compuesto por un tanque agitado para almacenar el coagulante (FeCl₃), bomba dosificadora que lo aporta a un mezclador estático en línea (50 mg FeCl₃ /L; Rojas-Serrano *et al.*, 2015c), y un floculador hidráulico formado por un sistema de tuberías y válvulas (PVC, $\varnothing = 50$ mm).
- *Pretratamiento de ozonización (O₃)*: formado por un ozonizador para la generación del O₃ (6 L/min) a partir de O₂, dispositivo Venturi para inyección en línea del gas, torre de contacto, línea de evacuación del gas con neutralización del ozono residual con Na₂SO₃ y sistema de control en continuo del O₃ en las corrientes gaseosas.

- *Sistema de post-cloración y red de distribución experimental (RDE)*: el agua permeada por la membrana de UF pasaba a un tanque donde el agua era clorada (NaClO, 5%) mediante un sistema de gestión de cloro (nivel de cloro residual libre fijado en 0,4 mgCl₂/L) y se mantenía en continua recirculación por una RDE conformada por 300 m. de tubería (polietileno, Ø = 14 mm) a una velocidad de 1 m/s.

En base a los objetivos marcados, la experimentación se planteó en dos fases:

- *Estudio evolutivo (fase 0)*: donde durante 60 semanas (14 meses) el agua tratada circuló por una única red de distribución (RDE 1), probando consecutivamente los distintos tratamientos propuestos y analizando los parámetros establecidos como indicadores de la calidad del agua potable a lo largo de todo el periodo.
- *Estudio comparativo (fases 1, 2 y 3)*: en cada una de las fases se operó con un tratamiento distinto (CF+UF, O₃+UF y UF) durante 24, 31 y 19 semanas respectivamente, partiendo siempre de una membrana de UF nueva y una RDE nueva en cada fase (RDE1, RDE2 y RDE3), empleando agua de alimentación sintética, mediante la adición de materia orgánica natural (MON) para que las condiciones iniciales fueran constantes y los resultados comparables entre sí.

En todas las fases experimentales, para analizar la calidad del agua potable, se midieron en continuo (cada minuto) la temperatura del agua, el pH y el cloro residual libre (CRL). También se tomaron muestras diarias del agua permeada por la membrana (influyente de la RDE, INF) y del agua potable clorada (efluente de la RDE, EF), en las cuales se analizaron: turbidez, carbono orgánico total y disuelto (COT y COD), absorbancia ultravioleta a 254 nm (UV₂₅₄), recuento de colonias a 22°C (RC₂₂), *Escherichia coli* (*E. coli*), trihalometanos (THMs) y ácidos haloacéticos (AHAs). Además, se calcularon otros parámetros a partir de estos como el índice SUVA, el incremento experimentado por los parámetros en la RDE (ΔX) o el porcentaje de eliminación (%E_T). Por otro lado, para evaluar el ensuciamiento de la RDE y la formación de biopelícula en su interior, se tomó mensualmente un fragmento de tubería que fue inspeccionado mediante microscopía electrónica de barrido (SEM), haciendo un recuento visual de las bacterias adheridas a la superficie (RBA).

Todos los datos obtenidos fueron tratados con las herramientas matemáticas y estadísticas pertinentes en cada caso: Microsoft® Office Excel 2010, para cálculos directos y representaciones gráficas; IBM® SPSS® Statistics 22.0, para descriptivos estadísticos, análisis de varianzas (ANOVA) y análisis de correlaciones de Pearson; y Canoco for Windows 4.5, para los análisis de redundancia (RDA).

Durante el estudio evolutivo el CRL del agua permaneció constante en el tiempo ($0,48 \pm 0,11$ mg/L), aunque hubo algunas fluctuaciones puntuales provocadas por paradas técnicas, una limpieza química de la red y el efecto del ozono residual que, por su poder oxidante, dificultaba la regulación del CRL mediante el sistema de gestión de cloro. Igualmente constante en el tiempo se mantuvo el pH de forma general, con un valor medio de $7,73 \pm 0,64$, aunque el efecto acidificante del coagulante hizo que durante la etapa con dosificación de FeCl_3 la tendencia del pH fuera descendente. La temperatura del agua en la RDE varió en el tiempo, presentando una correspondencia muy estrecha con las variaciones de la temperatura ambiental. Esta relación fue más acentuada en la época estival debido a las condiciones de diseño (volúmenes de acumulación de agua relativamente pequeños y RDE a la intemperie), y por ello se abarcó un amplio rango de temperaturas entre 7 y 34°C.

La turbidez del agua potable fue en aumento con el transcurso del tiempo, determinada en gran parte por la turbidez del influente, cuya tendencia fue paralela, así como por el desarrollo progresivo de la biopelícula. Ello produjo un enturbiamiento medio dentro de la RDE del 24%, siendo la etapa de O_3 +UF en la que este incremento fue significativamente mayor debido al O_3 residual en la red, que facilitó el desprendimiento de la biopelícula (Videla *et al.*, 1995) y la fragmentación de la materia orgánica (Galapate *et al.*, 2001), lo que confirió una mayor turbidez al agua. A pesar de esta tendencia al alza, la turbidez del agua potable nunca sobrepasó las 5 UNT fijadas como límite para aguas de consumo humano por la legislación.

La materia orgánica fue en su gran mayoría disuelta ($\text{COT} \approx \text{COD}$), esperable por la baja eficiencia de la UF en retención de COD. Aunque la evolución temporal del COD pareció muy fluctuante, obviando la puesta a punto del tratamiento de CF y otros problemas de parada/arranque de la planta, por lo general su evolución tuvo una tendencia ascendente motivada por la acumulación de materia orgánica en la red. En la última etapa (O_3 +UF), el ΔCOD en la RDE fue significativamente más alto (90% vs. 17-9%), ya que el ozono residual fragmentó la materia orgánica acumulada sobre la superficie de la tubería, aumentando más el contenido en materia disuelta. Puede decirse que la calidad del agua potable fue media-baja ($5,89 \pm 3,22$ mg COT/L) si se tienen en cuenta el valor de referencia de 7 mg COT/L señalado por el Ministerio de Sanidad y Consumo (2005) para calificar un agua de no apta para el consumo humano.

El comportamiento de la UV_{254} , parámetro indicador de la composición aromática de la materia orgánica (Chin *et al.*, 1994; Metsämuuronen *et al.*, 2013), estuvo fuertemente asociado al comportamiento del COD, mostrando un alto paralelismo evolutivo entre ambos. En realidad el débil incremento de la UV_{254} en la RDE no se debió tanto al cambio del carácter aromático de la materia orgánica natural (MON), sino más

bien a la relación con la concentración de COD (Huang *et al.*, 2016^a; Chow *et al.*, 2009). No obstante, hubo factores que pudieron causar cierta modificación de la estructura de la MON, como la biopelícula generada en los meses de verano, que provocó un aumento de la UV₂₅₄ (Ikonen *et al.*, 2013); o el O₃ residual, que pudo fragmentar la MON generando compuestos de menor peso molecular (Galapate *et al.*, 2001; Swietlik *et al.*, 2004; Hua y Reckhow, 2013; Zhou *et al.*, 2015), reduciendo así la medida de UV₂₅₄.

Respecto a la evolución temporal del índice SUVA, fue bastante similar a la presentada por los parámetros UV₂₅₄ y COD. Por tanto, sólo cabe destacar su bajo valor en el agua potable ($0,75 \pm 0,50$ L/mg-m < 2 L/mg-m), según los valores guía de James K. Edzwald ampliamente usados por la comunidad científica, lo que implicaría un bajo riesgo de generación de DBPs. A pesar de estos valores, se encontraron concentraciones de THMs significativamente mayores en la etapa de O₃+UF, cuando fue ésta la que presentó los valores de SUVA significativamente más bajos. Esto demostró que el SUVA no siempre es un buen predictor de generación de DBPs, como señalan Weishaar *et al.* (2003), quienes atribuyen esta singularidad a la heterogeneidad del COD y sus complejos mecanismos de reacción con el desinfectante.

El único THM detectado en el agua potable fue el cloroformo, el más presente en aguas cloradas (Kumari y Gupta, 2015; Zhang *et al.*, 2010; Teksoy *et al.*, 2008; Roccaro *et al.*, 2008; Sérodes *et al.*, 2003; Williams *et al.*, 1997), y su concentración fue cada vez mayor a lo largo del tiempo. Esta tendencia no es achacable al tiempo en sí, sino a la fuerte influencia que tuvo el tipo de tratamiento sobre la cantidad de cloroformo generado. La calidad del agua potable a este respecto fue alta o muy alta, pero a finales del tiempo de ensayo se alcanzaron concentraciones de cloroformo más elevadas, incluso llegando a sobrepasar el límite legal (100 µg/L) en algunas ocasiones, pero como consecuencia de la etapa de O₃+UF, que coincidió con el final de la fase.

El RC₂₂ fue prácticamente indetectable hasta la semana 20 de operación, coincidiendo con el desarrollo de biopelícula, que sin duda fue la causa de la aparición de recuentos positivos pero, no obstante, poco significativos (el mayor recuento del estudio fue inferior a 9 ufc/mL, lo que dista mucho de las 100 ufc/mL a la salida de la ETAP fijadas por el RD 140/2003, y más aún de la recomendación del Ministerio de Sanidad y Consumo (2005) de 10000 ufc/mL como máximo para su potabilidad). También cumplió la normativa (0 ufc/100mL) en lo que respecta a *E. coli*, con todos sus recuentos nulos durante la fase evolutiva. Por tanto, la calidad microbiológica del agua potable fue excelente, debido en gran parte a la alta eficacia de la tecnología de membranas en retención de bacterias (Gómez *et al.*, 2006; Prest *et al.*, 2016), aunque fuera esperable encontrar bacterias en la red puesto que la zona de post-filtración es susceptible a la contaminación por microorganismos de distinta procedencia.

Depósitos de materia orgánica y bacterias adheridas fueron cubriendo progresiva y exponencialmente la superficie de la tubería de la RDE, pasando por todos los estados propios de la formación de una biopelícula descritos por Percival *et al.* (2010), siendo ésta ya evidente e irreversible tras 7 meses de operación. Después de otro mes más, el recuento visual con SEM de las bacterias adheridas ya era imposible por la cantidad de suciedad y sustancias poliméricas extracelulares (EPS) acumuladas, por lo que se decidió llevar a cabo una limpieza química de la red (1000 mg NaClO/L). A partir de ese momento, los depósitos volvieron a aparecer en la conducción, pero el recuento de bacterias adheridas fue muy escaso a causa del efecto biocida del ozono residual a pesar de que favorezca el recrecimiento bacteriano al degradar la materia haciéndola más asimilable por los microorganismos (Escobar y Randall, 2001a; Escobar y Randall, 2001b; van der Kooij *et al.*, 1989). Esto vuelve a plantear la necesidad del estudio comparativo para constatar si la generación de biopelícula estuvo condicionada únicamente por el tratamiento de potabilización, o fue cuestión del tiempo transcurrido.

A la vista de los resultados de la fase evolutiva y teniendo en cuenta que los análisis RDA pusieron de manifiesto que el “tratamiento” fue la variable con mayor influencia en el sistema, se planteó la necesidad de un segundo estudio donde se evaluara dicha influencia, partiendo en este caso de unas mismas condiciones para el agua a tratar mediante las instalaciones experimentales.

Respecto a las variables de medición continua, los resultados del estudio comparativo revelaron nuevamente el correcto funcionamiento del sistema de gestión de cloro en todas las fases, manteniendo el nivel de CRL muy estable en torno al punto de consigna ($0,44 \pm 0,07$ mgCl₂/L). Sin embargo, el pH sí se vio más afectado por el tratamiento, presentando comportamientos distintos, con un descenso paulatino durante la CF+UF por la adición de Fe (III) al agua durante el tratamiento (Rojas-Serrano *et al.*, 2015c; Siéliéchi *et al.*, 2008; Willhite *et al.*, 2013); un pH muy estable durante la fase de UF; y más irregular en la fase de O₃+UF a consecuencia del O₃ residual, que inicialmente provocó un descenso de pH (Huang *et al.*, 2005), y posteriormente un aumento. Al igual que en la fase evolutiva, la temperatura del agua estuvo muy marcada por la influencia de la temperatura ambiental, alcanzando valores de entre 9 y 34°C según la temporada del año en la que se desarrollara la fase experimental.

El enturbiamiento del agua en la RDE fue generalizado, con un incremento medio de $0,20 \pm 0,49$ UNT, pero con diferencias estadísticamente significativas entre algunas fases. La calidad del efluente estuvo en parte marcada por su correlación con la turbidez del influente ($r_{\text{TurbINF-TurbEF}} = 0,423$). Esto hizo que en la fase de UF, la turbidez del efluente presentara una tendencia ascendente en el tiempo, ya que así evolucionó el influente como consecuencia de la alteración progresiva de la membrana (Rojas-Serrano *et al.*, 2015b; Rojas-

Serrano *et al.*, 2016). Sin embargo, en la fase de O₃+UF la tendencia fue descendente en ambas corrientes, ya que el ozono del tratamiento fue oxidando y fragmentando la materia orgánica, reduciendo con ello la turbidez. En la fase de CF+UF, además de la influencia del influente, la turbidez del efluente también estuvo fuertemente condicionada por el desarrollo de la biopelícula (favorecida a su vez por la presencia de coagulante residual en la RDE y las altas temperaturas), lo que provocó un aumento progresivo y más marcado de la turbidez del agua potable que en el resto de fases donde no surgieron desarrollos biológicos (al menos no de manera tan evidente). De nuevo, al igual que en la fase evolutiva, la turbidez nunca excedió los límites legales (5 UNT).

El contenido en COD del agua potable estuvo marcado fuertemente por la correlación con la calidad del agua tratada ($r_{\text{CODEF-CODINF}} = 0,721$), la cual dependió de la eficacia del tratamiento en eliminación de materia disuelta ($\eta_{\text{UF}}=16\% < \eta_{\text{O}_3+\text{UF}}=29\% < \eta_{\text{CF+UF}}=42\%$), y experimentando un ΔCOD medio global del 8% a su paso por la RDE. Pero la excepción nuevamente fue la fase de O₃+UF, donde la tendencia de COD en la RDE fue variable según el momento, pero ligeramente descendente en general (ΔCOD medio de $-0,30 \pm 2,09$ mg/L) debido a la oxidación de la MON por parte del ozono residual. Esto difiere mucho del comportamiento mostrado en la fase evolutiva durante este mismo tratamiento (donde el ΔCOD fue positivo y cuantioso, 90%), lo que indica que en aquel caso el ensuciamiento estuvo marcado por lo sucedido en etapas anteriores y no únicamente por el tratamiento. Igualmente, el agua potable producida en el estudio comparativo tuvo una calidad baja, con un valor medio de $5,43 \pm 2,45$ mg COD/L y sobrepasando los 7 mg COT/L recomendados.

Una filtración por membrana no modifica la composición química de la materia orgánica, ni por tanto su UV₂₅₄, pero por su relación directa con COD, ésta puede sufrir alteraciones en su medida. Cosa distinta es el empleo de pretratamientos, donde el coagulante y el ozono sí produjeron una reducción de UV₂₅₄ en el permeado, tanto por eliminación de COD como por reducción de la fracción de mayor peso molecular ($\eta_{\text{UF}}=28\% < \eta_{\text{O}_3+\text{UF}}=54\% < \eta_{\text{CF+UF}}=75\%$). Y esta calidad del agua tratada se trasladó de forma casi paralela a la calidad del agua potable, con una correlación entre la absorbancia de influente y efluente de 0,895, y una calidad media-baja de $6,54 \pm 4,76$ m⁻¹. En líneas generales, la variación de UV₂₅₄ en la RDE fue mínima (entre $-0,89$ y $0,39$ m⁻¹ según la fase) y la tendencia evolutiva fue prácticamente constante, lo que hace predecir la escasa alteración de este parámetro en una RDAP, como así apuntan Huang *et al.* (2016).

El índice SUVA estuvo explicado por el comportamiento de UV₂₅₄ y COD, aunque en mayor medida por el primero que por el segundo. Al igual que sucedió en la fase evolutiva, los valores de este índice fueron bajos (Edzwald y Van Benschoten, 1990; Edzwald *et al.*, 1985), aunque no por ello tuvo repercusión directa

sobre una menor presencia de DBPs en el agua, quedando todas las correlaciones SUVA-DBPs por debajo de 0,314. Además, la fase de mayor SUVA (UF) no se correspondió con la de mayor cantidad de DBPs.

Reiteradamente, el único THM detectado fue el cloroformo y con diferencias estadísticamente significativas entre fases. En el caso de los AHAs se detectaron las 9 especies existentes, aunque el ácido dicloroacético en mucha mayor proporción, tal que así: DCAA (86,82%) > MCAA (4,19%) > BCAA (2,75%) > TCAA (2,02%) > TBAA (1,01%) > MBAA (0,94%) > DBAA (0,90%) > BDCAA (0,87%) > CDBAA (0,49%). Las diferencias entre fases fueron algo menores, pero la influencia del tratamiento sobre la concentración de DBPs en el agua potable quedó patente, como apoya la fuerte correlación mostrada por el RDA del sistema. La fase de menor concentración de DBPs fue la de CF+UF, hecho esperable puesto que el tratamiento promueve una mayor eliminación de materia hidrófoba y húmica, precursora de su formación (Croue *et al.*, 1993; Ivancev-Tumbas *et al.*, 1999). Sin embargo, la fase de O₃+UF fue la que presentó un agua que no podría considerarse apta para consumo humano, ya que superó en numerosos momentos los 100 µg/L permitidos para ΣTHMs y, en el caso de los AHAs también superó en algunas ocasiones los valores de referencia advertidos por la Organización Mundial de la Salud de 20, 50 y 200 µg/L para el MCAA, DCAA y TCAA respectivamente. A pesar de que la literatura científica habla de que el uso de ozono reduce la formación de THMs en aguas cloradas por el efecto que tiene el O₃ sobre la especiación de los DBPs (Gallard y Von Gunten, 2002; Wert y Rosario-Ortiz, 2011), este comportamiento puede atribuirse a la combinación del ozono y el cloro en la RDE, que según Zhou *et al.* (2015), aumenta la formación de DBPs en comparación con la cloración sin ozonización.

Respecto a los parámetros microbiológicos del agua potable, sucedió lo mismo que en la fase evolutiva, es decir, la calidad fue excelente tanto en lo referente al RC₂₂ como en *E. coli*, independientemente del tratamiento. Y los bajos recuentos positivos que se dieron guardaron correlación con la aparición de la biopelícula.

Por último, respecto al ensuciamiento de la red de distribución evaluado de forma cualitativa y cuantitativa, la influencia del tratamiento fue evidente. Mientras que en las fases de UF y O₃+UF no hubo generación de biopelícula como tal, en el caso de la CF+UF sí que se desarrolló y hasta un estado maduro e irreversible. Esto tuvo justificación en la capacidad biocida del O₃ que, al quedar de forma residual en la RDE, frenó el crecimiento bacteriano a pesar de que ese elemento hace más asimilable la materia orgánica para los microorganismos. En el caso de la fase de UF, no hubo presencia de ningún factor externo que ayudara a depositar la materia orgánica disuelta sobre la superficie de la tubería. Sin embargo, durante la fase de CF+UF, la presencia de hierro residual en la RDE ayudó a la deposición de MON sobre la conducción, así como el

aumento de RC_{22} en el agua (en parte a su vez por la temperatura), contribuyendo al crecimiento exponencial del RBA.

A la vista de todos los resultados de esta investigación se concluye que el empleo de membranas de UF con o sin pre-ozonización no garantizó un suministro seguro del agua potable en cuanto a contaminación por DBPs, mientras que la combinación CF+UF sólo planteó problemas de contaminación por biopelícula. Por tanto, para garantizar la sostenibilidad y salubridad del sistema de suministro de agua se plantea el uso de CF+UF como tratamiento más eficiente, siempre y cuando periódicamente se lleven a cabo limpiezas de choque de la red de distribución que merme la proliferación bacteriana.

ABSTRACT

ABSTRACT

The quality of water destined for human consumption depends on the quality of the natural water resource, the type of treatment applied in order to make it drinkable, and any alterations the water may undergo on its journey through the supply system. This quality is regulated in order to ensure consumer safety, due to the fact that water-borne diseases represent both a significant threat to human health and are the origin of 80% of all diseases registered in developing countries (WHO, 2006).

The standards established for drinking water are set out in Directive 98/83/EC and Directive (EU) 2015/1787, in which Appendixes II and III of the previous directive are modified. This directive was incorporated into the Spanish legislative framework via RD (Royal Decree) 140/2003, which has been modified by RD 314/2016 insofar as radioactive substances are concerned.

Water, once it has been purified in treatment plants, becomes a perishable product that is vulnerable to pollution. This pollution may occur for a number of reasons and at any point of the drinking water supply network (DWSN), for example, via corrosion and the liberation of particles caused by deterioration of the water storage and distribution systems (Sousa *et al.*, 2010; Robertson *et al.*, 2003; Bucheli-Witschel *et al.*, 2012; Peng and Korshin, 2011), the accumulation of dirt inside these systems and bacterial growth that arises from organic matter contained in the water (Gauthier *et al.*, 1999; Liu *et al.*, 2002), the formation of biofilms as a result of the presence of microorganisms in the water (Liu *et al.*, 2013; EPA, 2002; Wingender and Flemming, 2011; Farkas *et al.*, 2013), or the appearance of disinfection by-products (DBPs) caused by the chemical reaction between organic matter and chemical treatment agents used during the disinfection process (Hua *et al.*, 2015; Villanueva *et al.*, 2003; Singer, 1994).

Membrane technology has numerous applications, one of the most notable of these being water purification, where it provides a viable alternative to conventional methods (Jacangelo, 2004). A membrane is a thin film that acts as a physical barrier and allows some components of a fluid to be retained while allowing others to pass through, thereby effectively carrying out a process of selective separation (Madaeni, 1999). The use of membrane technology is increasing as a result of its many advantages, among which we can highlight the fact that membranes are modular and compact, easy to automate, and allow for physical disinfection. However, we should also bear in mind the system's inconveniences, which include obstruction of the membrane (occlusion and fouling) and low efficiency in terms of the retention of dissolved organic matter (Rojas *et al.*, 2008; Y. Zhang *et al.*, 2015; Rojas-Serrano *et al.*, 2015a). Membranes are classified according to separation mechanism, pore size, geometrical configuration, nature of the material used, structure and morphology, though pore size is the descriptive parameter that is of most interest to us as far

as treatment is concerned. In this respect, ultrafiltration (UF) membranes are the type most commonly used in water treatment systems. However, the poor level of retention of dissolved organic matter shown by these membranes means that additional treatments are required prior to the UF system in order to improve results. These prior treatments include ozonation (O_3) and coagulation-flocculation (CF) (Rojas-Serrano *et al.*, 2016; Rojas *et al.*, 2011).

The purpose of this research project is to increase our knowledge regarding the pollution that water may be subjected to following its passage through the DWSN in the event it has been treated using UF membranes to make it drinkable. Two emerge main objectives arise: i) to gauge and compare the evolution of the quality of water destined for human consumption in the DWSN as a function of the treatment used to purify it using UF membranes, either as a stand-alone process or as part of a process that includes pre-treatments (O_3 or CF), and ii) to evaluate the level of fouling that the DWSN itself suffers over time.

In an effort to provide answers to the proposed objectives an experimental facility in the Granada Science Park was made available, next to what is known as La Acequia Gorda (acequia – irrigation channel), through which water flows from the Canales reservoir on the Genil River. This facility features a system for collecting water from the 'acequia' and from a tank used for the preparation of synthetic water in addition to the following treatment modules:

- *Ultrafiltration (UF) module*: This is composed principally of a spiral polyvinylidene fluoride membrane (pore size $0.03 \mu\text{m}$, chlorine tolerance 2000 mg/L and transmembrane pressure $\pm 0.7 \text{ bar}$) that is continually aerated and capable of producing $2 \text{ m}^3/\text{h}$ of permeation and equipped to carry out periodical backwashes every 20 minutes. The module also features a data recording system as well as transmembrane pressure and temperature probes.
- *Coagulation-flocculation (CF) pre-treatment*: This consists of a stirred tank for storing the coagulant (FeCl_3), a dosing pump that supplies the coagulant to a static mixer ($50 \text{ mg FeCl}_3 /\text{L}$; Rojas-Serrano *et al.*, 2015c) and a hydraulic flocculator consisting of a system of conduits and valves (PVC, $\varnothing = 50 \text{ mm}$).
- *Ozonation (O_3) pre-treatment*: This consists of an ozoniser for the generation of O_3 (6 L/min) from O_2 , a Venturi device for in-line gas injection, a contact tower, a gas evacuation line with neutralisation of residual ozone using Na_2SO_3 and a continuous control system for O_3 in the gaseous currents.

- *Post-chlorination system and experimental distribution network (EDN)*: The water filtered by the UF membrane was fed to a tank, where it was chlorinated (NaClO, 5%) using a chlorine management system (level of free residual chlorine set at 0.4 mgCl₂/L) and maintained in continuous circulation via an EDN consisting of 300 m of conduits (polyethylene, $\varnothing = 14$ mm) at a rate of 1 m/s.

Bearing in mind the establish objectives, the experimentation was approached in two phases:

- *Evolutionary study* (phase 0): Over a period of 60 weeks (14 months) the treated water circulated through a single experimental distribution network (EDN 1) while consecutive tests were carried out on the various proposed treatments while established parameters such as drinking water quality indicators were analysed.
- *Comparative study* (phases 1, 2 and 3): In each of the phases a different treatment was applied (CF+UF, O₃+UF and UF) over a period of 24, 31 and 19 weeks respectively, beginning with a new UF and EDN for each phase (EDN1, EDN2 and EDN3) and using synthetic feedwater obtained via the addition of natural organic matter (NOM) in order that the initial conditions would be consistent and the results comparable with each other.

In all phases of the experiment the quality of the drinking water was analysed via continual measurement (every minute) of the water temperature, the pH and the free residual chlorine (FRC). In addition, daily samples of water filtered by the membrane (influent from the EDN, INF) and chlorinated drinking water (effluent from the EDN, EF) were taken and analysed for turbidity, total and dissolved organic carbon (TOC and DOC), ultraviolet absorbance at 254 nm (UV₂₅₄), total bacterial count at 22°C (TBC₂₂), *Escherichia coli* (*E. coli*), trihalomethanes (THMs) and haloacetic acids (HAAs). On the basis of these measurements, other parameters were calculated, including the SUVA index, the increase experienced by the parameters in the EDN (ΔX) and the elimination percentage (%E_T). In order to evaluate the fouling of the EDN and the formation of biofilm in the interior, a fragment of the pipeline was inspected monthly using a scanning electron microscope (SEM) and carrying out a visual count of the bacteria adhered to the surface (BAS).

All the data obtained was treated using the pertinent mathematical and statistical tools in each case: Microsoft® Office Excel 2010 for direct calculations and graphical representations, IBM® SPSS® Statistics 22.0 for descriptive statistics, analysis of variance (ANOVA) and analysis of Pearson correlations, and Canoco for Windows 4.5 for redundancy analysis (RDA).

During the evolutionary study the FRC of the water remained constant over time (0.48 ± 0.11 mg/L) though there were some isolated fluctuations caused by technical breaks, chemical cleaning of the network and the effect of residual ozone which, due to its oxidising potential, made it difficult to regulate the FRC using the chlorine management system. In general terms the pH also remained constant over time, with an average value of 7.73 ± 0.64 , though the acidifying effect of the coagulant meant that the pH tended to decrease during the FeCl_3 dosage stage. The temperature of the water in the EDN varied over time and showed very close correlation with the variations in the ambient temperature. This correspondence was most marked during the summer months due to the design conditions (relatively small accumulated water volumes and EDN exposed to the elements) and, as a result, a wide range of temperatures (7 to 34°C) was considered.

The turbidity of the drinking water increased over time, largely due to the turbidity of the influent water, which displayed a parallel trend, though also due to the progressive development of the biofilm. The average turbidity in the EDN was 24%, the O_3 +UF stage showing a notably greater increase due to the residual O_3 in the network, which facilitated detachment of the biofilm (Videla *et al.*, 1995) and fragmentation of the organic matter (Galapate *et al.*, 2001) which lent the water greater turbidity. Despite this tendency to increase, the turbidity of the drinking water never exceeded the 5 NTU legal limit established for water destined for human consumption.

The greater part of the organic matter was dissolved ($\text{TOC} \approx \text{DOC}$), as was expected, given the low efficiency of UF membranes in retention of DOC. While the evolution of the DOC over time appeared to fluctuate considerably, leaving aside the fine tuning of the CF treatment and other problems relating to stopping/starting-up the plant, in general the evolution showed a tendency to increase, due to the accumulation of organic matter in the network. In the final stage (O_3 +UF) the ΔDOC in the EDN was significantly higher (90% vs. 17-9%) as the residual ozone fragmented the organic matter accumulated on the surface of the conduits, thereby increasing the amount of dissolved matter. The quality of the drinking water could be said to be medium-low (5.89 ± 3.22 mg TOC/L) if one bears in mind the reference value of 7 mg TOC/L stipulated by the Ministry for Health and Consumer Affairs (2005) to classify water not apt for human consumption.

The behaviour of the UV_{254} , the parameter that indicates the aromatic composition of the organic matter (Chin *et al.*, 1994, Metsämuuronen *et al.*, 2013), was strongly associated with the behaviour of the DOC and a high level of evolutionary parallelism was displayed between the two. In reality, the weak increase of UV_{254} in the EDN was not so much due to the change in aromatic character of the NOM but rather to the relationship with the concentration of DOC (Huang *et al.*, 2016^a; Chow *et al.*, 2009). There were, however,

factors that could have caused some modification of the NOM structure, such as the biofilm generated during the summer months, which caused an increase in UV_{254} (Ikonen *et al.*, 2013), or the residual O_3 , which could have fragmented the NOM, generating compounds with lower molecular weights (Galapate *et al.*, 2001; Swietlik *et al.*, 2004; Hua and Reckhow, 2013; Zhou *et al.*, 2015), thereby reducing the amount of UV_{254} .

Regarding the evolution of the SUVA index over time, this proved to be quite similar to that shown by the UV_{254} and DOC parameters. As a result, all that remains is to highlight the low value measured in the drinking water ($0.75 \pm 0.50 \text{ L/mg-m} < 2 \text{ L/mg-m}$), according to the James K. Edzwald guide values widely used by the scientific community, which would imply a low risk of generation of DBPs. Despite these values, concentrations of THMS were found to be significantly higher in the O_3+UF stage, this being precisely the stage that showed significantly lower SUVA values. This was proof that SUVA is not always a good predictor of DBP generation, as indicated by Weishaar *et al.* (2003), who attribute this singularity to the heterogeneity of the DOC and its complex reaction mechanisms with the disinfectant.

The only THM detected in the drinking water was chloroform, the most commonly-found compound in chlorinated water (Kumari y Gupta, 2015; Zhang *et al.*, 2010; Teksoy *et al.*, 2008; Roccaro *et al.*, 2008; Sérodes *et al.*, 2003; Williams *et al.*, 1997), and the concentration of this compound increased over time. This tendency cannot be attributed to time itself, but rather to the strong influence that the type of treatment had on the amount of chloroform generated. In this respect the quality of the drinking water was high, or very high, although towards the end of the test phase concentrations of chloroform reached very high levels, even surpassing the legal limit ($100 \mu\text{g/L}$) in some cases, though this was as a consequence of the O_3+UF stage, which coincided with the end of the phase.

TBC_{22} was practically not detected up until the 20th week of operation, coinciding with the development of biofilm, which was undoubtedly the cause of the appearance of positive, though insignificant counts (the highest count found in the study was below 9 ufc/mL , far inferior to the 100 ufc/mL at the exit of the drinking water treatment plant (DWTP) established by Spanish Royal Decree (RD) 140/2003, and even further from the recommendation established by the Ministry of Health and Consumer Affairs in 2005, 10000 ufc/mL as a maximum for drinking water). Also found to comply with established standards (0 ufc/100mL) was the level of *E. coli.*, which was found to be not detected during the evolutionary phase. As a result the microbiological quality of the drinking water was deemed to be excellent, due largely to the high efficiency of membrane technology in terms of retention of bacteria (Gómez *et al.*, 2006; Prest *et al.*, 2016), though the existence of bacteria in the network was expected, given that the post-filtration area is susceptible to contamination by microorganisms of diverse origin.

Deposits of organic matter and BAS progressively and exponentially covered the surface of the EDN pipeline, passing through all the states inherent to the formation of biofilm as described by Perival *et al.* (2010) and becoming both evident and irreversible following 7 months of operation. After one further month it was impossible to carry out a visual count of bacteria adhered using an SEM due to the amounts of accumulated dirt and extra-cellular polymeric substances (EPS), as a result of which it was decided that chemical cleaning of the network (1000 mg NaClO/L) was to be carried out. From this moment on deposits once again began to appear in the pipeline but the BAS count was very low due to the biocidal effect of the residual ozone, despite the fact that this favours bacterial regrowth by degrading the organic matter, thereby facilitating its assimilation by microorganisms (Escobar y Randall, 2001a; Escobar y Randall, 2001b; van der Kooij *et al.*, 1989). Once again this suggests the need for a comparative study in order to determine whether the generation of the biofilm was conditioned solely by the treatment per se or whether it was a question of the time elapsed.

In light of the results obtained in the evolutionary phase, and bearing in mind that the RDA analysis showed that the "treatment" was the variable that exerted the greatest influence on the system, the need for a second study in which this influence would be evaluated was considered; a study that would commence with the same conditions for the water destined for treatment in the experimental facility.

Regarding the variables subjected to continuous measurement, the results of the comparative study once again demonstrated the correct operation of the chlorine management system in all phases, which maintained a very stable level of FRC around the set point (0.44 ± 0.07 mgCl₂/L). However, the pH was seen to be affected to a greater extent by the treatment and its behaviour was seen to vary, with a gradual decrease during the CF+UF phase due to the addition of Fe (III) to the water during the treatment (Rojas-Serrano *et al.*, 2015c; Siéliéchi *et al.*, 2008; Willhite *et al.*, 2013), a stable pH during the UF phase, and a more irregular pH during the O₃+UF phase as a consequence of the residual O₃, which, though it initially caused a lowering of the pH (Huang *et al.*, 2005), subsequently caused it to increase. As with the evolutionary phase, the temperature of the water was greatly affected by the ambient temperature, reaching values between 9 and 34°C depending on the time of year in which the experimental phase was carried out.

The turbidity of the water in the EDN was generalised, with an average increase of 0.20 ± 0.49 NTU, though with statistically significant differences between some phases. The quality of the effluent water was to some degree marked by its correlation to the turbidity of the influent water ($r_{\text{TurbINF-TurbEF}} = 0.423$), which meant that during the UF phase the turbidity of the effluent water showed a tendency to increase over time, thereby mirroring the evolution of the influent water as a consequence of the progressive alteration of the

membrane (Rojas-Serrano *et al.*, 2015b; Rojas-Serrano *et al.*, 2016). During the O₃+UF phase, however, the tendency was for this to decrease in both cases (influent and effluent) as the ozone used in the treatment oxidised and fragmented the organic matter, thereby reducing the turbidity. In the CF+UF phase, and in addition to the effect of the influent water, the turbidity of the effluent water was conditioned to a great extent by the development of biofilm (which was also favoured by both the presence of residual coagulant in the EDN and the high temperatures), which caused a progressive and more noticeable increase in the turbidity of the drinking water than that observed in the other phases, in which biological development did not appear, or at least was not so noticeable. Once again, as in the evolutionary phase, the turbidity never exceeded the established legal limit of 5 NTU.

The DOC content of the drinking water was strongly influenced by its correlation to the quality of the treated water ($r_{\text{CODEF-CODINF}} = 0.721$), which depended on the effectiveness of the treatment in terms of eliminating dissolved matter ($\eta_{\text{UF}}=16\% < \eta_{\text{O}_3+\text{UF}}=29\% < \eta_{\text{CF+UF}}=42\%$), and showing an average global ΔDOC of 8% in its passage through the EDN. Once again, however, the exception was observed during the O₃+UF phase, in which the tendency of the DOC in the EDN varied according to the moment in question but, in general, showed a slight decrease (ΔDOC average -0.30 ± 2.09 mg/L) due to oxidation of NOM by the residual ozone. This differs notably from the behaviour observed in the evolutionary phase of the same treatment (where ΔDOC was positive and substantial, 90%), which suggests that, in the latter case, the fouling was influenced by what had occurred in prior phases and not only by the treatment itself. Likewise, the drinking water produced in the comparative study was of low quality, with an average value of 5.43 ± 2.45 mg DOC/L, which surpasses the recommended level of 7 mg TOC/L.

While membrane filtration does not modify the chemical composition of the organic matter or, as a consequence, its UV₂₅₄, due to its direct relationship with DOC the latter may be altered to a certain extent. This is not the case with the use of pre-treatments, in which the coagulant and the ozone did cause a reduction in UV₂₅₄ in the permeate as a result of both the elimination of DOC and the reduction in the part with greater molecular weight ($\eta_{\text{UF}}=28\% < \eta_{\text{O}_3+\text{UF}}=54\% < \eta_{\text{CF+UF}}=75\%$). This quality of treated water was transferred in an almost parallel fashion to the quality of drinking water, with a correlation between the absorbance of the influent and effluent water of 0.895 and a medium-low quality level of 6.54 ± 4.76 m⁻¹. In general terms the variation of UV₂₅₄ in the EDN was minimal (between -0.89 and 0.39, depending on the phase) and the evolutionary tendency was almost constant, which would lead one to predict little alteration of this parameter in a DWSN, as suggested by Huang *et al.* (2016).

SUVA index was explained by the behaviour of UV_{254} and DOC, though to a greater extent by the former than by the latter. As with the evolutionary phase, the values of this index were low (Edzwald y Van Benschoten, 1990; Edzwald *et al.*, 1985), though this did not directly lead to a reduced presence of DBPs in the water, with all SUVA-DBP correlations remaining lower than 0.314. In addition, the phase in which the greatest SUVA (UF) was observed did not correspond to the phase showing the highest level of DBPs.

Time and again, the only THM detected was chloroform, and with statistically significant differences between the phases. In the case of the HAAs the nine existing species were detected, with dichloroacetic acid in by far the greatest proportion: DCAA (86.82%) > MCAA (4.19%) > BCAA (2.75%) > TCAA (2.02%) > TBAA (1.01%) > MBAA (0.94%) > DBAA (0.90%) > BDCAA (0.87%) > CDBAA (0.49%). While the differences between the phases were somewhat reduced, the influence of the treatment on the concentration of DBPs in the drinking water was evident, a fact that is supported by the strong correlation shown by the RDA of the system. The phase showing the lowest concentrations of DBPs was the CF+UF phase, which was expected, given that the treatment encourages greater elimination of hydrophobic and humic matter before DBPs are formed (Croue *et al.*, 1993; Ivancev-Tumbas *et al.*, 1999). However, the O_3 +UF phase was the phase that produced water that could not be considered apt for human consumption as on occasion it exceeded the 100 $\mu\text{g/L}$ allowed for ΣTHMs and, in the case of the HAAs, also exceeded in some cases the reference values indicated by the World Health Organisation of 20, 50 and 200 $\mu\text{g/L}$ for MCAA, DCAA and TCAA respectively. While scientific publications suggest that the use of ozone reduces the formation of THMs in chlorinated water due to the effect of O_3 on the speciation of the DBPs (Gallard y Von Gunten, 2002; Wert y Rosario-Ortiz, 2011), this behaviour may be attributed to the combination of ozone and chlorine in the EDN, which, according to Zhou *et al.* (2015), increases the formation of DBPs as compared with chlorination without ozonation.

With regard to the microbiological parameters of drinking water, the same occurred as in the evolutionary phase. In other words, the quality was excellent in terms of TBC_{22} and *E. coli*, independently of the treatment applied, and the low positive counts obtained bore correlation with the appearance of biofilm.

Finally, regarding the fouling of the distribution network, which was evaluated both quantitatively and qualitatively, the influence of the treatment was evident. While during the UF and O_3 +UF phases biofilm generation as such was not observed, in the case of the CF+UF phase biofilm generation did occur, and to the extent that it became mature and irreversible. This was justified by the biocide capability of the O_3 which, when it attained residual form in the EDN, halted bacterial growth despite the fact that this element makes organic matter more assimilable by microorganisms. In the case of the UF phase no external factor facilitating the deposition of dissolved organic matter on the surface of the conduits was present. During the CF+UF

phase, however, the presence of residual iron in the EDN facilitated both the deposition of NOM on the surface of the pipeline and an increase in TBC₂₂ in the water (also, in part, attributable to temperature), thereby contributing to an exponential increase in BAS.

In light of the results of this research we can conclude that the use of UF membranes, with or without pre-ozonation, did not guarantee a safe supply of drinking water in terms of contamination by DBPs, while a combination CF+UF alone give rise to contamination problems relating to biofilm. As a result, in order to ensure the health and sustainability of a water supply system the use of CF+UF is deemed to be the most efficient system provided that periodical chemical cleaning is carried out on the supply network in an effort to reduce bacterial proliferation.

1. INTRODUCCIÓN

1. INTRODUCCIÓN

La calidad de un agua potable depende de la calidad del recurso hídrico de donde se capte el agua a tratar, así como del tipo de tratamiento empleado en su potabilización y las alteraciones que pueda sufrir en su distribución. Con el objetivo de garantizarle al consumidor un suministro de agua segura para la salud humana, de vital importancia en cuanto a enfermedades hídricas, existen unos estándares de calidad establecidos. A nivel europeo estos estándares se encuentran recogidos en la Directiva 98/83/CE del Consejo de la Unión Europea, de 3 de noviembre de 1998, relativa a la calidad de las aguas destinadas al consumo humano, y la Directiva (UE) 2015/1787 de la Comisión Europea, de 6 de octubre de 2015, por la que se modifican los anexos II y III de la anterior. Esto se transpuso al marco legislativo español en el RD 140/2003, de 7 de febrero, por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano, el cual ha sido modificado recientemente por el RD 314/2016 en lo referente a las consideraciones sobre sustancias radiactivas.

Puesto que el agua es un recurso fundamental para la vida, debe prestarse la atención que merece tanto en lo que respecta a la cantidad, haciendo un consumo responsable y sostenible de ella, como en lo que respecta a la calidad, velando por no contaminar las fuentes de abastecimiento. De ahí que sea importante llevar a cabo un sistema de gestión integral del agua que vele por estos intereses. La Figura 1 representa esquemáticamente el ciclo que sufre el agua a lo largo de su vida:

- 1) El agua bruta se obtiene del origen más adecuado considerando la calidad y cantidad de los recursos disponibles, pudiendo ser captada de aguas superficiales (ríos, lagos, embalses, agua marina...) o subterráneas (pozos y manantiales).
- 2) El agua bruta pasa a una estación de tratamiento de agua potable (ETAP) para su potabilización.
- 3) El agua tratada se almacena en depósitos hasta su distribución.
- 4) El agua potable almacenada es distribuida a los consumidores a través de una red de distribución.
- 5) El agua potable llega al punto de uso (hogares, industria, etc.) para su consumo, lo que da lugar a la generación de agua residual.
- 6) El agua residual debe recogerse mediante una red de saneamiento y conducirse a una estación depuradora de aguas residuales (EDAR) para su tratamiento antes del vertido al medio o reutilización, cerrando así el ciclo.

Cabe señalar que la legislación de aguas de consumo humano atañe a tres puntos de muestreo de la red de abastecimiento (señalado con ● en la Figura 1): salida de la ETAP, salida de depósito y red de distribución, siendo éste último punto donde se sitúa la investigación de este trabajo.

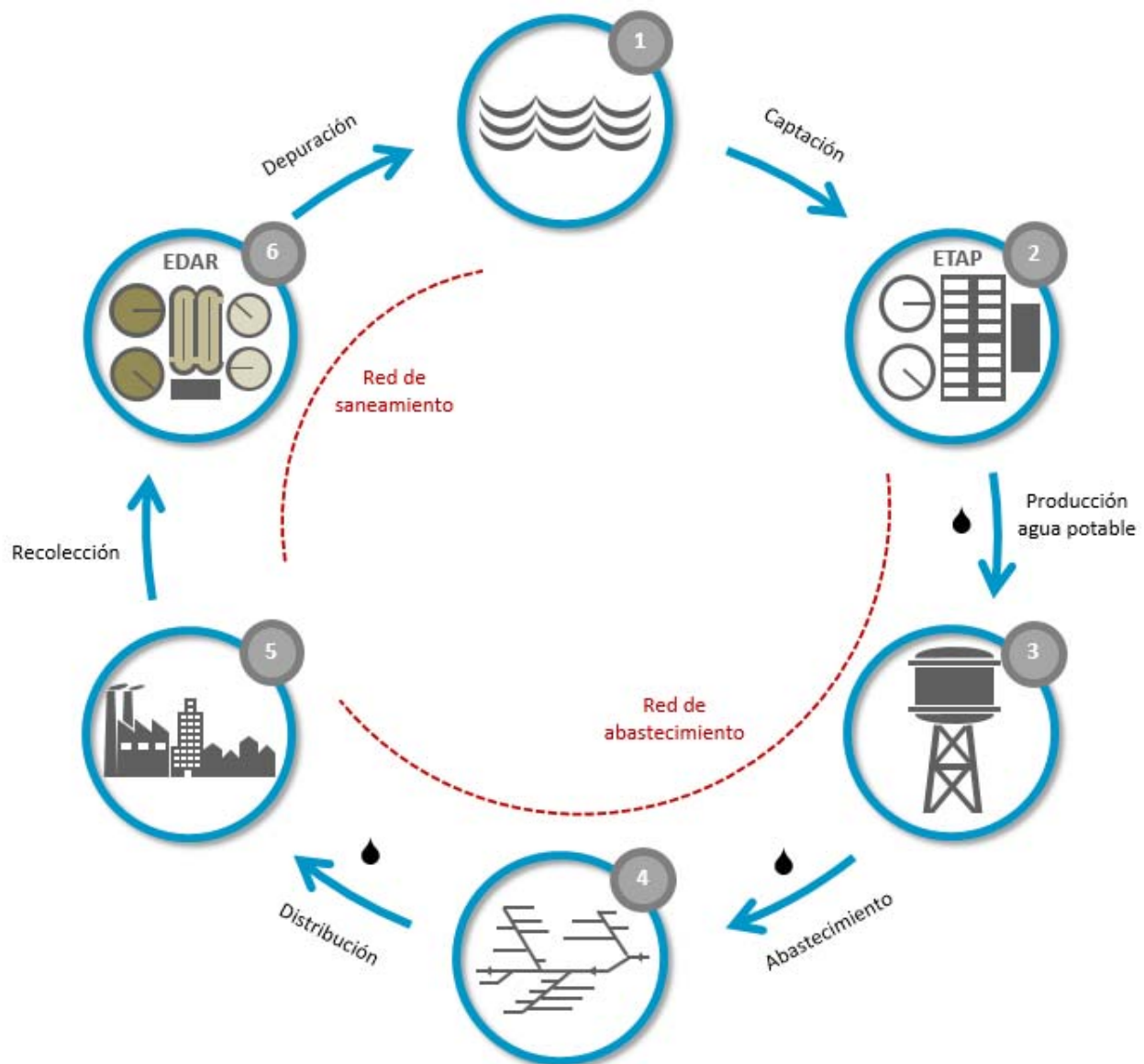


Figura 1. Ciclo integral del agua.

Una vez producida el agua potable se convierte en un producto perecedero y vulnerable a la contaminación. Uno de los motivos es el deterioro de los sistemas de almacenamiento y distribución del agua (Sousa *et al.*, 2010; Robertson *et al.*, 2003). Estos pueden sufrir problemas relacionados con la corrosión, liberando partículas tanto de origen orgánico (Bucheli-Witschel *et al.*, 2012) como inorgánico (Peng y Korshin, 2011). También puede darse un ensuciamiento derivado del contenido en materia orgánica del agua capaz de formar depósitos en el interior de estos sistemas (Gauthier *et al.*, 1999), lo que además puede afectar al recrecimiento bacteriano por aporte de nutrientes (Liu *et al.*, 2002), revirtiendo en una pérdida de calidad del agua. Este último aspecto es otro de los motivos que puede alterar la calidad y salubridad del agua potable producida ya que los microorganismos pueden reproducirse en los sistemas de almacenaje y distribución (Liu

et al., 2013b), así como colonizar la superficie de los mismos dando lugar a la formación de biopelículas (EPA, 2002; Wingender y Flemming, 2011; Farkas *et al.*, 2013). Otro elemento que puede contribuir a la contaminación del agua una vez tratada es la aparición de subproductos de desinfección (Villanueva *et al.*, 2003). Todos estos elementos representan una amenaza para el mantenimiento de la calidad del agua potable y algunos de ellos también suponen un riesgo para la salud del consumidor, de ahí el interés por su estudio.

1.1. CALIDAD DE AGUAS DE CONSUMO HUMANO

1.1.1. Características organolépticas

Las propiedades organolépticas son aquellas características físicas de la materia que se pueden percibir por los sentidos y en el caso del agua son el color, el olor, el sabor y la turbidez. Estos cuatro parámetros son medibles y cuantificables para valorar la calidad de un agua.

En una planta de potabilización la mayoría de los procesos aplicados están destinados principalmente a corregir estas características organolépticas. En un agua que va a ser empleada como agua de bebida, más allá de los aspectos de calidad que conciernen a la salud, también juegan un papel muy importante la calidad estética ya que es lo que inicialmente confiere confianza y satisfacción al consumidor (Mallevalle y Suffet, 1987).

Dentro de estas propiedades organolépticas se encuentra el denominado “color verdadero” del agua que es aquel producido por los compuestos filtrables contenidos, es decir, por las sustancias que permanecen en el agua después de ser filtrada a través de un filtro de 0,45 μm . Si además de estos compuestos también se tiene en consideración la materia en suspensión se habla de “color aparente”. El color se mide en unidades de mg/L de platino-cobalto y según los estándares legales no debe ser superior a 15 mg/L Pt-Co en aguas de consumo (entendiendo éste siempre como color verdadero), sirviendo de orientación que las aguas de río pueden presentar un color de entre 5 y 200 mg/L (Kiely, 1999).

Otros dos parámetros son el olor y el sabor, ambos fisiológicamente relacionados entre sí ya que las papilas linguales y las olfativas detectan estímulos simultáneos y complementarios (Marín Galvín, 2003). El olor y sabor de un agua puede tener su origen en muchos compuestos orgánicos e inorgánicos que se hayan generado en ella de forma natural o bien que hayan llegado de manera accidental. Las algas y las bacterias son las principales causas de este problema en agua potable ya que generan de forma natural determinadas sustancias químicas que confieren estas dos propiedades. Entre estas sustancias se encuentran la geosmina

(olor terroso) y el 2-metilisoborneol (olor/sabor a moho) producidas por cianobacterias y actinomicetos, el metabolito mucidona (olor a moho), o el 2-4 heptadienal y el decadienal (olor/sabor a pescado rancio) generado por las algas marrones. El H₂S (olor a huevos podridos), producido por bacterias sulfato-reductoras, es una sustancia que también puede estar presente en agua y que ocasiona problemas tanto ambientales (contaminación) como en infraestructuras (deterioro por corrosión de tuberías y equipos de acero durante el proceso de tratamiento). De hecho, la presencia/ausencia de H₂S es un método de detección de contaminación microbiana que viene empleándose en suministros de agua potable desde hace unas tres décadas (Wright *et al.*, 2011; Nair *et al.*, 2001).

Otras sustancias que generan problemas de sabor y olor en agua son los metales (Fe, Cu, Mn y Zn, sabor metálico), concentraciones elevadas de sales (Ca²⁺, Mg²⁺) y ciertos aniones como el Cl⁻, SO₄⁻, HCO₃⁻ y NO₃⁻. Pero también existen sustancias de origen antrópico que generan problemas de sabor y olor. En este sentido, el cloro añadido para el tratamiento del agua, especialmente si el agua a tratar contiene compuestos fenólicos, produce sabor a clorofenoles o “medicamentoso” (Marín Galvín, 2003). Asimismo, los hidrocarburos, los compuestos orgánicos volátiles y el éter metil terbutílico (MTBE), compuestos propios de combustibles y disolventes, generan en el agua olores a aceite, pintura o aguarrás.

Existen varios métodos para medir estos dos parámetros, aunque el más habitual es el del umbral del olor basado en la persistencia de éste tras diluir la muestra en agua inodora (destilada) hasta que deje de percibirse, lo que confiere cierta subjetividad al ensayo. No existe normativa muy concreta, dejando casi al consumidor como principal regulador ya que la normativa europea establece que el valor paramétrico de olor y sabor sea el “aceptable para los consumidores y sin cambios anómalos”. Pero sí es cierto que en la legislación española el límite para ambos parámetros está fijado en un índice de dilución de 3 a 25 °C y que la Agencia de Protección del Medio Ambiente de Los Estados Unidos (USEPA, última actualización enero 2016) marca como límite secundario de concentración máxima del olor 3 TON (threshold odor number).

Dentro de las propiedades organolépticas, la turbidez es uno de los parámetros más importantes y más empleados en la determinación de la calidad de un agua. La turbidez representa el grado de transparencia de un líquido. Es una magnitud que está directamente relacionada con la cantidad de materia en suspensión y coloidal de un agua ya que esta materia provoca la absorción/dispersión de la luz. Una mayor concentración de este tipo de compuestos en el agua se traduce en una mayor absorción y dispersión de la luz incidente y por tanto en una mayor turbidez del agua. La ley recoge un valor límite de turbidez en agua potable de 1 unidad nefelométrica (UNT) a la salida de la ETAP y/o depósito y de 5 UNT en las redes de distribución.

1.1.2. Problemas de contaminación microbiana

Puede decirse que un agua está contaminada cuando su composición es alterada, bien de forma natural o por perturbaciones antrópicas, de modo que no reúne las condiciones de calidad necesarias para ser utilizada beneficiosamente para todas las funciones y propósitos para los que debería, haciéndola impropia o peligrosa para el consumo humano, la agricultura, la pesca, los animales domésticos, las actividades recreativas, así como la vida natural y el medioambiente (OMS, 1961; y la Carta del Agua del Consejo de Europa, 1968).

Es sabido que la contaminación de las aguas de consumo puede producir serios y numerosos problemas de salud a nivel mundial. De hecho, en los países en vías de desarrollo el 80% de todas las enfermedades son de origen hídrico (OMS, 2006). La contaminación microbiológica es sin duda la más relacionada con el agua potable, siendo la responsable de más del 90% de las enfermedades hídricas (Moro González, 2011). Aunque se han producido algunos brotes de estas enfermedades incluso en países con buen nivel de protección (Gofti *et al.*, 2016), es cierto que en las últimas décadas se han reducido bastante, probablemente debido a la eficacia de los tratamientos del agua y su regulación. Sin embargo, la contaminación microbiana sigue siendo de creciente importancia puesto que está implicada en dos terceras partes de los brotes de enfermedades hídricas asociadas a los sistemas de distribución (Craun *et al.*, 2006).

La contaminación microbiana está asociada a virus, bacterias y protozoos fundamentalmente, aunque existen también otros parásitos menos frecuentes, siendo las bacterias las que requieren un mayor número de individuos para desencadenar la enfermedad (dosis infectiva) en comparación con los virus, cuya dosis infectiva está en el rango de 1 a 10 unidades infecciosas (Leclerc *et al.*, 2002) mientras que en bacterias puede oscilar entre 10 y 10^{10} dependiendo en gran medida de la especie (OMS, 2008^a; Rusin *et al.*, 1997). Los microorganismos están presentes de modo ubicuo en nuestro ambiente (suelo, aire y agua) y, aunque algunas de sus actividades pueden ser beneficiosas, la presencia de microorganismos patógenos en el medio acuático puede causar multitud de enfermedades que resultan perjudiciales para la salud (Tabla 1).

Aunque dentro de cada reino hay microorganismos que han destacado más que otros por su repercusión en la salud pública (los huevos de *Cryptosporidium* y los quistes de *Giardia* en protozoos y *rotavirus* en virus), una de las bacterias con mayor protagonismo ha sido *Escherichia coli*. Es una bacteria del grupo coliforme, indicadora de contaminación fecal y capaz de sobrevivir en agua potable de entre 4 y 12 semanas según las condiciones ambientales. En la década de 1890 fue elegida como indicador de la calidad microbiológica del agua y a finales de los 80, debido a que el avance de la tecnología hizo posible un método

de análisis barato y sencillo, *E. coli* se convirtió en parte de las regulaciones del agua potable (Edberg *et al.*, 2000) y lo sigue siendo actualmente.

Tabla 1: Principales microorganismos relacionados con enfermedades hídricas (Moro González, 2011; Cohn *et al.*, 2002).

Agente Etiológico	Enfermedad
ORIGEN BACTERIANO	
<i>Salmonella typhi</i>	Fiebres tifoideas
<i>Samonella paratyphi</i>	Fiebres paratifoideas
<i>Salmonella schottmuelleri</i>	Fiebres paratifoideas
<i>Salmonella spp</i>	Salmonelosis
<i>Shigella spp</i>	Disentería bacteriana (shigelosis)
<i>Vibrio cholerae</i>	Cólera
<i>Escherichia coli</i>	Gastroenteritis
<i>Campylobacter jejuni</i> y <i>C. enteritis</i>	Gastroenteritis
<i>Yersinia enterocolitica</i>	Yersiniosis
<i>Legionella pneumophila</i>	Legionelosis
<i>Leptospira</i>	Leptospirosis
<i>Microbacterium avium intracelular</i>	Enfermedad pulmonar
<i>Pseudomonas aeruginosa</i>	Diversas infecciones
<i>Pseudomonas persiginora</i>	Dermatitis
<i>Helycobacter pylori</i>	Úlceras pépticas
ORIGEN VÍRICO	
<i>Poliovirus</i>	Poliomielitis
<i>Virus de la hepatitis A</i>	Hepatitis A
<i>Adenovirus</i>	Enfermedades respiratorias y conjuntivitis
<i>Enterovirus, Coxsackievirus</i> y <i>Ecovirus</i>	Enfermedades respiratorias
<i>Virus de Norwalk</i> y otros <i>calcivirus</i>	Diarreas y vómitos
<i>Rotavirus</i>	Diarreas
<i>Astrovirus</i>	Gastroenteritis
<i>Reovirus</i>	Gastroenteritis
ORIGEN PARASITARIO (protozoos)	
<i>Entamoeba histolytica</i>	Disentería amebiana
<i>Giardia lamblia</i>	Giardiasis
<i>Cryptosporidium</i>	Criptosporidiosis
<i>Microspora</i>	Gastroenteritis
<i>Acanthamoeba</i>	Infección de ojos
<i>Naegleria fowleri</i>	Meningo-encefalitis amébrica

En los países desarrollados, desde que se separaron las aguas residuales del tratamiento de agua potable, las conocidas enfermedades infecciosas de origen hídrico como el cólera, la fiebre tifoidea o la disentería han ido perdiendo protagonismo. Rara vez se encuentran este tipo de patógenos en las redes de distribución de agua potable (RDAP) y si aparecen es por algún fallo del sistema. No obstante en algunas

partes del mundo donde no cuentan con sistemas de suministro adecuados de agua potable estos problemas todavía ocurren (Szewzyk *et al.*, 2000), afectando a 1,5 millones de personas y cobrándose unas 842000 vidas al año, siendo especialmente incidentes en la población infantil con casi 1000 muertes de menores de cinco años al día (OMS, 2015).

Pero aparte de estos patógenos “clásicos”, hace relativamente pocos años hay cierta preocupación por los llamados “patógenos emergentes”. Por enumerar algunos de ellos, dentro de los patógenos de origen fecal se encuentran los virus entéricos, *Cryptosporidium parvum* y *Giardia lamblia*, *Campylobacter*, *Escherichia coli* enterohemorrágica, *Yersinia enterocolitica*, *Microsporidia* y *Helicobacter pylori* entre otros. También están aquellos que crecen en los sistemas de distribución como la *Legionella pneumophila*, *Pseudomonas aeruginosa*, *Mycobacteria* y *Aeromonas*; y las bacterias del grupo Cyanobacter (*Microcystis*, *Planktothrix*, *Anabaena*, *Aphanizomenon*, and *Oscillatoria spp.*) conocidas por la gran variedad de toxinas que producen (Szewzyk *et al.*, 2000).

Factores como los cambios demográficos poblacionales, la globalización del comercio o los cambios en las tecnologías de tratamiento de agua han podido conducir a la aparición de estos nuevos patógenos (Nwachuku y Gerba, 2004). Se piensa que una de las razones de que estos nuevos patógenos emerjan ahora es que realmente ya existían pero no estaban identificados como tal, y otros se conocían como causa de infecciones pero no se asociaban al agua potable. Algunos otros son de origen reciente que han emergido como consecuencia de la resistencia a antibióticos (Szewzyk *et al.*, 2000). Uno de estos ejemplos es *Escherichia coli* enterohemorrágica, una nueva biovariedad de *E. coli* más virulenta formada por la transferencia horizontal de genes.

Aunque las primeras etapas del tratamiento de un agua eliminan la mayoría de los microorganismos que contiene, es necesario aportar una dosis residual de desinfectante al agua potable a la salida de la ETAP para garantizar la salubridad a lo largo de la red de abastecimiento, evitando la proliferación o controlando nuevos aportes de microorganismos patógenos. Es decir, no basta con la capacidad biocida de una desinfección (que podría ser física o química), sino que también se necesita un carácter residual que se mantenga en el tiempo para evitar el recrecimiento bacteriano en las conducciones de la red de distribución.

La cloración fue sin duda uno de los avances que más repercusión tuvo en la disminución de las enfermedades hídricas. Comenzó a practicarse en 1900 (CDC, 1999) y hoy en día sigue siendo el método de desinfección más empleado (el cloro y sus derivados).

El problema de un uso continuado de un desinfectante o en concentraciones subletales es que los microorganismos pueden adaptarse y desarrollar resistencias frente a los desinfectantes aplicados (Jacangelo, 2004). Ejemplos de ello son el estudio de Lisle *et al.* (1998) que comprobaron la resistencia de la bacteria *E. coli* O157:H7 a la desinfección con cloro en condiciones de inanición prolongada en el tiempo, y el de Berry *et al.* (2010) que demostraron la disminución de sensibilidad de *E. coli* hacia la monocloramina. La investigación de Chiao *et al.* (2014) mostró que las poblaciones bacterianas en agua potable presentan una resistencia diferencial a la monocloramina y que el proceso de desinfección selecciona poblaciones bacterianas resistentes, aumentando su abundancia relativa durante el tratamiento con este desinfectante los géneros *Legionella*, *Escherichia* y *Geobacter* en el sistema a escala de laboratorio y los géneros *Mycobacterium*, *Sphingomonas* y *Coxiella* en el sistema a escala completa. Otro caso es el estudio de Thomas *et al.* (2008) que sugiere que las amebas libres (protozoos) son resistentes a la desinfección por ozonización. También Bekkari *et al.* (2016) evaluaron la eficacia de la desinfección en los canales de distribución de agua hospitalaria y demostraron que el desinfectante empleado en forma pura (sin diluir) fue eficaz contra ciertas especies bacterianas como *Aeromonas hydrophila*, *Staphylococcus coagulasa-negativa*, *Streptococcus sp* y *Bacillus sp.* y sin embargo no se observó efecto alguno contra *Pasteurella haemolytica* y *Lactobacillus*. En el caso de utilizar el mismo desinfectante de forma diluida todas las bacterias estudiadas fueron resistentes, lo que ratifica la importancia de llevar a cabo una desinfección eficiente para evitar problemas de resistencias ante desinfectantes.

En este sentido, la tecnología de membranas se presenta como una técnica muy favorable en tanto en cuanto es capaz de evitar en parte estos problemas de resistencia microbiana a la desinfección química puesto que la membrana desempeña por sí sola un papel de desinfección física.

Además de la resistencia a los desinfectantes, otro de los problemas emergentes que preocupa a la comunidad científica por su amenaza contra la salud humana es la resistencia bacteriana a los antibióticos, es decir, la capacidad de las bacterias para sobrevivir, e incluso prosperar, en presencia de antibióticos (Pruden, 2014). Esta habilidad es posible gracias a segmentos genéticos del ADN de las bacterias que éstas pueden transferir horizontalmente, lo que aumenta la capacidad de propagación de esta resistencia. Y la preocupación es aún mayor sabiendo que, a pesar de que los métodos convencionales de desinfección son altamente eficaces para mitigar el transporte de las bacterias resistentes a antibióticos vivos, cabe la posibilidad de que la resistencia a antibióticos se propague incluso con estas bacterias completamente inactivadas por transformación natural y/o transducción de restos intactos de ADN contenidos en los restos celulares, confiriendo genotipos de resistencia (para lo que no se requieren células vivas) a poblaciones bacterianas aguas abajo (Dodd, 2012). Tal es la importancia y urgencia de esta cuestión que la OMS acaba de

publicar con fecha de 27 de Febrero de 2017 la primera lista de patógenos prioritarios resistentes a los antibióticos, clasificados en 3 grupos de prioridad (media, alta y crítica), para promover y priorizar la I+D de nuevos y eficaces tratamientos antibióticos, centrándose en las prioridades de la sanidad pública, e instan a los gobiernos a comprometer fondos para ello.

Según Khan *et al.* (2016), ambos fenómenos de resistencia a la desinfección y a los antibióticos pueden estar correlacionados ya que su estudio muestra que las bacterias más tolerantes al cloro son más propensas a serlo también frente a los antibióticos.

Hay varios factores que contribuyen a este problema como el uso extensivo y a veces abusivo de antibióticos en acuicultura, ganadería y farmacología humana. Pero sin duda las plantas de tratamiento de aguas residuales juegan un papel importante en ello ya que se ha detectado una mayor proporción de bacterias resistentes a los antibióticos en aguas residuales con y sin tratamiento que en aguas superficiales, hecho que puede estar motivado porque según Bouki *et al.* (2013) las condiciones en las EDARs son favorables para la proliferación de las resistencias bacterianas a antibióticos y la transferencia de los genes resistentes a éstos. Las EDARs reciben aguas que contienen antibióticos residuales y significativas cantidades de microorganismos, muchos de ellos portadores ya de estos genes resistentes a antibióticos. Las EDARs convencionales cuentan con tratamientos biológicos en los que se trabaja con alta densidad microbiana y altas tasas de crecimiento que, sumado al contenido en antibióticos residuales del agua a tratar y a la presencia de bacterias portadoras de resistencias, pueden desencadenar la transferencia horizontal de la RBA (Pruden, 2014). Otros estudios recientes señalan otras posibles causas de la resistencia a antibióticos como el realizado por Lv *et al.* (2014) que indican que las actividades mutagénicas de algunos DBPs podrían inducir esta resistencia a los antibióticos. Además hay investigaciones que estudian la influencia de la desinfección sobre tal resistencia, como Huang *et al.* (2013), que demuestran que la exposición a bajas dosis de cloro o UV en la desinfección del agua pueden aumentar la proporción de bacterias resistentes a ciertos antibióticos como el caso de *E.coli* frente a la tetraciclina, o Huang *et al.* (2011), cuyos resultados desvelan que la cloración con largos tiempos de retención contribuye a la selección de algunas cepas resistentes a algunos antibióticos.

1.1.3. Contaminación química

La contaminación química es aquella alteración de la calidad del agua como consecuencia de la presencia de alguna sustancia química, orgánica o inorgánica, y cuyo origen puede ser natural (se da en el

recurso hídrico por las condiciones medioambientales) o por la actividad antrópica (bien por algún vertido o bien derivado del tratamiento del agua).

Hay censadas unas 1500 sustancias contaminantes en sistemas acuáticos que fueron clasificadas por Mason en 1991. Unos contaminantes son degradables como por ejemplo los procedentes de aguas residuales y estiércol de ganado, fertilizantes agrícolas, residuos de industrias alimentarias o papeleras, petróleo y sus derivados, aniones sulfuro y sulfito, detergentes, etc. Y otros no son degradables (o si lo son, lo son a muy largo plazo) como las partículas inertes, los plásticos, metales pesados, hidrocarburos halogenados (DDT, PCB), ácidos y álcalis, organofosfatos o la radioactividad (Giller *et al.*, 1999).

Puesto que esta investigación trata de aguas de consumo humano, la contaminación química del agua se abarca desde dos frentes diferentes: por un lado, la contaminación presente en el agua de entrada a la ETAP (influyente); y por otro lado, la contaminación del agua surgida durante el tratamiento y que puede deberse a concentraciones residuales de sustancias químicas empleadas durante la potabilización o bien generadas en los procesos aplicados o en la distribución del agua.

1.1.3.1. Contaminantes químicos presentes en el influente

Los contaminantes químicos que pueden estar presentes en los recursos hídricos que se destinan a la producción de agua de consumo humano. Pueden ser propios del recurso, al incorporarse de forma natural, o bien por la actividad antrópica mediante vertidos, prácticas agrícolas, contaminación atmosférica, etc. Por ello, el control de este tipo de contaminantes que pueden aparecer en el influente sólo puede realizarse desde la calidad de la fuente, es decir, cuidando y controlando el recurso hídrico en sí.

Respecto a aquellos contaminantes de origen natural pueden existir diversos constituyentes como, por ejemplo:

- *Compuestos orgánicos*: arrastrados hacia las masas de agua o generados en ellas. Destacan las sustancias húmicas y aquellos procedentes del metabolismo microbiano. Las sustancias húmicas, compuestas en su mayoría por ácidos húmicos y fúlvicos, son ácidos orgánicos hidrófobos que derivan principalmente del humus del suelo y plantas, y que representan gran parte de la materia orgánica natural del agua. Son estructuras macromoleculares muy heterogénea pero sí que puede decirse que los elementos principales que componen estos ácidos son el C, H, N y O. Su problemática se plantea no tanto por los posibles depósitos de suciedad que puedan ocasionar si

el tratamiento no es totalmente efectivo, sino más bien por ser precursores de los DBPs y el punto de partida para la generación y desarrollo de biopelículas.

- *Sulfuro de hidrógeno, metano y amoníaco*: generados principalmente por la actividad bacteriana anóxica o anaeróbica por reducción de compuestos presentes en el agua como sulfatos, moléculas orgánicas y nitritos respectivamente.
- *Fe y Mn*: estos elementos presentes en la tierra pueden llegar al agua por filtración a través del suelo, así como por desprendimiento de partículas de las tuberías de hierro, y pueden dar a ésta un sabor, olor y color indeseados además de producir depósitos en la red de distribución. Cabe señalar que el empleo de membranas de ultrafiltración como tratamiento puede reducir considerablemente la presencia de estos dos elementos y más aún cuando se conjuga con una cloración (Choo *et al.*, 2005), pudiendo conseguir concentraciones propias de aguas de consumo (200 y 50 µg/l para Fe y Mn respectivamente).
- Amplia gama de *iones* procedentes de su solubilización en el agua tras su contacto con los materiales que conforman la corteza terrestre como pueden ser el Ca^{2+} , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Cl^- , Si^{4+} , etc. (MEC, 2004).

Por otro lado, los contaminantes químicos acuáticos de procedencia antrópica (los más numerosos) pueden ser de muy diversa composición y origen, entre los cuales destacan:

- *Nutrientes*: principalmente nitrógeno y fósforo, que llegan al agua por lixiviados de suelos donde se emplean abonos agrícolas ricos en estos elementos, lotes alimentarios o fosas sépticas.
- *Materia orgánica*: procedente mayoritariamente de los vertidos de las actividades domésticas y comerciales (aguas residuales, corrientes agrícolas, corrientes urbanas y lixiviados de tierras vegetales contaminadas).
- *Metales pesados*: aunque los metales pesados son esenciales para los organismos vivos (muchos organismos marinos tienden a acumularlos), resultan tóxicos si exceden de las concentraciones normales. Entre los metales pesados que producen contaminación del agua están el mercurio (supone un riesgo potencial para la salud, límite 1 µg/L), el plomo (suele proceder de los aerosoles, límite 10 µg/L), el cadmio (provoca daños irreversibles en el riñón, 5 µg/L), etc.
- *Contaminantes emergentes*: también llamados microcontaminantes, puesto que su rango de concentración oscila usualmente entre 1 ng/L y 1 µg/L (Pal *et al.*, 2014). Estos contaminantes son un amplio grupo de sustancias químicas de naturaleza y origen muy variable que se definen como sustancias identificadas recientemente en el agua o en el medio o que anteriormente no se reconocían o catalogaban como contaminantes. La lista es significativamente grande e incluye

multitud de productos de uso diario como fármacos, productos empleados en el cuidado personal, surfactantes, aditivos de los combustibles (como el metil tert-butil éter), subproductos de la desinfección del agua, drogas y sus metabolitos, hormonas, disruptores hormonales, plastificantes, plaguicidas, nanomateriales, edulcorantes, toxinas de algas, etc. Esta lista de sustancias ha crecido considerablemente en los últimos años y se espera que crezca mucho más en el futuro. Se puede considerar que hay más de 100.000 sustancias químicas registradas (Regulation Nº 1907/2006 EC), muchas de las cuales pueden potencialmente alcanzar el medio ambiente. Sin embargo, el problema no radica solo en esta potencialidad, sino que debido a la transformación de estas sustancias durante su uso o en el medio, podemos encontrarnos en la naturaleza multitud de derivados (Agüera *et al.*, 2013). En la Tabla 2 se detallan los principales contaminantes emergentes presentes en el medio acuático, algunos de ellos incluidos en la catalogación de “sustancia prioritaria” o en la lista de observación recogidas en la Directiva 2013/39/UE del Parlamento Europeo y del Consejo, de 12 de agosto de 2013, por la que se modifican las Directivas 2000/60/CE y 2008/105/CE en cuanto a las sustancias prioritarias en el ámbito de la política de aguas; y la Decisión de Ejecución (UE) 2015/495, de 20 de marzo de 2015, por la que se establece una lista de observación de sustancias a efectos de seguimiento a nivel de la Unión en el ámbito de la política de aguas, de conformidad con la Directiva 2008/105/CE del Parlamento Europeo y del Consejo.

Estos contaminantes llegan al agua principalmente por lixiviados de suelos agrícolas y vertederos, por aguas residuales domésticas y por filtraciones de fosas sépticas o sistemas de alcantarillado (Luo *et al.*, 2014). Si bien es cierto que aún no existe información concluyente sobre el impacto ecotoxicológico derivado de estas sustancias, sí que se sabe que las tecnologías convencionales no son suficientemente eficaces para completar su eliminación, dependiendo esta eficiencia de las características del microcontaminante a eliminar y las condiciones del proceso de tratamiento (Barbosa *et al.*, 2016). Por ello actualmente las investigaciones se están dirigiendo hacia la eliminación de contaminantes emergentes con tratamientos avanzados, entre ellos los de membranas, o sistemas híbridos (Ahmed *et al.*, 2016; Acero *et al.*, 2015; Secondes *et al.*, 2014; Kowalski *et al.*, 2014; Sahar *et al.*, 2011).

Tabla 2: Principales contaminantes emergentes en medios sistemas acuáticos (Luo *et al.*, 2014).

Categoría	Contaminante	Ejemplos
Fármacos		
	Antiinflamatorio no esteroideo (AINE) y analgésicos	Acetaminofeno, diclofenaco, ibuprofeno, cetoprofeno, ácido mefenámico, naproxeno, ácido salicílico
	Reguladores de lípidos	Bezafibrato, ácido clofibrico, gemfibrozilo
	Anticonvulsivos	Carbamazepina
	Antibióticos	Eritromicina, sulfametoxazol, trimetoprima
	β -bloqueantes	Atenolol, metoprolol
	Estimulantes	Cafeína
Productos del cuidado personal (PCPs)		
	Fragancia de almizcle	Galaxolida, tonalida
	Desinfectantes	Triclosan
	Filtros UV	Benzofenona-3
	Repelentes de insectos	N,N-Dietil-meta-toluamida (DEET)
Hormonas esteroides		
	Estrógenos	Estrona, estradiol, 17 α -etinilestradiol, estriol
Surfactantes o tensioactivos		
	Surfactantes no iónicos	Nonilfenol, octifenol
Industria química		
	Plastificantes	Bisfenol A (BPA), dibutilftalato (DBP), di(2-etilhexil)ftalato (DEHP), dimetil ftalato (DMP)
	Retardantes del fuego	Fosfato de tris(2-cloroetilo) (TCEP), fosfato de tris(2-cloroisopropilo) (TCPP)
Pesticidas o plaguicidas		
	Insecticidas	Diazinón
	Herbicidas	Atrazina, diurón
	Fungicidas	Clotrimazol, tebuconazole

1.1.3.2. Contaminación química por sustancias adicionadas/generadas en el tratamiento

Los sistemas de almacenaje y distribución del agua (tanques, tuberías y otros equipos) necesitan para su mantenimiento ser pintados, revestidos o tratados con productos que pueden lixiviar o penetrar en el agua, contaminándola así de forma indirecta (Pontius y Clark, 2002). Estos son los denominados aditivos indirectos que pueden contaminar el agua de una forma no intencionada. Los más conocidos son la *acrilamida*, empleada en la fabricación de polímero poliacrilamida; el *epiclorohidrin*, un epóxido alquílico halogenado que se utiliza en floculantes, resinas epoxi y disolventes; y los *hidrocarburos aromáticos polinucleares* como el benzopireno, uno de los más estudiados por su ubicuidad y efecto cancerígeno (Cohn *et al.*, 2002).

Por otro lado están los aditivos directos, que son aquellas sustancias químicas que se añaden de forma directa al agua porque son necesarios en su proceso de potabilización. Pero si esa adición no se hace en la dosis y la manera adecuada estos productos pueden provocar una contaminación del agua tratada. Los aditivos más comunes son el hierro y el aluminio, empleados para los procesos de coagulación-floculación, la cal (usada en el ablandamiento del agua) y algunos agentes desinfectantes (cloro y sus derivados).

- *Aluminio*: puede estar presente tanto en aguas contaminadas por el consumo de productos que contiene aluminio (antitranspirantes, sopas, cosmética y aditivos de alimentación) como por la adición de sulfato de aluminio en el tratamiento de potabilización del agua, sustancia incluida en la lista de sustancias autorizadas como reactivos aplicables en potabilización de aguas de consumo humano (Anexo II del RD 140/2003).
- *Hierro*: puede encontrarse de forma natural en pozos pero por lo general procede del óxido de los materiales de hierro en contacto con el agua o por la adición de éste como aditivo en el tratamiento de coagulación-floculación (como el caso del cloruro de hierro III, también recogido en la lista de sustancias permitidas en el tratamiento de aguas de consumo humano dentro del Anexo II del RD 140/2003).
- *Floculantes*: como la poliacrilamida, poliamida, el acrilato sódico, el cloruro de acriloxi-etil-trimetil-amonio o el cloruro de polialuminio entre otros.
- *Alcalinizantes*: como la cal viva (óxido de calcio) o la cal apagada (hidróxido de calcio) utilizados en procesos de ablandamiento de agua.
- *Restos de desinfección*: entre ellos pueden estar aquellos restos de productos químicos utilizados en la producción del desinfectante como es el caso del clorito (usado para la producción de dióxido de cloro), el NaClO_2 (empleado en la formación de ClO_2), nitritos de la cloraminación (NO_2^- generado en la formación de cloramina), etc. También en esta categoría se encuentran los llamados subproductos de desinfección (DBPs) que son aquellos productos generados por la reacción de la materia orgánica del agua con el desinfectante empleado en el tratamiento de desinfección (generalmente cloro), entre ellos los haloacetoneitrilos, haloaldehídos, halocetonas, ácidos haloacéticos y trihalometanos, siendo estas dos últimas familias los DBPs que despiertan más interés por ser los más presentes en agua potable y por la catalogación de algunos de ellos como potencialmente cancerígenos (Hua *et al.*, 2015; Singer, 1994).

1.2. POTABILIZACIÓN DE AGUAS

1.2.1. Reseña histórica

A lo largo de la historia, el ser humano siempre se ha asentado en zonas geográficas con abundancia de agua por la importancia que ésta tiene en la actividad humana, sobre todo para la agricultura, aunque también como vía de comunicación. De ahí que las primeras civilizaciones surgieran en las orillas de ríos y lagos, como el caso de Mesopotamia, en el valle de los ríos Tigris y Éufrates, y Egipto en torno al Nilo. Es con el crecimiento demográfico cuando algunas civilizaciones se ven obligadas a ocupar otras zonas y captar aguas de lluvia y subterráneas para abastecerse.

Aunque ya en la antigüedad comenzaban a desarrollarse sencillos sistemas de transporte y distribución de agua (canales excavados en roca o arena y tubos huecos procedentes de troncos de árboles o bambú), no fue hasta la época romana cuando se avanzó verdaderamente en el abastecimiento y tratamiento del agua, construyen los primeros acueductos (312 a.C.) y otras obras hidráulicas como presas, ruedas hidráulicas, cisternas de almacenamiento, sistemas de alcantarillado y usando la aireación para la purificación del agua. Sentadas estas bases, con el tiempo llegó el primer sistema de suministro de agua potable (Escocia de 1804), la mayor planta de tratamiento de agua (París de 1806) y el primer filtro de arena (1827, por James Simplón).

Pero en 1854, cuando todas las casas de Londres ya disponían de agua procedente del Támesis gracias a una red de abastecimiento, una epidemia de cólera causó la muerte de centenares de personas en pocas semanas. John Snow, un médico inglés considerado el precursor de la epidemiología, descubrió que la causa de aquella epidemia estaba en el bombeo de agua contaminada con materias fecales en un pozo de Broad Street. Gracias a su contribución, a partir del s. XIX se introdujo la desinfección del agua potable (filtración y cloración), considerado uno de los grandes logros en cuestiones de salud pública (Wigle, 1998) ya que la disminución de la mortalidad global se ha atribuido a la producción de agua potable con cloración continua junto con filtración previa tras un siglo desde la instauración de este modo de desinfección (Bencko y Kožíšek, 2009).

Sin embargo, posteriormente se han ido descubriendo ciertos aspectos negativos de la desinfección que han intensificado la preocupación general en los últimos años por la relación entre la ingesta de aguas cloradas con el riesgo de padecer cáncer de vejiga como informan varios estudios (Clark y Goodrich, 1986; Attias *et al.*, 1995), siendo los productos de desinfección una de las causas principales de esta potencial amenaza para la salud (Gopal *et al.*, 2007). Además, la cloración presenta de algunas limitaciones puesto que a pesar de que el cloro se usa a nivel mundial en la desinfección del agua potable, los brotes de enfermedades

hídricas siguen repitiéndose (Schoenen, 2002). Esto puede indicar que, si la desinfección es incorrecta o se prescinde de un proceso eficaz en la eliminación de patógenos, los riesgos contra la salud pueden continuar existiendo, aunque en menor grado.

1.2.2. Tratamiento convencional

Aunque podría darse que una fuente natural de agua cumpliera con los criterios de calidad de un agua de consumo humano, no es lo más habitual. Normalmente el agua captada debe ser tratada para su potabilización y este proceso se lleva a cabo en una estación de tratamiento de agua potable (ETAP). Ésta puede tener múltiples configuraciones en función de la calidad del agua de origen y de la calidad final deseada, pero las etapas más comunes con las que suele contar una ETAP, destinadas en su mayoría a eliminar o reducir las propiedades organolépticas no deseables del agua, son:

- *Captación*: el agua bruta es captada mediante el sistema más adecuado (toma directa, toma sumergida, plataforma fija o flotante, aljibe, pozos excavados, sondeos, etc) en función de la fuente hídrica de la que se trate, el volumen requerido, la distribución temporal de la demanda o las características hidrogeológicas del sector, entre otros. Como dato remarcable, en España el agua bruta es captada en un 74% de aguas superficiales, el 22% de aguas subterráneas y manantiales, y tan sólo el 4% de desalación (Morcillo, 2014).
- *Desbaste*: este proceso físico tiene por objeto proteger la estación de grandes sólidos o materiales voluminosos que traiga el agua bruta y que puedan provocar obstrucciones o daños en algún punto de la instalación mediante una reja de gruesos, típicamente inclinada y con unos 10 cm de espaciado.
- *Desarenado*: el objetivo de este tratamiento es sedimentar las arenas, grava y demás partículas minerales que van suspendidas en el agua para evitar dañar las bombas y el resto de la instalación. Este proceso se lleva a cabo en un desarenador que puede ser de flujo horizontal (convencional), de flujo vertical o de vórtice. Son necesarios cuando el agua se capta de una corriente de agua superficial (río, arroyo...).
- *Oxidación química*: este tratamiento pretende eliminar sustancias reductoras (orgánicas e inorgánicas) disueltas en el agua y que pueden ser generadoras de olores, sabores y en ciertos casos color. También es adecuado para realizar una desinfección química. Entre los compuestos habitualmente más empleados están el cloro y sus derivados o el ozono, siendo posible también el uso de otros como el peróxido de hidrógeno o permanganato potásico.

- *Coagulación-floculación*: este proceso físico-químico no siempre es necesario en una ETAP pero suele ser habitual en aguas donde se desea reducir o eliminar el contenido en partículas coloidales que, debido a su pequeño tamaño y a su estabilidad, no pueden ser eliminadas de manera eficiente mediante sedimentación. Se emplea un coagulante (normalmente un derivado de Fe^{3+} o Al^{3+}) para romper el equilibrio coloidal y que se puedan formar flóculos que posteriormente sean fáciles de eliminar por procesos físicos sencillos. El proceso puede coadyuvarse por un reactivo floculante, cuya misión es facilitar la formación de grandes flóculos más fácilmente eliminables.
- *Decantación*: esta etapa promueve la separación de las partículas sólidas del agua por acción de la gravedad y se lleva a cabo en un decantador (estático, por contacto de fangos o lamelar).
- *Filtración*: para clarificar el agua ésta se hace pasar a través de un medio filtrante, generalmente arena silíceo, que permite el paso del agua pero retiene las partículas sólidas. Este proceso mejora la calidad estética del agua y también permite la retención de ciertos grupos microbianos. La filtración puede ser por gravedad o por presión.
- *Desinfección final*: tiene como objetivo aportar al agua el carácter biocida residual para evitar rebrotes o contaminación en la red de distribución. La Tabla 3 recoge los desinfectantes más utilizados para ello, destacando en su empleo el cloro y sus derivados.

Tabla 3: Desinfectantes más comunes, ventajas e inconvenientes de su uso (adaptación de Chowdhury *et al.*, 2009; IMTA, 2005).

Desinfectante	Aplicación	Manejo	Costo	Limitaciones
Cloro	Muy común	Sencillo	Inversión baja; Mantenimiento medio	Generación de subproductos
Cloramina	Común	Sencillo	Inversión media; Mantenimiento medio	Poder desinfectante limitado
Hipoclorito	Común	Sencillo	Inversión baja; Mantenimiento medio	Generación de subproductos
Dióxido de cloro	Ocasional	Complejo	Coste alto; Mantenimiento bajo	Generación de subproductos
Ozono	Común	Complejo	Coste de operación alto	Escaso poder residual

El esquema general de una ETAP convencional seguiría una línea de tratamiento como la que se muestra en la Figura 2, y en ese orden para ir eliminando los sólidos del agua desde los más voluminosos a los más finos. En primer lugar se retiran los sólidos más gruesos en el desbaste; seguidamente, con la coagulación-floculación se pretende formar aglomerados de las materias más pequeñas que por sí solas no serían fácilmente sedimentables, para posteriormente decantarlas que es un proceso sencillo y económico; después se clarifica el agua con la filtración de la misma y finalmente se añade un desinfectante químico para dar un carácter residual a la desinfección que permanezca durante el almacenaje y distribución del agua potable.



Figura 2. Línea de tratamiento de una ETAP convencional.

Además de estas etapas, en las ETAPs pueden introducirse otros tratamientos más específicos o avanzados como los que se recogen en la Tabla 4 según el parámetro que se necesite eliminar o, al menos, reducir.

Tabla 4: Tratamientos específicos para mejorar la calidad del agua (Pérez Recuerda, 2000; Ortiz Mingo, 2015).

Parámetro a eliminar	Tratamiento
Olor y sabor	Oxidación / Carbón activo
Gases (en exceso)	Aireación
pH	Neutralización
Microplancton	Tamizado
Amonio:	
concentraciones altas	Arrastre por aireación
concentraciones bajas	Cloración
Nitritos	Cloro / Ozono
Nitratos	Intercambio iónico / Desnitrificación biológica / Ósmosis inversa / Electrodiálisis
Hierro:	
concentraciones altas	Oxidación biológica o química / Decantación y filtración
concentraciones bajas	Aireación-filtración, tratamientos biológicos
Manganeso	Oxidación química o biológica
Dureza	Resinas de intercambio iónico (“ablandadores”); Precipitación química
Sulfatos y cloruros	Electrodiálisis / Ósmosis inversa
Detergentes	Carbón activo / Oxidantes avanzados
Pesticidas	Carbón activo / Oxidaciones avanzadas
Color	Oxidación / Ozonización / Adsorción / Coagulación-floculación
Turbidez	Coagulación-Floculación+Decantación+Filtración / Membranas
Patógenos (virus, bacterias, protozoos)	Desinfección química / Coagulación+Filtración / Membranas
Materia orgánica	Coagulación-Floculación / Oxidación química/ Biofiltración / Carbón activo

1.2.3. Potabilización con membranas

Las membranas tienen diversas aplicaciones en distintos campos como la medicina, en la industria alimentaria o en la industria farmacéutica entre otros (Madaeni, 1999). Pero una de las aplicaciones más en auge son los tratamientos del agua, concretamente en la potabilización.

La industria del agua potable está cada vez más interesada en la filtración por membranas en sustitución de la filtración tradicional (Jacangelo, 2004). Por ello en este apartado se abarcará en qué consiste una membrana, qué tipologías hay que se apliquen al tratamiento de aguas y sobre todo cuáles son las ventajas y desventajas que presentan esta tecnología frente a la potabilización con tratamientos convencionales.

1.2.3.1. Conceptos de la tecnología de membranas

Una membrana es una película delgada de origen orgánico o inorgánico que actúa de barrera física, siendo permeable a algunos de los componentes de un fluido pero impermeable para otros, de manera que permite realizar una separación selectiva entre el fluido y sus componentes (Madaeni, 1999). Esta operación de separación se produce por la acción de una fuerza (presión) que provoca que una parte de la alimentación atraviese la membrana (permeado) mientras que la otra queda retenida (Figura 3).

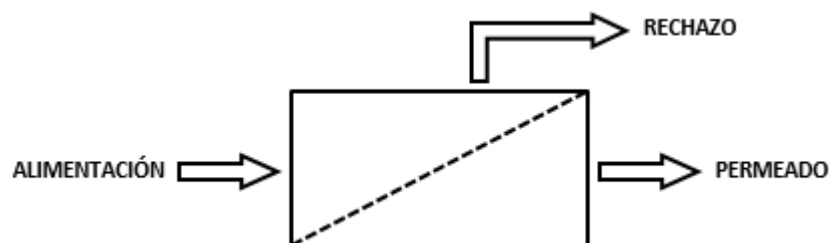


Figura 3: Esquema básico de operación de una membrana.

La estructura de las membranas se compone de dos elementos: la película o superficie activa, que es la responsable del flujo y la selectividad de la membrana (el poro determina el tamaño de exclusión del soluto que quedará retenido), y una capa soporte que le confiere la estabilidad mecánica.

Hay dos factores que determinan la efectividad de un proceso de filtración de membrana: la selectividad y la productividad, características intrínsecas de la membrana. La *selectividad* se expresa mediante un parámetro llamado factor de retención o de separación (expresado en $l/m^2 h$) y la *productividad* se expresa mediante un parámetro llamado flujo (expresado en $l/m^2 h$) que representa la cantidad de

material que pasa por unidad de área de membrana y tiempo. Otros conceptos interesantes en la tecnología de membranas son la *presión transmembrana* (PTM), que cuantifica la diferencia de presión existente entre el lado del material retenido y el del permeado de la membrana; la *permeabilidad*, que representa la facilidad que posee el soluto del agua para pasar a través de la membrana (medida en unidades de $l/m^2 h bar$); la *resistencia de colmatación*, que es una medida del ensuciamiento irreversible de la membrana a consecuencia de la acumulación de material (m^{-1}); la *resistencia de polarización*, que constituye una medida del ensuciamiento reversible de la membrana (m^{-1}); y la *concentración de polarización*, que representa la tendencia del soluto a acumularse en la región interfacial membrana-solución (Judd, 2006).

1.2.3.2. *Tipología de membranas*

El campo de la filtración por membrana ha crecido rápidamente y el mercado ofrece ya una amplia gama de membranas que se detallan a continuación en función de los distintos criterios.

A) *Según mecanismo de separación:*

- Porosas: actúan por exclusión, es decir, impiden el paso de las partículas de tamaño mayor a su poro por efecto criba y permite el paso parcial del resto de partículas y agua.
- Densas o no porosas: no poseen poros, sino que el paso del permeado se produce por difusión entre las cadenas macromoleculares del material de la membrana. Este mecanismo de separación permite una alta selectividad para moléculas e iones, sales y solutos de bajo peso molecular (purificación de aguas) y por ello es de aplicación en ósmosis inversa. A diferencia de los tipos de membranas anteriores, la ósmosis inversa trabaja con presiones de entre 5 y 8 MPa, mientras que la nanofiltración lo hace de 0,5 a 1,5 MPa (Mallevalle *et al.*, 1996).
- De intercambio iónico: también conocidas como membranas de electrodiálisis, son un tipo específico de membranas no porosas de separación electroquímica donde los iones se transfieren a través de la membrana por medio de una tensión o corriente eléctrica continua (Mallevalle *et al.*, 1996.; Taylor y Wiesner, 2002).

B) *Según tamaño de poro:*

- Membranas de Microfiltración: tamaño de poro comprendido entre 2 y 0,1 μm , empleadas fundamentalmente para separación de partículas (clarificación).
- Membranas de Ultrafiltración: tamaño de poro de 0,1 a 0,01 μm , enfocadas a la separación de macromoléculas (procesos de clarificación y desinfección). Este tipo de membranas pueden emplearse de manera satisfactoria en potabilización de aguas (Arnal *et al.*, 2002).

- Membranas de Nanofiltración: tamaño de poro menores a $0,001 \mu\text{m}$, usadas para la separación de iones multivalentes como calcio y magnesio (ablandamiento de aguas) y retención de moléculas.
- C) *Según geometría o configuración:*
- Tubular: la membrana está contenida dentro de un tubo poroso que sirve de soporte. Este tipo son usados cuando se buscan flujos turbulentos pero poseen la desventaja de que el área de filtrado por unidad de volumen es pequeña (Figura 4-C).
 - Placa en bastidor: son membranas de cara plana soportadas en unas placas a modo de bastidor. El fluido circula entre las membranas de dos placas adyacentes (Figura 4-B).
 - Fibra hueca: se compone de un fardo de fibras huecas de un diámetro entre $0,1$ y $0,2 \text{ mm}$ por las que puede circular el fluido a filtrar, bien por dentro o bien por fuera. Su desventaja radica en la baja producción (Figura 4-D).
 - Arrollada en espiral: consta de dos membranas planas separadas por una hoja flexible que hace de colector de permeado que están selladas por tres de sus cuatro bordes y envueltas en forma de rollo. El único borde abierto es el conectado a un tubo que transporta el permeado (Figura 4-A).

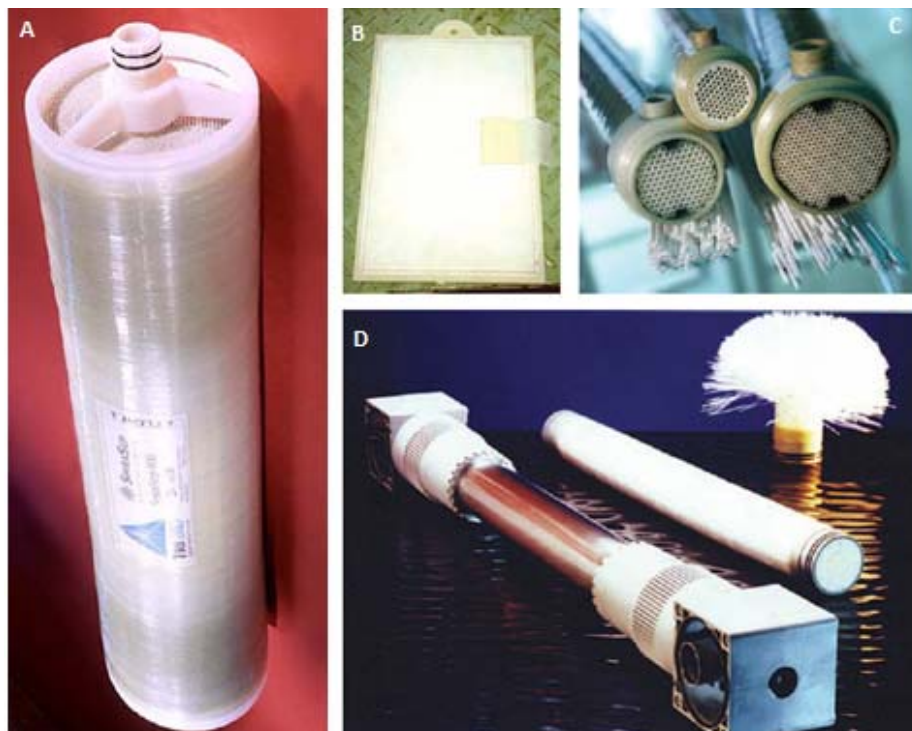


Figura 4: Tipologías de membranas según geometría: arrollada en espiral (A), placa en bastidor (B), tubulares (C) y de fibra hueca (D). Fuentes: TriSepCorporation y Judd (2006).

D) Según naturaleza química del material:

- Orgánicas: son aquellas en las que la película o capa activa se fabrica a partir de polímeros de tipo orgánico como la celulosa y sus derivados, las poliamidas, polietileno (PE), poliacrilonitrilo (PAN), polivinilideno (PVDF), polipropileno (PP), polisulfonas (PS), polietersulfonas (PES), etc.
- Inorgánicas: éstas comprenden las membranas cerámicas, generalmente fabricadas de alúmina; las membranas de vidrio; las de fosfocenos, que soportan altas temperaturas; y las de óxidos metálicos.

E) Según estructura:

- Isotrópicas: aquellas membranas que presentan una estructura homogénea en cuanto a su composición, distribución de poros y demás propiedades. Actúan simultáneamente como medio filtrante y como soporte, por lo que su espesor mínimo es de 20 mm.
- Anisotrópicas: en ellas sus propiedades cambian en función del espesor. Normalmente consta de una parte filtrante densa soportada por un medio poroso, consiguiendo así espesores de la parte filtrante por debajo de los 20mm.

F) Según morfología:

- Simétricas: membranas que cuentan con una estructura homogénea del material motivado por el método empleado en su fabricación.
- Asimétricas: este tipo de membrana posee una estructura asimétrica con respecto al material que la compone. La invención de esta tipología supuso una verdadera revolución ya que presenta la ventaja de proporcionar flujos superiores a los de las membranas simétricas en las mismas condiciones de operación.

1.2.3.3. Potabilización de aguas con membranas

El empleo de la tecnología de membranas para la producción de agua potable está siendo cada vez más una alternativa a las técnicas convencionales (Jacangelo, 2004). El hecho de usar este tipo de filtración supone una ventaja en lo que respecta a la línea de tratamiento convencional de una ETAP y es que, al usar la membrana como medio de filtración, pueden sustituirse las etapas de decantación y filtración de un sistema convencional. Esta diferencia puede apreciarse al compararse las líneas de tratamiento representadas la Figura 5 (con tecnología de membrana) y la Figura 2 (tratamiento convencional).

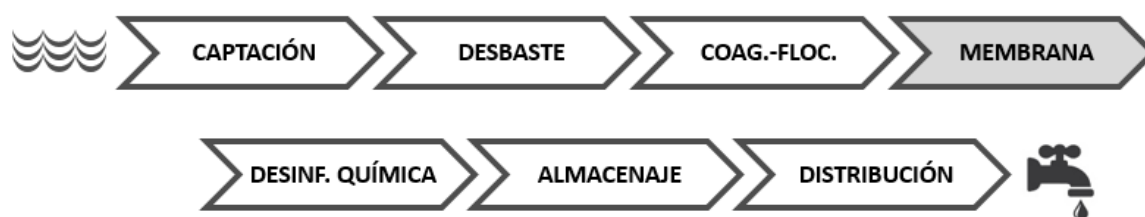


Figura 5. Línea de tratamiento de una ETAP con tecnología de membranas.

La eliminación de estas etapas hace que los tiempos de potabilización se reduzcan al no contar con la decantación, aunque sí que hay que prestar atención a la velocidad de colmatación de la membrana que recoge los flóculos formados en la fase previa. Las ventajas y desventajas que presenta esta tecnología frente a los tratamientos convencionales se detallan más ampliamente en el siguiente apartado.

Prueba de que la tecnología de membranas se está implementando cada vez más en la potabilización de agua es la existencia de ETAPs con dicha tecnología por todo el mundo y con capacidades de producción significativas en muchos casos. Por ejemplo, Zheng *et al.* (2012) señalan que en un país de tanto peso como es China, debido a que sufre una gran contaminación de sus aguas superficiales, los procesos de membrana de baja presión están ganando terreno a las plantas de tratamiento convencional, con mayor cuota de mercado en las plantas de gran capacidad y mayor población. Otro ejemplo es el caso de Alemania, con una creciente implantación de plantas con tecnología de membranas, contando actualmente con 91 ETAPs de ultrafiltración y una capacidad total de 14343 m³/h (Lipp, 2014). Países como EEUU o Rusia también tienen plantas con esta tecnología, destacando la de Twin Oaks Valley en San Diego (California) de una producción de 100 MGD (casi 400000 m³ diarios) que incorpora membranas de UF a baja presión entre otros tratamientos (Currey *et al.*, 2007); y la de Moscú, con 1344 módulos de ultrafiltración que pueden producir hasta 275000 m³/día (Khramenkov y Schröder, 2011).

También España cuenta con algunas plantas de tratamiento donde se ha implantado la tecnología de membranas. Uno de los casos más destacados es la ETAP de Sant Joan Despí (Barcelona), cuyas instalaciones fueron mejoradas en el año 2009 con membranas de ultrafiltración y ósmosis, llegando a una capacidad de producción máxima de 120 hm³ de agua potable al año y abasteciendo a casi 3 millones de personas (Aigües de Barcelona, 2015). Una muestra de una instalación con membranas y de larga trayectoria de funcionamiento, aunque de producción más modesta que los ejemplos anteriores (15000 m³/día), es la planta de desalinización por ósmosis inversa de Ceuta, en la que el uso de pretratamientos y desinfección

química hizo posible mantener en servicio las membranas de ósmosis inversa durante 8 años (Fernandez-Álvarez *et al.*, 2010).

A la vista de estos casos reales donde se han instalado plantas potabilizadoras con membranas en grandes países y con una producción de agua capaz de abastecer a millones de personas, se puede afirmar que esta tecnología es más que satisfactoria, incluso necesaria en muchos casos para cumplir con los estándares de calidad del agua potable, por lo que se puede augurar un futuro próspero que se irá desarrollando e implantando cada vez más en el resto de países.

1.2.3.4. Ventajas e inconvenientes de los procesos de membrana

Desde la década de los 60, el uso de la tecnología de membranas aplicada al tratamiento de aguas ha ido experimentando un aumento considerable y cada vez más se plantea como una alternativa a los métodos convencionales (Jacangelo, 2004). El motivo de que se plantee como alternativa a los métodos convencionales viene por las numerosas ventajas que presentan los procesos de membrana, entre ellas:

- *Diseño compacto*: los procesos de membrana son significativamente más compactos que los procesos convencionales (Mallevialle *et al.*, 1996), lo que supone un ahorro del espacio necesario en la instalación y mayor facilidad de manejo.
- *Adaptabilidad y automatización*: debido a que los sistemas de membrana son modulares, su adaptación en cualquier instalación es cómoda y factible, y su proceso es de fácil automatización (Arnal *et al.*, 2004), pudiendo incluso ser usadas en catástrofes, zonas rurales aisladas o en países en vías de desarrollo para garantizar la producción de agua segura como prueban algunos estudios (Arnal *et al.*, 2001; 2002; 2006).
- *Aplicables en desinfección física*: La tecnología de membranas es una alternativa interesante a la desinfección tradicional o química (Rojas *et al.*, 2010; Gómez *et al.*, 2006; Arnal *et al.*, 2002 y 2004) ya que realiza esta misma función pero de una manera física, evita alteraciones organolépticas del agua y puede alcanzar una retención del 100% de las bacterias, independientemente del material de la membrana, características del agua de alimentación y otros factores. Con los procesos de membrana se pueden controlar por tanto los microorganismos presentes en el agua, algunos de los cuales son resistentes a los desinfectantes tradicionales (Jacangelo, 2004; Rojas *et al.*, 2010). Esto deriva en otra ventaja ya que, si el inconveniente de la cloración es la formación de algunos subproductos de desinfección (Mancini *et al.*, 2005), el eliminar o reducir el empleo de una desinfección química repercute directamente en una disminución del riesgo de generación de DBPs.

- *Producción constante y de calidad:* una de las mayores ventajas de esta tecnología es que pueden producir un flujo constante de permeado y con una calidad alta para la mayoría de los parámetros. En concreto la ultrafiltración cumple con muchos de los estándares de calidad, especialmente con los referentes a turbidez, materia particulada y microorganismos (Álvarez-Arroyo *et al.*, 2015; Rojas-Serrano *et al.*, 2015a; Mierzwa *et al.*, 2008).
- *Separación a baja temperatura:* en los procesos de membrana la separación tiene lugar a temperatura ambiente sin cambio de fase (Mallevalle *et al.*, 1996), lo que representa una ventaja frente a otras operaciones donde se necesita una fuente de calor (energía) para que se produzca la separación como la destilación o la desalinización por evaporación.
- *Coste rentable:* aunque en el pasado se consideraba que la tecnología de membranas implicaba altos costes, sobre todo por el elevado coste de la instalación y el reemplazo de la membrana (Gómez *et al.*, 2007), una visión más global y sostenible ha hecho que se considere que esta tecnología tiene un coste competitivo y efectivo debido al tremendo potencial de las membranas (Taylor y Wiesner, 2002). De hecho, según Redondo y Lanari (1997), las plantas de membranas son unas de las maneras más económicas de potabilización de aguas cuando son diseñadas y operadas correctamente. Lo que sí es cierto es que para determinar el coste general es necesario tener en cuenta todos los factores, no sólo los meramente técnicos (costes de la membrana, energéticos, de instalación, etc.) sino también otros costes indirectos, medioambientales y jurídicos. Por ejemplo, Reith y Birkenhead (1998) afirmaron que la reutilización del agua produce unos beneficios indirectos y una reducción de los costes operacionales, particularmente los químicos. En la investigación de Mierzwa *et al.* (2008) se detalla que, aunque las membranas enrolladas en espiral son más baratas que las de fibra hueca, los costes energéticos son mayores en las primeras porque necesitan más presión para operar. Esto indica que hasta el tipo de membrana puede hacer variar los costes. Igualmente, la existencia de un pretratamiento también puede influir en la vida útil de la membrana. Además, el incremento de la presión jurídica que regula el tratamiento de aguas potables y residuales así como la necesidad de explotar recursos hídricos de peor calidad por la creciente demanda (Mallevalle *et al.*, 1996), también contribuyen de una manera u otra a este balance de costes tan heterogéneo.

Sin embargo, a pesar de todas las ventajas ya mencionadas, la tecnología de membranas presenta también ciertos problemas. Aquellos referentes a la colmatación de la membrana son los inconvenientes que más preocupan, aunque existen otros más. Aquí se enumeran las desventajas más destacadas de esta tecnología:

- *Ensuciamiento*: una de las principales limitaciones es el ensuciamiento que sufre la membrana durante su operación. Se produce por adsorción o deposición de compuestos, generalmente coloides, de naturaleza orgánica, inorgánica y/o biológica. Estos compuestos se van acumulando en su superficie produciendo pérdidas de prestaciones en los parámetros de la membrana, como puede ser una reducción del flujo de permeado y/o un aumento de la PTM. Para el control y la eliminación del ensuciamiento en membranas se recurre a distintas técnicas, entre ellas el uso de pretratamientos, burbujeo de gas, lavados en contracorriente (contralavados con permeado) o limpiezas, lo que suponen en muchos casos menos rendimiento del proceso (Tijing *et al.*, 2015; Pellegrin *et al.*, 2012).
- *Atascamiento*: durante los procesos de filtración de membrana la obstrucción de los poros de la membrana es inevitable, incluso con un pretratamiento. Las oclusiones se producen porque durante la operación se va depositando material sólido no sólo en la superficie de la membrana sino también dentro de su estructura por distintos mecanismos físico-químicos y biológicos donde influyen factores como la calidad del agua de alimentación, el tipo y material de la membrana (poro y superficie específica), el diseño y control del proceso, etc. Este taponamiento de los poros de la membrana se traduce en problemas de aumento de PTM y disminución de la productividad (Iritani, 2009; Smith *et al.*, 2006).
- *Baja efectividad en retención de MON*: éste es el principal inconveniente en la aplicación de las membranas de ultrafiltración en la producción de agua potable (Rojas *et al.*, 2010; Y. Zhang *et al.*, 2015). Este inconveniente puede solventarse o al menos mejorarse con el empleo de pretratamientos (Maeng *et al.*, 2015), siendo la coagulación uno de los que mejores resultados ofrece con diferencia en cuanto a la calidad del permeado obtenido, así como al control de la PTM (Rojas *et al.*, 2010).
- *Polarización de la concentración*: a veces, cuando la filtración es tangencial, aparecen gradientes de concentración en la capa adyacente a la membrana. Este fenómeno puede influir fuertemente en la selectividad de la membrana, disminuir el flujo de permeado y la eficiencia de la operación (Déon *et al.*, 2013), pero puede solventarse optimizando las condiciones de trabajo (Jang *et al.*, 2015; Asadi Tashvigh *et al.*, 2015; Ochando-Pulido *et al.*, 2014).

1.3. REDES DE DISTRIBUCIÓN

1.3.1. Tipología de redes

Un sistema de distribución de agua potable se define como el conjunto de instalaciones necesarias para transportar el agua desde el punto/os de captación hasta el punto de suministro del consumidor. Por tanto, este sistema comprende equipos de bombeo, tuberías, depósitos y la red de distribución.

Este trabajo de investigación se centra en las redes de distribución, es decir, la red que transporta el agua de abastecimiento desde la salida de la planta o depósitos hasta los puntos de consumo. Los elementos que integran una red de distribución son por tanto los depósitos de alimentación, depósitos de regulación, bombes, conducciones o tuberías, accesorios, sistemas de control y otros elementos singulares.

Una red de distribución consta de las siguientes partes o ramales, en orden de diámetro decreciente por lo general:

- *Red de transporte*: constituida por las conducciones que transportan el agua desde la ETAP, depósitos de regulación o estaciones de bombeo y que alimenta a la red arterial. No se permite que desde la misma se realicen acometidas para los suministros, bocas de riego o tomas contra incendios.
- *Red arterial*: formada por las conducciones que enlazan diferentes sectores de la zona abastecida. Tampoco se permite en este punto realizar acometidas para los suministros, bocas de riego y tomas contra incendios.
- *Red secundaria*: integrada por las conducciones que se conectan a la red arterial y de las que se derivan, en su caso, las acometidas para los suministros, bocas de riego y tomas contra incendios.
- *Acometidas*: enlazan la red pública con la instalación interior del inmueble que se pretende abastecer.

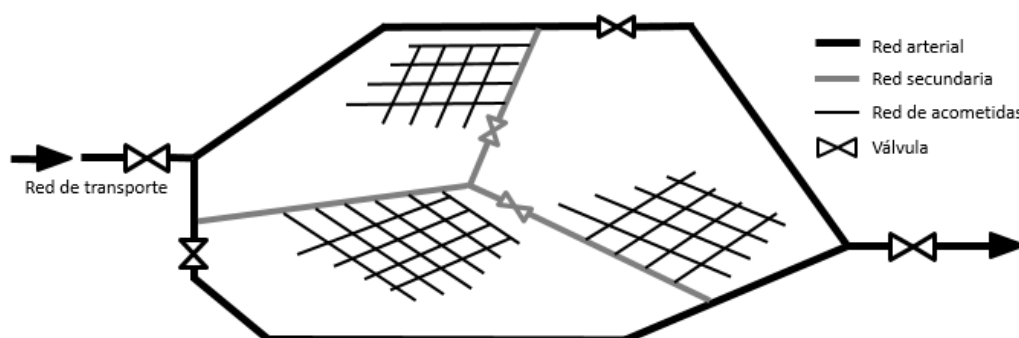


Figura 6: Tipología de redes que conforman una red de distribución de agua potable.

Según la tipología, las redes de distribución pueden ser malladas (tuberías dispuestas de forma reticular y donde un punto de consumo tiene varias vías de flujo), ramificadas (de una tubería principal derivan ramales independientes y cada punto de consumo recibe agua por una única vía) o mixtas. Por norma general las redes de distribución deben ser malladas y deben disponer de mecanismos adecuados que permitan su cierre por sectores. Este diseño mallado elimina en la medida de lo posible zonas estancadas, evitando así la contaminación o el deterioro del agua distribuida (Canal de Isable II Gestión, 2012). Pero cuando por razones justificadas esto no es posible, se instalan ramales abiertos con una válvula de seccionamiento al inicio y una boca de riego al final. También hay redes malladas con subsistemas ramificados, lo que se conoce como red mixta (Figura 7). Además, el trazado de las tuberías de abastecimiento siempre se hace lo más recto posible.

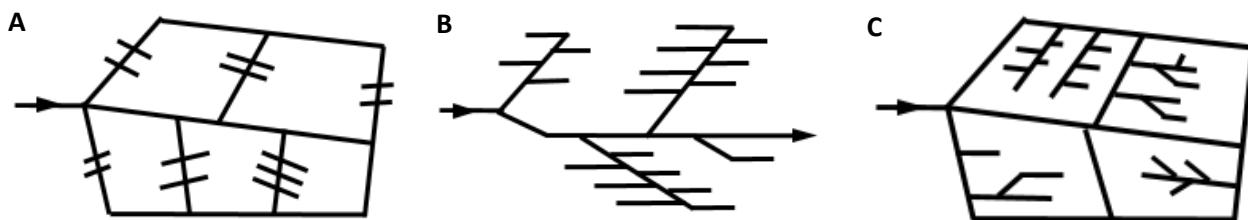


Figura 7: Tipologías de redes de distribución: mallada (A), ramificada (B) y mixta (C).

Aparte de la tipología de la red, las redes de distribución se diseñan en base a determinados criterios de consumo y de presión de servicio que deben cumplirse para cubrir las necesidades del consumidor. Pero aparte del dimensionado de la red, que proporcionará los valores oportunos de diámetro de tubería y demás parámetros de diseño, también debe seleccionarse los materiales de las tuberías que suelen depender del tramo de la red de abastecimiento de la que se trate. Los principales materiales para la red de tuberías son hormigón armado, fundición dúctil, acero, polietileno (PE) y policloruro de vinilo (PVC), siendo los primeros los más usados en las conducciones principales y los materiales plásticos más propios en los ramales o acometidas.

Los materiales empleados en todos los componentes de la red no deben producir alteración alguna en las características físicas, químicas y microbiológicas del agua. Y es aquí donde radica la importancia de los materiales de las tuberías, puesto que existen investigaciones que evalúan el tipo y niveles de sustancias químicas que migran desde los materiales de las tuberías al agua potable, pudiendo afectar a la calidad del agua y suponer efectos adversos para la salud humana aún no descritos (Stern y Lagos, 2008). Entre estas sustancias se encuentran trazas de compuestos metálicos como Fe, Ni y Pb procedentes de materiales metálicos típicos en tuberías y demás elementos de fontanería (Veschetti *et al.*, 2010); diversos productos de degradación de antioxidantes empleados como aditivos en tuberías plásticas (Löschner *et al.*, 2011);

sustancias minerales y orgánicas procedentes de tuberías de materiales a base de cemento (Soukatchoff *et al.*, 2001); y sustancias orgánicas, fenólicas y polímeros migradas desde tuberías plásticas, especialmente en sistemas de agua caliente (Hametner, 1999; Forslund *et al.*, 1991).

1.3.2. Gestión de redes

La gestión de los recursos hídricos es un tema fundamental en lo que se refiere a la sostenibilidad del agua y a la economía de un ente. Puesto que el agua es un bien finito y esencial para la vida, hay que preservarla, cuidarla y usarla en su justa medida y con responsabilidad. Por tanto, debe ser gestionada de una manera eficiente. Esto, aplicado al caso de las redes de distribución, significa que la función objetivo de la gestión de redes es minimizar las pérdidas de agua en la medida de lo posible, intentado conseguir que el máximo volumen de agua que entra en la red llegue a los puntos finales de consumo. Además, se deberá velar por la seguridad y salud del consumidor cumpliendo con los criterios de calidad sanitarios establecidos en la legislación vigente.

Según datos del Observatorio de la Sostenibilidad en España, prácticamente el 26% del agua suministrada a las redes de abastecimiento públicas corresponden a volumen de agua no registrada, correspondiendo el 17,5% a pérdidas reales causadas por fugas, roturas y averías, y el 8,4% restante a errores de medida, fraudes u otras causas (Durán y Moral, 2015).

Las pérdidas de agua en las redes de distribución causan costes elevados, tanto costes de producción (potabilización, transporte, distribución...) como costes medioambientales (contaminación, escasez de recursos, problemas de salud...). Y también causa daños a terceros por la parada del servicio.

A lo largo de la vida útil de la red de distribución, ésta puede sufrir un deterioro que haga que sus capacidades de transporte hidráulico disminuyan. En largos periodos de servicio muchos factores pueden provocar fisuras en las tuberías que generan pérdidas volumétricas de agua irrecuperable, disminución en la capacidad de transporte, contaminación de las aguas, y sobre todo costes extraordinarios para la reparación de la tubería. Además, un factor que juega en contra es que estas pérdidas son difíciles de visualizar, por ello es necesario que la gestión de redes establezca un plan para su mantenimiento que contrarreste el deterioro producido por el uso en el tiempo.

El plan de mantenimiento de las tuberías debe recoger aquellas operaciones habituales, y por tanto periódicas, que se realizan con la finalidad de conservar la red y retardar o corregir su deterioro, así como los procedimientos para la correcta recuperación de la red.

Existen cuatro tipos de mantenimiento que se llevan a cabo en las redes de distribución, que son:

- *Preventivo*: se caracterizan por ser acciones previamente programadas y su objetivo es evitar un daño mayor en la red que suponga el corte del suministro, buscando en todo caso alargar la vida útil y el correcto funcionamiento de los elementos que constituyen la red de distribución. Básicamente son labores de inspección y seguimiento de los elementos de las redes más susceptibles de experimentar fallo como detección de fugas y filtraciones (mediante caudalímetros, geófonos, cámaras térmicas, ultrasonidos y otros dispositivos), muestreo (para el control de calidad, regulado por el Art.17 del RD 140/2003), limpieza de la red (mediante llenado total de la tubería y arrastre) y desinfección de la misma (se realizará cuando se sospeche de su contaminación y requiere vaciar la tubería, llenarla con una solución de cloro de 25 mg/L que permanecerá entre 24 y 48 h y volver a llenarla con agua potable, dejando la tubería fuera de servicio todo ese tiempo). Con el mantenimiento preventivo los daños a terceros son siempre menores pues el tiempo que el elemento no está en uso siempre será menor que el necesario en caso de fallo y además se puede avisar a los usuarios para reducir las molestias. Referente a la limpieza de la red, es interesante nombrar el método “ice-pigging”, una técnica bastante novedosa capaz de conseguir una limpieza eficiente sin dañar las tuberías usando para ello una suspensión hielo-agua que puede fluir por cualquier topografía y pudiendo garantizar la calidad del suministro de agua (Candy et al., 2010; Quarini et al., 2010; Quarini, 2002).
- *Correctivo*: se realiza después de un fallo o rotura en el sistema, normalmente reparaciones de pequeñas fugas o averías. El tiempo de reparación dependerá del daño que se haya producido y la complejidad de la solución a adoptar. Si la avería se produce en una tubería pequeña puede emplearse alguna abrazadera, manguito o acoplamiento, pero si es de grandes dimensiones se optará por la sustitución del tramo afectado.
- *Rehabilitación*: para restaurar la capacidad hidráulica de una tubería porque haya sido afectada negativamente por corrosión en su interior, disminución de diámetro, aumento de rugosidad, filtraciones, etc. Normalmente requiere la apertura de la zanja para la intervención, aunque hay otros métodos más actuales que permiten restaurar la tubería sin necesidad de obra civil (por ejemplo, recubriendo las paredes internas de la tubería con un material plástico). Para evitar molestias a los usuarios, suele hacerse un by-pass durante las operaciones de rehabilitación.
- *Renovación*: cuando la red está seriamente dañada es recomendable su renovación para evitar innumerables fallos o roturas, los costes de reparación y las molestias para los consumidores. También en muchos casos la antigüedad de las redes hace aconsejable la renovación. Según los

datos publicados por la Asociación Española de Abastecimiento de Agua y Saneamiento (AEAS), más del 30% de las redes de abastecimiento en España tienen una antigüedad superior a 30 años. Si se repara en su composición, dichas redes están compuestas por tuberías de fibrocemento (más del 30%) y acometidas de plomo (más del 9%), materiales cuya instalación no está permitida actualmente.

La gestión de los sistemas de abastecimiento es competencia de las entidades locales, sin embargo, en determinadas ocasiones se realizan concesiones privadas. El ente responsable, sea público o privado, es el encargado de las funciones propias de gestión: planificación, control y organización del sistema de redes de abastecimiento.

1.3.3. Contaminación de aguas en redes de distribución

Un punto clave en la calidad del agua es la red de distribución, ya que, aunque el agua haya sido tratada de una manera correcta y eficiente para su potabilidad en la ETAP, durante el transcurso del agua por la red puede sufrir una pérdida de calidad por diferentes formas de contaminación entre las que destacan como más significativas las biopelículas o problemas asociados a éstas y los subproductos de desinfección.

1.3.3.1. Biopelículas

Desde principios de los años setenta, distintos estudios científicos evidencian la existencia de una pérdida de calidad del agua a lo largo de su recorrido por la red de abastecimiento (Knobelsdorf y Mujeriego, 1997). La presencia de microorganismos, responsable en gran parte de esa pérdida de calidad, se debe a que las redes de distribución son sistemas abiertos y están influenciados tanto por el agua que reciben de las ETAP y de los depósitos de almacenamiento como por la posible contaminación procedente de las interconexiones de la red o de las roturas y reparaciones que ésta sufra.

Cuando las células microbianas se adhieren a las paredes de la tubería del sistema de distribución se forma lo que se conoce como biopelícula. Este término ha sido definido de diferentes maneras pero una de las más generalizadas, y aplicable por ello a diversos campos (medicina, industria, ecología...), es la que define la *biopelícula* como “células microbianas unidas a un sustrato e inmovilizadas en una matriz tridimensional de polímeros extracelulares que permiten la formación de un ecosistema de funcionamiento independiente, regulado homeostáticamente” (Percival *et al.*, 2010). Hoy en día es una realidad que las biopelículas representan la forma más exitosa de vida (Lasa *et al.*, 2005). Tanto es así que en la literatura científica se pueden encontrar cifras como la de Nazar C. (2007), que estima que el 99% de todas las células bacterianas

existen en calidad de biopelícula y tan sólo un 1% vive en estado planctónico, o la de Momba *et al.* (2000), que llegan a establecer que por cada bacteria planctónica se detectan cerca de 1000 organismos presentes en forma de biopelícula.

Como se menciona en la definición, la matriz está formada por sustancias poliméricas extracelulares (EPS). Los EPS, compuestos principalmente por polisacáridos, supone de un 50 a un 90% del carbono orgánico total de la biopelícula (Donlan, 2002) y son producidos y excretados por los propios microorganismos que la componen. Esta matriz sirve tanto para aislar a los microorganismos del medio como para separar microcolonias de diferentes organismos celulares, formándose así canales de agua que permiten la difusión de nutrientes, oxígeno y agentes antimicrobianos.

Se dice que la estructura de una biopelícula es dinámica. Esto es porque la biopelícula sufre continuamente procesos de crecimiento y de desprendimiento. Pero hay una cosa que no cambia: una biopelícula como tal siempre está compuesta por una población bacteriana heterogénea (el 15% aproximadamente de la biopelícula) y una matriz de productos extracelulares (un 85%).

La población microbiana de una biopelícula es diversa y heterogénea. Esto puede estar influido por la existencia de una gran variedad de microambientes. Un ejemplo es el gradiente de concentración de oxígeno creado desde la parte superficial (aerobia) hasta la más interna pegada a la superficie (anaerobia). Este gradiente puede ser uno de los factores que favorezca la heterogeneidad microbiana ya que la supervivencia y crecimiento de las bacterias dependerá de los requerimientos específicos de cada una de ellas. Referente a este aspecto cabe destacar que la diversidad bacteriana en la biopelícula proporciona una mayor protección frente a la desinfección química (Schwering *et al.*, 2013; Simões *et al.*, 2010), con el consecuente problema de resistencia a este tipo de tratamiento.

La formación de biopelículas (Figura 8) en las paredes de las conducciones del sistema de distribución de agua de consumo humano es un proceso secuencial que ocurre en varias etapas (Navarrete Rodríguez, 2012):

- 1) Acondicionamiento de la superficie: en esta etapa se neutralizan las posibles cargas que puedan tener los compuestos orgánicos del agua, produciéndose así la adsorción de esta materia orgánica a la superficie de la tubería. Esto facilitará el posterior acercamiento de los microorganismos.
- 2) Adhesión de bacterias pioneras: algunas de las bacterias libres que se encuentran en el agua pueden aproximarse a las paredes de la tubería donde la velocidad de flujo tiende a reducirse,

- fijándose a ella gracias a las fuerzas electrostáticas y al desarrollo de estructuras de anclaje específicas (fimbrias y pili).
- 3) Formación de EPS: las primeras bacterias adheridas al sustrato producen sustancias poliméricas extracelulares que facilitan la fijación de las mismas ya que estos polímeros tienen un carácter adhesivo y ya se produce la pérdida de las fimbrias y pili.
 - 4) Maduración de la biopelícula: gracias a las primeras bacterias colonizadoras, la formación de EPS y la acumulación de nutrientes, comienza la agregación celular con microorganismos secundarios, su desarrollo y reproducción, y el aumento proporcional de la matriz de EPS.
 - 5) Desprendimiento de la biopelícula y recolonización: a medida que la biopelícula se hace madura, va ganando espesor, lo que hace que aumente el esfuerzo cortante que el fluido ejerce en ella. Finalmente esto provoca que las células pioneras se desprendan de la matriz, volviendo a su vida planctónica de manera transitoria, y colonicen otro punto aguas abajo de la tubería, comenzando así nuevamente el ciclo descrito.

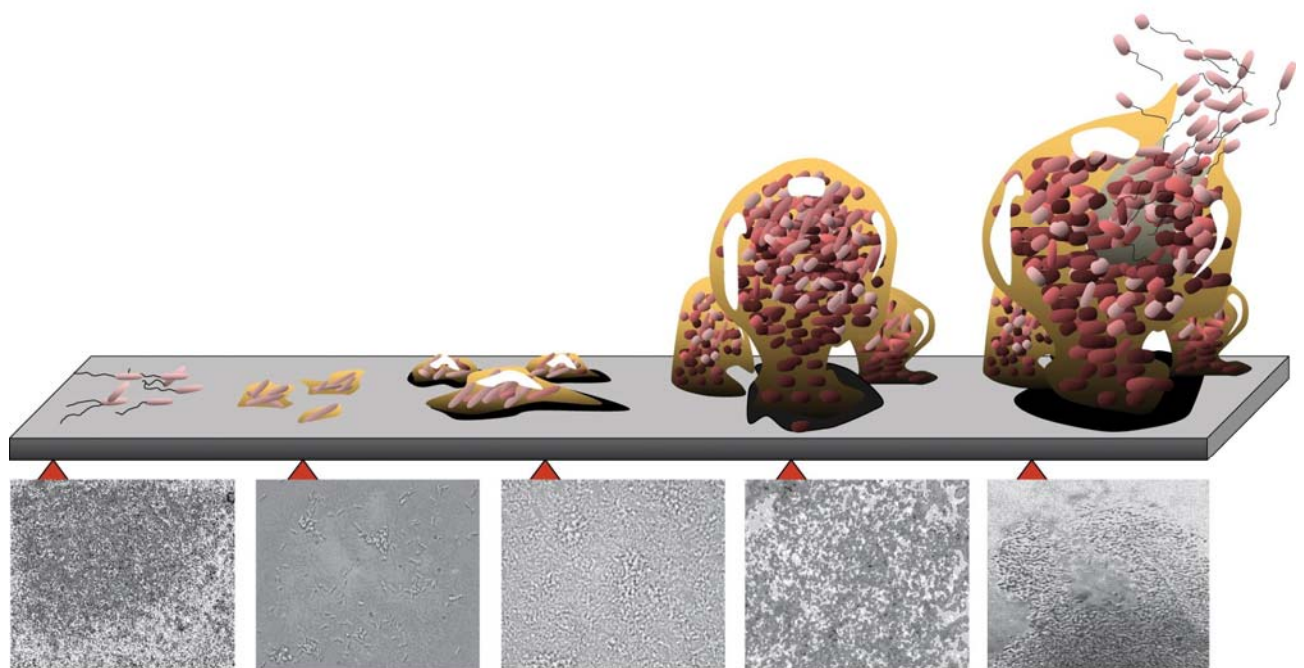


Figura 8: Secuencia de las etapas de formación de una biopelícula y sus fotomicrografías (Monroe, 2007).

Desde un punto de vista general, las biopelículas pueden tener tanto aspectos beneficiosos como perjudiciales (Bryers, 2000). Dentro de los primeros, las aplicaciones más comunes se dan en el campo de la biorremediación y en la tecnología de tratamiento de aguas residuales (Yang *et al.*, 2015; Ibrahim *et al.*, 2012; Nicolella *et al.*, 2000). Sin embargo, el segundo es el aspecto más preocupante desde el punto de vista de los sistemas de distribución de agua potable en particular, ya que la existencia de biopelículas en su interior

puede provocar numerosos y diversos problemas, afectando todos ellos a la calidad del agua, como pueden ser:

- *Reservorios de microorganismos patógenos y toxigénicos*, que representa una fuente de contaminación del agua y supone un riesgo potencial para la salud humana (Wingender y Flemming, 2011), proporcionando la biopelícula un entorno ideal para que estos microorganismos sobrevivan y persistan durante más tiempo en las RDAP (Borges y Simões, 2015).
- La biopelícula es recalcitrante al tratamiento (Borges y Simões, 2015), lo que induce la *resistencia de los microorganismos frente a la desinfección química*, siendo ésta más acusada cuanto mayor es la biodiversidad bacteriana dentro de la biopelícula (Simões *et al.*, 2010; Momba *et al.*, 2000). Este aspecto también puede repercutir de forma directa como un problema de salud pública.
- Origina problemas de *biocorrosión* en los materiales de la RDAP donde se adhiere la biopelícula, afectando tanto a la calidad del agua como a la propia infraestructura del sistema de suministro. El grado de corrosión depende de las especies implicadas, de la naturaleza del material de la superficie donde se origine y de las condiciones hidrodinámicas como el régimen de flujo (Pizarro y Vargas, 2016; Pavissich *et al.*, 2010), observando una mayor corrosión en superficies metálicas (Pujol *et al.*, 2011).
- La biopelícula favorece la *resistencia de los microorganismos frente a los antibióticos* ya que la matriz de EPS establece una barrera de protección para ellos y es un entorno ideal para el intercambio de genes (Blaustein *et al.*, 2016). De hecho, Monroe (2007) afirma que las bacterias en biopelícula son de 10 a 1000 veces más resistentes que en su forma planctónica.

A parte de estos inconvenientes descritos en el ámbito de las redes de distribución, las biopelículas también representan un problema en la explotación de los sistemas de tratamiento con membranas, provocando problemas de permeabilidad por atascamiento (Lin *et al.*, 2009).

A continuación se recopilan los factores que pueden influir en la adhesión y formación de la biopelícula, siendo algunos de ellos determinantes en el control de formación de la misma.

- A) *Propiedades del sustrato (conducción)*: como son la textura o rugosidad de la superficie, el acondicionamiento de la misma, la hidrofobicidad y la naturaleza del material (Donlan, 2002). Dentro de las RDAP, tal vez el factor más significativo en este sentido es el tipo de material. Experimentos realizados con distintos tipos de materiales de tuberías muestran que la colonización bacteriana, la velocidad de formación, la estructura y la comunidad bacteriana de la biopelícula es sensible a ello (Pujol *et al.*, 2011); Lehtola *et al.*, 2004^a). Por ejemplo, las bacterias

se fijan en mayor medida en los materiales de base plástica que en los de base cemento (Momba y Makala, 2004) y también en las plásticas se forma la biopelícula a mayor velocidad que en las metálicas (Lehtola *et al.*, 2004^a). Y aquí cabe una reflexión, puesto que desde la década de los 80 las tuberías de plástico son una tendencia en expansión en la construcción de las RDAPs por sus ventajas frente a los materiales más tradicionales (Liu *et al.*, 2016), lo que podría implicar un mayor problema en el control de la calidad del agua por generación de biopelículas en el interior de las conducciones.

- B) *Propiedades del fluido*: como el pH y la temperatura del agua, la naturaleza y concentración de la materia orgánica y cationes (nutrientes) presentes en ella, la presencia de agentes antimicrobianos, y la velocidad de flujo (Donlan, 2002). Lehtola *et al.* (2006) demostraron que la formación de biopelícula aumenta con la velocidad de flujo, además del contenido de nutrientes microbianos, aunque cambios bruscos en el flujo podrían producir la resuspensión de la biopelícula, lo que conllevaría un empeoramiento de la calidad del agua por el incremento del número de bacterias, partículas liberadas del sustrato y aumento de la turbidez. Para paliar esto, Lehtola *et al.* (2004b) proponen limpiezas de la RDAP para remover los depósitos formados que mejoran la calidad del agua. También la temperatura del agua es uno de los factores más influyentes, ya que repercute tanto en la abundancia como en el aumento de la diversidad de especies bacterianas durante los periodos más cálidos (Prest *et al.*, 2016; Momba *et al.*, 2000).
- C) *Características del proceso de desinfección química*: en la formación de la biopelícula influye tanto el tipo de desinfectante empleado como su concentración residual, además de la resistencia de las bacterias frente a tal agente. Momba *et al.* (2000) sugiere como estrategia de control en la formación de biopelículas el uso de agentes desinfectantes menos reactivos y más persistentes como la monocloramina o el peróxido de hidrógeno porque al mantener un carácter residual por más tiempo pueden también penetrar en la biopelícula de forma más efectiva.
- D) *Propiedades de las células microbianas*: la generación y desarrollo de la biopelícula puede estar condicionada por la hidrofobicidad superficial de las células; las estructuras de anclaje como fimbrias, pili o flagelos (Donlan, 2002); el tipo y diversidad de microorganismos que la constituyan (de la Rúa *et al.*, 2008); y de las sustancias poliméricas extracelulares (EPS), cuyo perfil de polisacáridos, proteínas, concentraciones iónicas e hidratación puede afectar a la estabilidad mecánica de la biopelícula (Fish *et al.*, 2016).

1.3.3.2. Subproductos de desinfección

Los desinfectantes son oxidantes químicos y tienen multitud de usos como la eliminación de sabor y color, oxidar formas reducidas de Fe y Mn, prevenir la reaparición de elementos biológicos en las RDAP, mejorar la eficiencia de la coagulación y la filtración, y prevenir el crecimiento de algas en tanques de sedimentación y filtros (EPA, 1999). Pero la aplicación principal de los desinfectantes es la eliminación y desactivación de microorganismos patógenos, causantes de la gran mayoría de las enfermedades hídricas que afectan al ser humano. Y aunque éste es un aspecto muy positivo de la desinfección, también tiene un gran punto en su contra y es la generación de subproductos de desinfección o DBPs, sobre los cuales hay una creciente preocupación por los efectos adversos sobre la salud (Rodríguez *et al.*, 2007).

En 1974 el Congreso de los EEUU aprobó la Ley de Agua Potable Segura debido a la necesidad de un agua limpia y segura para los usuarios. Pero fue en 1976 cuando se demostró que el cloroformo era carcinógeno, lo que llevó a la Agencia de Protección Ambiental (EPA) a elaborar en 1979 una guía para proporcionar una orientación de los niveles de trihalometanos permitidos en agua potable. A partir de entonces se iniciaron investigaciones con objeto de obtener más información para minimizar el uso de desinfectantes sin minar el control de patógenos microbianos y que reportaran datos toxicológicos de los distintos DBPs, dando lugar a una reglamentación en 1992 que se seguiría desarrollando más a largo plazo (Boorman *et al.*, 1999).

1.3.3.2.1. Formación y tipos de DBPs

Dentro de la gama de agentes desinfectantes que pueden emplearse en aguas de consumo, el método más extendido es la cloración debido a que el cloro tiene un gran poder desinfectante, carácter residual y es muy económico.

Los DBPs se forman por la reacción de la materia orgánica (MON) que está naturalmente en el agua con el agente desinfectante añadido, formándose estos compuestos orgánicos. Los más habituales en aguas potables y que están presentes en mayor concentración son los trihalometanos (THMs) y los ácidos haloacéticos (AHAs) aunque hay otros muchos como se detalla en la Tabla 5. Pero es cierto que otros agentes desinfectantes, además del cloro y sus derivados, producen DBPs aunque en menos cantidad (Richardson *et al.*, 2016). De hecho la cloramina se relaciona con THMs, AHAs sino también con DBPs nitrogenados (N-DBPs) como nitrilos y amidas (Kimura *et al.*, 2015) y bromados (Br-DBPs) que son más citotóxicos y genotóxicos que sus homólogos clorados (Zhai *et al.*, 2014). También el dióxido de cloro genera DBPs como los cloratos,

mientras que el ozono genera aldehídos, ácidos cetoaldehídicos, peróxidos, epóxidos y en presencia de bromuro bromatos y THM (Rodríguez et al., 2007).

Tabla 5: Subproductos de desinfección en agua potable, regulación y efectos sobre la salud (Chowdhury et al., 2009; Rodríguez et al., 2007; Singer, 1994).

DBP	Nomenclatura	Fórmula molecular	Desinfectante principal	Regulación (µg/L)	Clasificación EPA	Efectos nocivos sobre la salud
Trihalometanos (THMs)				80*		
Cloroformo	TCM	Cl ₃ CH	Cloro	300*	B2	Cáncer, hígado, riñón, ER
Bromodichlorometano	BDCM	Cl ₂ BrCH	Cloro	60*	B2	Cáncer, hígado, riñón, ER
Dibromoclorometano	DBCM	ClBr ₂ CH	Cloro	100*	C	Sistema nervioso, hígado, riñón, ER
Bromoformo	TBM	Br ₃ CH	Cloro/ozono	100*	B2	Sistema nervioso, hígado, colon, riñón
Ácidos haloacéticos (AHAs)						
Ác. bromocloroacético	BCAA	BrClCHCO ₂ H	Cloro	-	-	Tumores hepáticos
Ác. bromodichloroacético	BDCAA	Cl ₂ BrCCO ₂ H	Cloro	-	-	Tumores hepáticos
Ác. clorodibromoacético	CDBAA	Br ₂ ClCCO ₂ H	Cloro	-	-	-
Ác. dibromoacético	DBAA	Br ₂ CHCO ₂ H	Cloro	-	-	Tumores hepáticos
Ác. dichloroacético	DCAA	Cl ₂ CHCO ₂ H	Cloro	50*	B2	Cáncer, ER y ED
Ác. monobromoacético	MBAA	BrCH ₂ CO ₂ H	Cloro	-	-	-
Ác. monocloroacético	MCAA	ClCH ₂ CO ₂ H	Cloro	150*	-	-
Ác. tribromoacético	TBAA	Br ₃ CCO ₂ H	Cloro	-	-	-
Ác. tricloroacético	TCAA	Cl ₃ CCO ₂ H	Cloro	100*	C	Hígado, riñón, bazo
Ác. bromocloroacético	BCAA	BrClCHCO ₂ H	Cloro	-	-	Tumores hepáticos
Haloacetoneitrilos (HANs)				60*	C	
Bromocloroacetoneitrilo	BCAN	C ₂ HBrClN	Cloro	-	-	Muerte del embrión
Dibromoacetoneitrilo	DBAN	C ₂ HBr ₂ N	Cloro	70*	-	Tumores de piel
Dichloroacetoneitrilo	DCAN	C ₂ HCl ₂ N	Cloro	20*	-	Muerte del embrión
Tricloroacetoneitrilo	TCAN	C ₂ Cl ₃ N	Cloro	-	-	Cáncer, efectos mutagénicos y clastogénicos
Tribromoacetoneitrilo	TBAN	C ₂ Br ₃ N	Cloro	-	-	-
Halocetonas (HKs)						
1,1-dicloropropano	DCP	C ₃ H ₆ Cl ₂	Cloro	-	-	-
1,1,1-tricloropropano	TCP	C ₃ H ₅ Cl ₃	Cloro	-	-	-
Aldehídos						
Formaldehido	-	CH ₂ O	Ozono/cloro	500*	B1	Mutagénicos**
Acetaldehido	-	C ₂ H ₄ O	Ozono/cloro	-	-	-
Glyoxal	-	C ₂ H ₂ O ₂	Ozono/cloro	-	-	-
Metil glyoxal	-	C ₃ H ₄ O ₂	Ozono/cloro	-	-	-
Ác. Carboxílicos						
Formiato	-	CHOO ⁻	Ozono	-	-	-
Acetato	-	CH ₃ COO ⁻	Ozono	-	-	-
Oxalato	-	(C ₂ O ₄) ²⁻	Ozono	-	-	-

Nitrosominas						
N-nitrosodimetilamina	NDMA	ONN(CH ₃) ₂	Cloramina	-	-	-
Haluros de cianógeno						
Cloruro de cianógeno	-	CNCl	Cloramina	70*	-	-
Bromuro de cianógeno	-	CNBr	Cloramina	-	-	-
Halopicrinas						
Cloropicrina	-	CCl ₃ NO ₂	-	-	-	-
Bromopicrina	-	CBr ₃ NO ₂	-	-	-	-
Hidrato de cloral	-	CH	Cloro	10*	-	-
Bromatos	-	BrO ₃ ⁻	Ozono	10*	B2	Cáncer
Cloratos	-	ClO ₃ ⁻	ClO ₂	700*	-	-
Cloritos	-	ClO ₂ ⁻	ClO ₂	300*	D	ED, ER
Halofenoles	-	-	-	-	-	-
3-cloro-4-diclorometil-5-hidroxy-2(5H)furano	MX	C ₅ H ₃ Cl ₃ O ₃	-	-	-	-

B1: carcinógeno humano probable (con alguna evidencia epidemiológica); **B2:** carcinógeno humano probable (evidencia de laboratorio suficiente); **C:** carcinógeno humano posible; **D:** no clasificable; **ED:** efectos sobre el desarrollo; **EF:** efectos sobre la reproducción; * Valor más restrictivo referenciado; ** Por inhalación.

1.3.3.2.2. Factores que influyen en la formación de DBPs

En la formación de DBPs intervienen varios factores que se pueden reagrupar como sigue:

A) Características del agua bruta:

- *Caracterización de la MON:* la formación de DBPs es directamente proporcional a la concentración de MON, su principal precursor, pero también influye las características de esta materia orgánica (Singer, 1994). Esto dependerá de la fuente de agua bruta. La MON está compuesta por una fracción hidrófoba (ácidos húmicos y fúlvicos) y una fracción hidrófila (proteínas, carbohidratos y aminoácidos). Los ácidos húmicos favorecen la formación de DBPs por tener mayor concentración de carbono aromático que los fúlvicos pero como éstos están presentes en la MON en mayor proporción son los que principalmente generan los DBPs (Rodríguez *et al.*, 2007). Para la caracterización de la MON se suele usar el contenido en carbono orgánico (CO) y la absorbancia ultravioleta a 254 nm (UV₂₅₄) que representan la cantidad y la aromaticidad de la MON respectivamente. En ambos casos, un aumento de su valor implica una mayor tendencia a la formación de DBPs.
- *Iones bromuro:* las aguas superficiales no suelen tener gran contenido en iones bromuro a no ser que sufra alguna infiltración de aguas marinas que sí tienen un contenido más elevado de estos

iones. Estos no tienen incidencia en lo que respecta a los subproductos clorados pero sí a los Br-DBPs. También afecta a la velocidad de formación de estos DBPs ya que los iones bromuros son oxidados por el ácido hipocloroso (HClO) a ácido hipobromoso (HBrO), el cual reacciona más fácilmente con la MON (Amy *et al.*, 1991).

B) Condiciones del proceso de desinfección:

- *pH*: este parámetro influye en la formación de DBPs en tanto en cuanto el pH condiciona los procesos de reacción. Pero cada DBP es formado por un tipo de reacción distinta, con lo cual no puede hacerse una afirmación generalizada de qué pH es más favorable para la generación de DBPs. Por ejemplo, Obolensky y Singer (2008) afirman que el pH tiene una fuerte correlación positiva con la formación de cloroformo, negativa para el ácido trihaloacético y ninguna influencia en el caso del ácido dihaloacético.
- *Temperatura*: al igual que en el caso del pH, la temperatura suele ser un parámetro que generalmente afecta a las reacciones y en el caso de la formación de DBPs también, aumentando la velocidad de reacción con el aumento de temperatura. Es por ello que la estacionalidad influye en la cantidad de DBPs generados (Wlodyka-Bergier y Bergier, 2013), formándose más cantidad de DBPs en la época de verano también porque el aumento de temperatura contribuye al aumento de la carga orgánica del agua y esto a su vez a la formación de DBPs. Rodríguez *et al.* (2003) probó que la cantidad de THMs generados en verano era de 2,5 a 5 veces más alta que en invierno en el extremo de la RDAP dependiendo de la instalación.
- *Desinfectante*: la cantidad de DBPs generados depende tanto del tipo de desinfectante como de la dosis empleada (Rodríguez *et al.*, 2003). La distribución de los DBPs clorados depende de la dosis de cloro y del cloro residual libre, ya que además de que este desinfectante favorece su formación también afecta a la especiación (Singer, 1994). Esto quiere decir que en función de la cantidad de desinfectante empleado, se formarán más proporción de unos DBPs que de otros. Por ejemplo, altas dosis de cloro y cloro residual libre (CRL) favorecen la formación de AHAs sobre la de THMs (Singer, 1994).
- *Tiempo de contacto*: el tiempo de residencia del agua en la RDAP es el tiempo de contacto entre MON y desinfectante. Es lógico pensar que un mayor tiempo de contacto permitirá que se forme una mayor cantidad de DBPs como de hecho confirman varios estudios de Rodríguez y Sérodes (2001) y Rodríguez *et al.* (2003) donde se formaban entre 1,3 y 2,5 veces (dependiendo de la instalación) más THMs en el extremo de la RDAP que a la salida de la ETAP. Además, análisis de laboratorio realizados por Rodríguez y Sérodes (2005) muestran cómo la concentración de DBPs

halogenados aumenta continuamente con el tiempo de contacto, lo que demuestra que mientras siga habiendo CRL, los precursores de esos subproductos se siguen formando aunque no lo hagan de manera lineal.

La literatura ha ido desarrollando multitud de modelos capaces de predecir la formación de DBPs en agua potable. Chowdhury *et al.* (2009) recogió en un estudio estos modelos, en su mayoría para predicción de THMs, AHAs y BDCM, donde se muestra en las ecuaciones de cada modelo qué factores afectan a la formación de estas sustancias y en qué grado de dependencia. Puede comprobarse que parámetros como el COD, UV₂₅₄ y la dosis de cloro son comunes en prácticamente todos los modelos y en los más desarrollados introducen otros términos a la ecuación como el pH, la temperatura o la concentración de iones bromuro.

1.3.3.2.3. Control de la formación de DBPs

Para eliminar el problema de la presencia de DBPs en agua potable hay dos soluciones a priori: la primera es atacar al origen para evitar que se formen y la segunda es intentar eliminarlos una vez que se han formado. Y el origen de los DBPs depende a su vez de dos participantes (MON y desinfectante), con lo cual se pueden plantear tres soluciones distintas para evitar o, por lo menos, reducir la formación de subproductos de desinfección:

- 1) Eliminar/reducir la MON del agua.
- 2) Modificar el desinfectante añadido al agua.
- 3) Eliminar total o parcialmente los DBPs una vez formados.

Respecto a la primera solución, una alternativa sería captar el agua bruta de una fuente de abastecimiento de mayor calidad, pero esto no siempre es factible porque suele venir impuesto por la zona geográfica o la disponibilidad del recurso hídrico. Otra alternativa más viable es la del tratamiento, que permite reducir la MON y por tanto los precursores de DBPs. Dentro de los tratamientos físico-químicos previos a la desinfección, los tres más eficaces en eliminación de MON son:

- *Filtración con carbón activo granular (CAG)*: generalmente este método, de aplicarse, se hace tras la filtración convencional y tiene por objetivo eliminar sabores y olores por adsorción.
- *Coagulación mejorada*: es una coagulación donde se aplican dosis de coagulante mayores de las habituales y se ha demostrado que este método es eficaz en la disminución de los precursores de DBPs.

- *Filtración con membranas*: esta tecnología consigue dos efectos y ambos dos contribuyen a disminuir la formación de DBPs. Por un lado las membranas son capaces de retirar más del 90% de los precursores de DBPs; y por otro lado reducen la necesidad de desinfección (química) puesto que la propia membrana ya realiza una desinfección física prácticamente completa, con lo cual las dosis de cloro u otro desinfectante químico residual pueden ser mínimas. Lamsal *et al.* (2012) apunta que las membranas de ultrafiltración reducen la fracción hidrófoba de la MON, la principal contribuyente en la formación de DBPs, lo que conlleva una reducción en la cantidad de THMs y AHAs.
- *Procesos de oxidación avanzada (AOPs)*: basados en la aplicación de luz UV, ozono, H₂O₂, TiO₂, procesos que combinen algunos de estos, procesos Fenton, oxidación catalítica u oxidación electroquímica (Matilainen y Sillanpää, 2010).

La segunda solución es mejorar la estrategia de desinfección. Esto puede conseguirse optimizando el proceso de desinfección (por ejemplo, ajustando la dosis desinfectante al mínimo) o bien usando un desinfectante alternativo a la cloración que no forme DBPs o que los forme en menor cantidad que el cloro, como por ejemplo el ClO₂, que pese a ser un excelente desinfectante y no formar THMs, su difícil manejo, sus elevados costes de instalación y el peligro de aparición de cloritos y cloratos le hacen ser menos competitivo; o la NH₂Cl, aunque de menor capacidad biocida que el cloro. También puede optarse por una desinfección física por rayos UV, que no genera ningún tipo de subproducto pero sí supone un alto consumo de energía, o una desinfección por ozonización, aunque también presenta el inconveniente de que es más costoso que el cloro y requiere personal cualificado para su aplicación. Un ejemplo de modificación del tipo de desinfectante fue el estudio realizado por (Sorlini y Collivignarelli, 2005) que evidenció que al reemplazar el cloro por otros oxidantes alternativos como el dióxido de cloro y ozono, la reducción de THMs formados durante el proceso fue del orden de un 97%. Un inconveniente añadido a los desinfectantes alternativos a la cloración es que se siempre se necesita de una post-cloración que confiera ese carácter residual necesario a lo largo de la RDAP aunque en el caso de haber desinfectado con O₃, oxidante de MON, es cierto que la dosis de cloro será más baja.

Finalmente, la tercera alternativa ya no es de prevención, que siempre es lo más recomendable, sino de actuación sobre los DBPs ya formados. Si estos subproductos ya se han formado se pueden reducir mediante stripping con aire o adsorción con carbón activo granular (Singer, 1994; Rodríguez *et al.*, 2007), pero hay que tener en consideración que la capacidad de adsorción del CAG se agota rápidamente con los THMs (por tanto compensa más usar el CAG para adsorber precursores de DBPs antes que los propios DBPs en sí).

1.3.3.3. *Materia orgánica*

El origen de la materia orgánica natural (MON) presente en el agua se encuentra en la vegetación, el suelo y las aguas residuales, y su concentración y composición dependerá de la resistencia de la materia a la degradación química o biológica que pueda sufrir. La caracterización de la MON puede variar no sólo en función de la fuente de procedencia sino también de la estacionalidad y de otros factores ambientales, lo cual puede afectar a su vez a la calidad del agua potable (Teixeira y Nunes, 2011; Matilainen y Sillanpää, 2010; Fabris *et al.*, 2008). La MON acuática está compuesta tanto por solutos no-húmicos (fracción hidrófila), como son los ácidos carboxílicos, aminoácidos y azúcares (proteínas), hidrocarburos, carbohidratos, grasas, ceras, resinas, ácidos grasos, etc.; como por solutos húmicos (fracción hidrófoba) muy heterogéneos y complejos entre los que destacan los ácidos húmicos y fúlvicos (Korotta-Gamage y Sathasivan, 2017; Fabris *et al.*, 2008). Las sustancias húmicas son comúnmente descritas como compuestos heterogéneos que contienen tanto una gran proporción de grupos funcionales que contienen oxígeno (mayoritariamente grupos carboxílicos y fenólicos) que les confieren ciertas propiedades hidrófilas, como segmentos aromáticos y alifáticos segregados que les dan carácter hidrófobo (Siéliéchi *et al.*, 2008).

Para evaluar el contenido en MON de un agua, el método más común usado es el contenido en carbono orgánico total y disuelto (COT y COD). Sin embargo, para su caracterización se emplean parámetros como la absorbancia específica ultravioleta (SUVA), que mide la aromaticidad, humificación e hidrofobicidad de la MON; el carbono orgánico disuelto biodegradable (BDOC), que mide la fracción del COD de la materia que es degradable por los microorganismos; y el carbono orgánico asimilable (AOC), que representa el carbono orgánico que puede ser fácilmente asimilable por la biomasa durante el crecimiento bacteriano (Sillanpää, 2015; Ortiz Mingo, 2015).

La presencia de MON en aguas de consumo causa muchos problemas que atañen a distintos aspectos. Entre estos problemas se incluye (Matilainen y Sillanpää, 2010):

- Efectos negativos en la calidad del agua respecto al color, sabor y olor.
- En los procesos de tratamiento, aumento de la dosis requerida de coagulante y de desinfectante, lo que a su vez se traduce en un aumento de generación de lodos y DBPs, repercutiendo estos últimos en la calidad del agua potable ya que muchos de ellos poseen efectos nocivos para la salud.
- Impulso del crecimiento biológico en el sistema de distribución como es la formación de biopelícula.
- Aumento de los niveles de metales pesados complejos y contaminantes orgánicos adsorbidos.

Por tanto, la MON no sólo afecta a la calidad por su presencia en sí sino también por ser la precursora de otros productos indeseados. Además, los problemas ocasionados durante el tratamiento pueden trasladarse a la RDAP, de aquí la importancia de eliminar la mayor cantidad de MON desde el inicio.

Para eliminar la MON del agua existen distintos tratamientos como la coagulación, los métodos electroquímicos, la tecnología de membranas, los procesos de oxidación avanzada (AOPs), la adsorción, el intercambio iónico y otros métodos integrados o híbridos (Sillanpää, 2015; Matilainen y Sillanpää, 2010).

Si bien es cierto que uno de los tratamientos para la eliminación de MON puede ser la tecnología de membranas, ésta no es muy efectiva en cuanto a retención de materia orgánica disuelta en la producción de agua potable, al menos por sí sola (Rojas *et al.*, 2010; Y. Zhang *et al.*, 2015). Pero esto puede solventarse si se usa algún tratamiento previo a la filtración por membrana (Maeng *et al.*, 2015), como es el caso de la asociación coagulación-floculación seguida de membrana que aumenta considerablemente el porcentaje de MON eliminada a la vez que reduce los problemas de ensuciamiento y atascamiento de la membrana (Rojas *et al.*, 2010); (Zhu *et al.*, 2008). De hecho, según (Restrepo *et al.*, 2007) este tratamiento es el que más previene la formación de THMs, llegando a reducciones de hasta el 70%. También el carbón activado es otro tratamiento capaz de reducir el contenido de MON del agua asociado al empleo de membranas (Stoquart *et al.*, 2012). Todo esto se traduce en mejores rendimientos del proceso global y en una mayor calidad y seguridad del agua final obtenida.

Aunque hay muchos factores que pueden influir en el crecimiento de biopelículas en los sistemas de distribución de agua potable, uno de los más importantes es la disponibilidad de materia orgánica biodegradable (BOM). Clark y Boutin (2001) indicaron que existe una correlación entre el AOC y el crecimiento de coliformes. De ahí que uno de los objetivos del tratamiento de potabilización sea eliminar o reducir el contenido de la fracción biodegradable y asimilable de la MON para limitar así el crecimiento biológico en la RDAP. Uno de estos tratamientos que reduce la cantidad de nutrientes por consumo de AOC es la filtración biológica, rebajando en un 50% el nivel de nutrientes que ingresan en el sistema de distribución de agua (Volk y LeChevallier, 1999).

2. OBJETIVOS

2. OBJETIVOS

En base a las necesidades que plantean las aguas de consumo humano con respecto a su calidad y salubridad, esta investigación persigue los siguientes objetivos principales:

- 1) Conocer la calidad físico-química y microbiológica del agua potabilizada mediante membranas de UF en la red de distribución.
- 2) Conocer y evaluar el ensuciamiento producido en la red de distribución de agua potabilizada mediante membranas de UF.
- 3) Estudiar los efectos de la temperatura en el comportamiento del sistema de distribución de agua potabilizada mediante membranas de UF.
- 4) Analizar la influencia del tratamiento de la tecnología de membranas de UF, y su combinación con los pretratamientos de CF u O₃, sobre la calidad del agua en la red de distribución.
- 5) Analizar la influencia del tratamiento de la tecnología de membranas de UF, y su combinación con los pretratamientos de CF u O₃, sobre el ensuciamiento de la red de distribución.
- 6) Analizar el comportamiento evolutivo de la calidad del agua potabilizada mediante membranas de UF, con y sin pretratamiento de CF y O₃, en la red de distribución, así como la evolución del ensuciamiento de ésta.

Por la gran importancia que suponen determinados aspectos englobados en estos objetivos principales sobre la calidad de las aguas de consumo humano, también se definen los siguientes objetivos específicos:

- 7) Analizar la influencia del tratamiento de potabilización con membranas de UF, y su combinación con los pretratamientos de CF u O₃, sobre el nivel de DBPs (THMs y AHAs) generados en el agua clorada de la red de distribución.
- 8) Analizar la influencia del tratamiento de potabilización con membranas de UF, y su combinación con los pretratamientos de CF u O₃, en la generación y desarrollo de biopelícula sobre la superficie de la tubería que conforma la red de distribución.

3. MATERIALES Y MÉTODOS

3. MATERIALES Y MÉTODOS

3.1. DESCRIPCIÓN DE LA INSTALACIÓN EXPERIMENTAL

La planta experimental se encuentra situada dentro de las instalaciones del Parque de las Ciencias de Granada y emplazada en los exteriores de éste (Figura 9) junto a la llamada Acequia Gorda por la que discurre el agua procedente del embalse de Canales, río Genil.

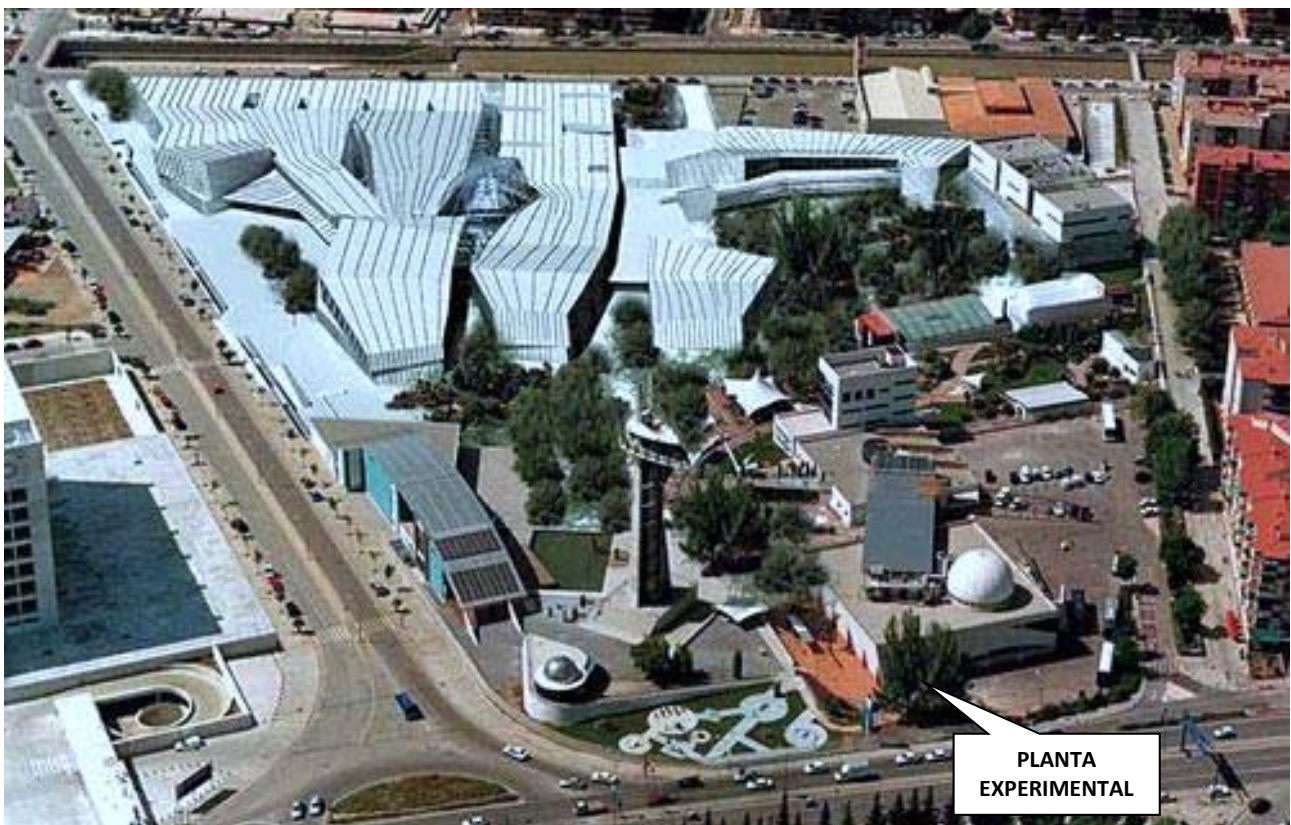


Figura 9. Emplazamiento de la planta experimental en las instalaciones del Parque de las Ciencias de Granada.

La instalación experimental de potabilización de agua contaba con distintos módulos para la captación y el tratamiento del agua. En la Figura 10 se muestran de forma esquemática todas y cada una de las partes de la planta agrupadas por módulos.

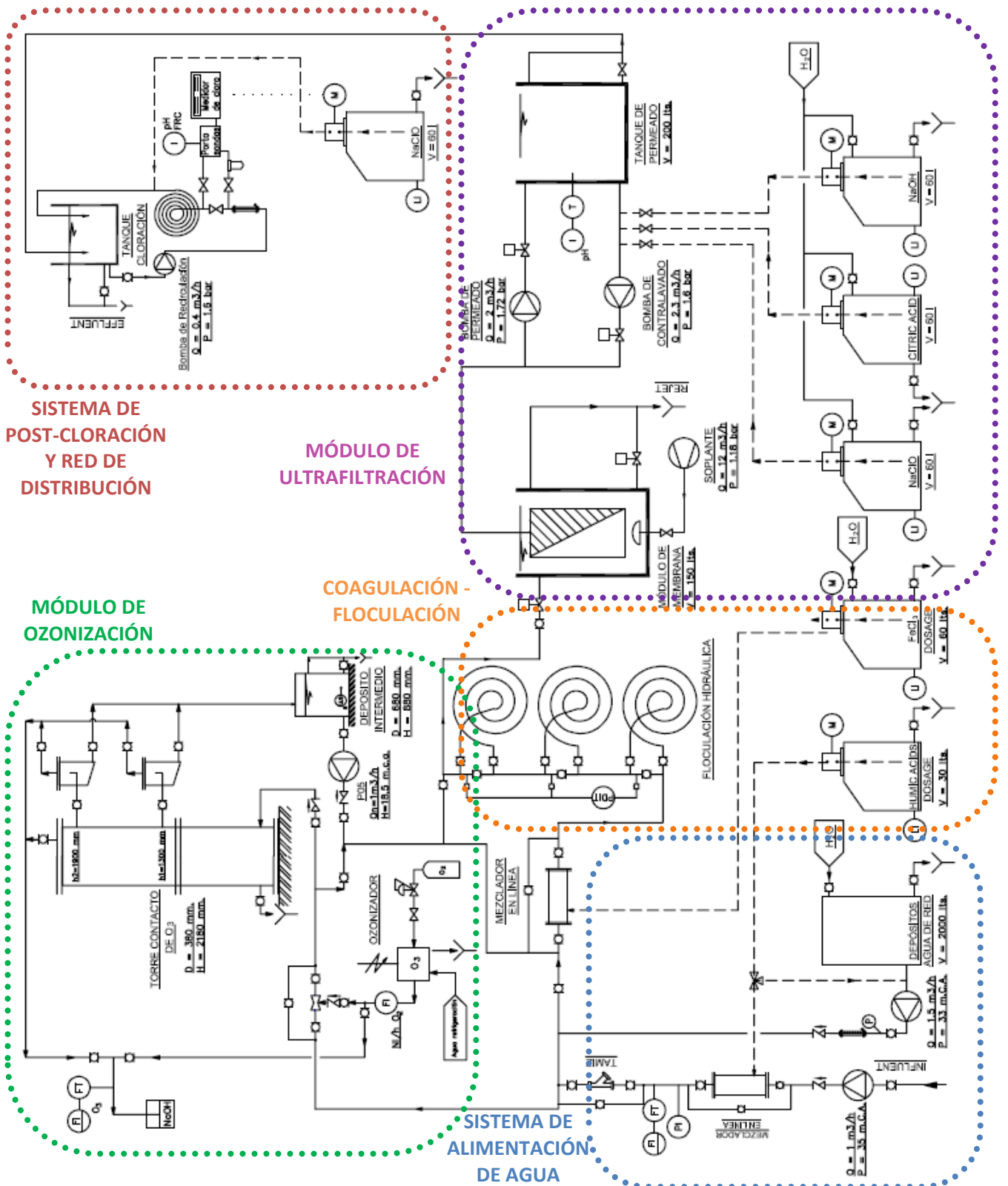


Figura 10. Diagrama de flujo de la instalación experimental.

3.1.1. Sistema de alimentación de agua

La planta fue diseñada con un sistema de alimentación lo más versátil posible para poder trabajar tanto con agua procedente de la acequia como con agua sintética, así como una mezcla de ambas según demandaran las necesidades de las investigaciones (Figura 11).



Figura 11. Vista general de la planta piloto con detalle del sistema de alimentación de agua.

Para la captación del agua directamente de la acequia se disponía de una bomba centrífuga trituradora (PENTAX DTR 200, 50-300 L/min) sumergida en el interior del canal y, tras pasar por un filtro de anillas de lavado automático (ARKAL Serie SKS 2", 130 micras), el agua era bombeada (EBARA JEXM 120, 20-70 L/min) hasta dos tanques de acumulación (1000 L). Estos mismos tanques también podían recibir agua de red para que, por adición posterior de sustancias húmicas, se pudiera trabajar con agua sintética. Finalmente el agua de estos tanques era introducida a la planta experimental (Figura 12) gracias a otra bomba centrífuga (ESPAPRISMA25 3, 25-116 L/min) que funcionaba en modo start-stop mediante un presostato que paraba o arrancaba la bomba en función del nivel de agua dentro del tanque de membrana, y mediante válvulas manuales se dirigía este agua de alimentación hacia un módulo u otro según el tratamiento que se quisiera ensayar.

3.1.2. Módulo de Ultrafiltración

El módulo de ultrafiltración estaba compuesto por distintos elementos que pueden apreciarse en la Figura 12. El elemento principal de este módulo era la membrana de ultrafiltración (SpiraSep 960 de TriSepCorporation), fabricada en fluoruro de polivinilideno (PVDF) y arrollada en espiral, un tamaño de poro de 0,03 μm y un área de filtración teórica de 20,9 m^2 . Además puede operar con un pH entre 2 y 11, tiene una alta resistencia al cloro (2000 mg/L) y tolera una presión transmembrana (PTM) máxima de $\pm 0,7$ bar.

La membrana era sometida a aireación en continuo gracias a una soplante (FPZSCL 15DH) de caudal regulable manualmente (0,3-12 m^3/h) acoplada a un difusor de burbuja gruesa colocado en la parte inferior del tanque de membrana (150 L). El agua de alimentación era filtrada a través de la membrana de fuera hacia dentro gracias a una bomba de permeado (KRIPSOLKoral KS75) capaz de producir un caudal máximo de permeado de 2 m^3/h regulable mediante un variador de frecuencia. El agua permeada era almacenada en un tanque (300 L) y usada periódicamente para los lavados de la membrana gracias a una bomba de contralavado (GRUNDFOS CHI2-20, caudal máximo de 2,3 m^3/h). Cuando la PTM máxima era alcanzada, la membrana podía ser sometida también a limpieza química. Para ello, tras vaciar el tanque de membrana, éste era rellenado con agua permeada y NaClO (100 mg/L) para recircular esta disolución a través de la membrana durante 20 minutos. Transcurrido ese tiempo, se volvía a vaciar el tanque de membrana y la membrana permanecía en remojo (NaClO, 100 ppm) hasta el día siguiente. El agua usada tanto en los contralavados como en las limpiezas químicas era desechada en un tanque de rechazos para inutilizarla antes de su vertido.

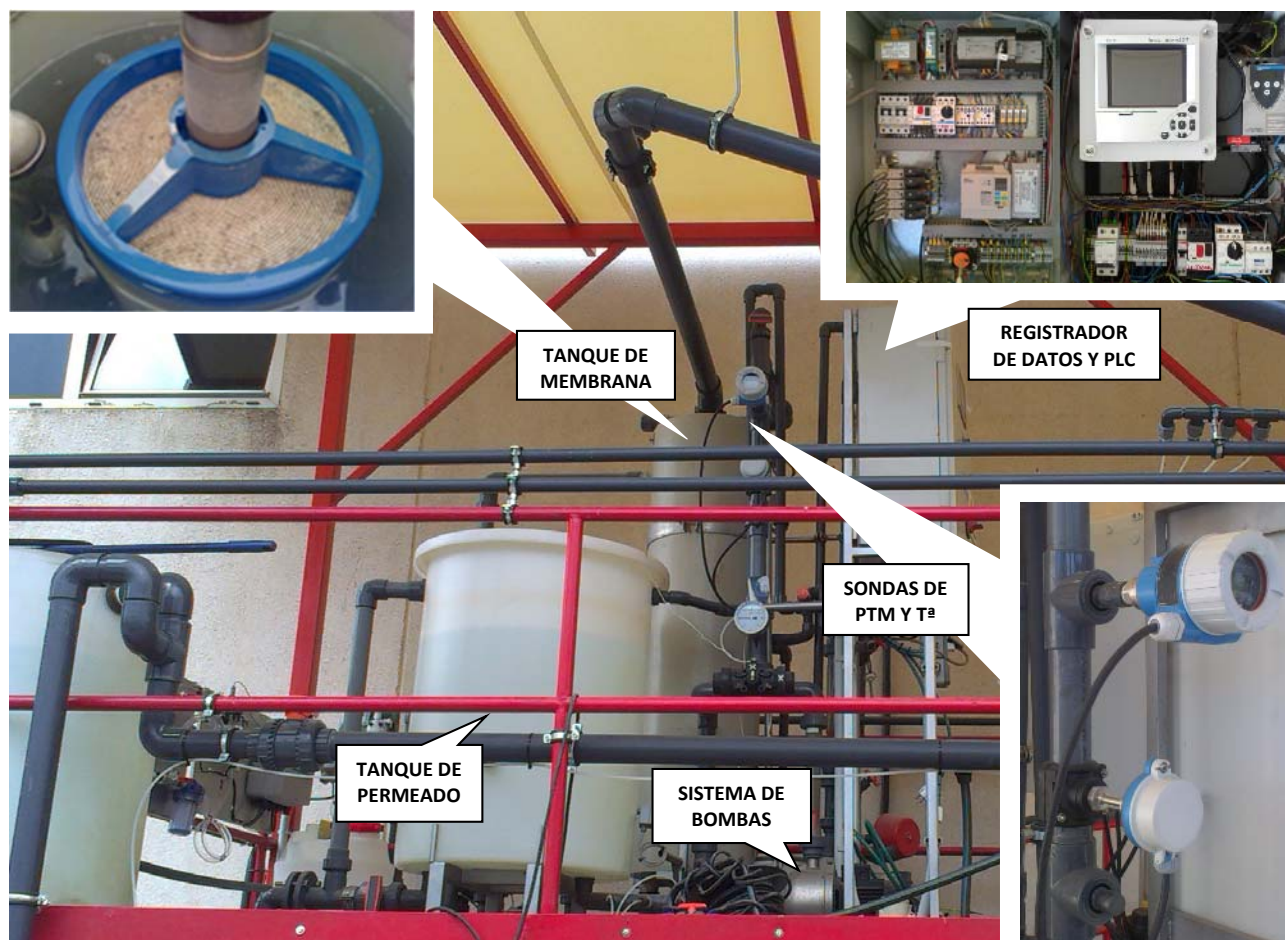


Figura 12. Detalle de los elementos del módulo de ultrafiltración.

La planta podía ser operada bien en modo manual o bien en modo automático gracias a un controlador lógico programable o PLC (OMRON Sysmac CPM2A) con pantalla táctil, desde donde se podía dar orden de los tiempos de producción de permeado, periodicidad de los contralavados y frecuencia de las limpiezas químicas de la membrana. Además, se disponía de una sonda de PTM y otra de temperatura (HENDRESS+HAUSER, PMP51 y TMT181 respectivamente), ambas conectadas a un registrador de datos (HENDRESS+HAUSER RSG30) para el control de dichos parámetros.

3.1.3. Pretratamiento de Coagulación-Floculación

Uno de los pretratamientos con los que contaba la instalación experimental era el de coagulación-floculación (Figura 13). Éste estaba compuesto por un tanque con agitación donde se almacenaba el coagulante (Cl_3Fe) que era dosificado al agua de alimentación a través de un mezclador estático a una dosis final de 50 mg/L optimizada en investigaciones previas (Rojas-Serrano et al., 2015c); y un floculador hidráulico que consistía en un sistema de tuberías de PVC en espiral (50 mm de diámetro externo) con un juego de

válvulas que permitía ajustar la longitud del floculador (100-300 m de tubería) para operar con distintos tiempos de retención hidráulica (TRH, 5-25 min) y gradientes (G , 30-70 s^{-1}).



Figura 13. Sistema de coagulación-floculación hidráulica.

3.1.4. Pretratamiento de Ozonización

Otro de los pretratamientos empleados en la investigación, cuyos elementos se muestran en la Figura 14, fue el de ozonización. Se disponía de un ozonizador (AIR TREE OZONE TECHNOLOGY, C-L010-DTI) que, mediante una descarga eléctrica de alto voltaje (8000 V) aplicada a la corriente de oxígeno puro suministrado, generaba el ozono a razón de 10 g/h (6 L/min). Éste era inyectado a la corriente de agua a través de un mezclador tipo Venturi hasta la torre de contacto donde se disolvía en el agua bruta de entrada.

La torre de contacto contaba con dos vertederos a distintas alturas para producir la separación agua-gas y evitar así el arrastre de O_3 gas en la corriente de agua y fugas del mismo. El ozono residual, si lo hubiera, era recogido por la línea de gases y destruido/neutralizado con una disolución de sulfito sódico (25 mg $Na_2SO_3/mg O_3$) antes de ser emitido a la atmósfera.

El agua ya ozonizada se almacenaba en un tanque (300 L) para disponer de ella en la siguiente etapa del tratamiento

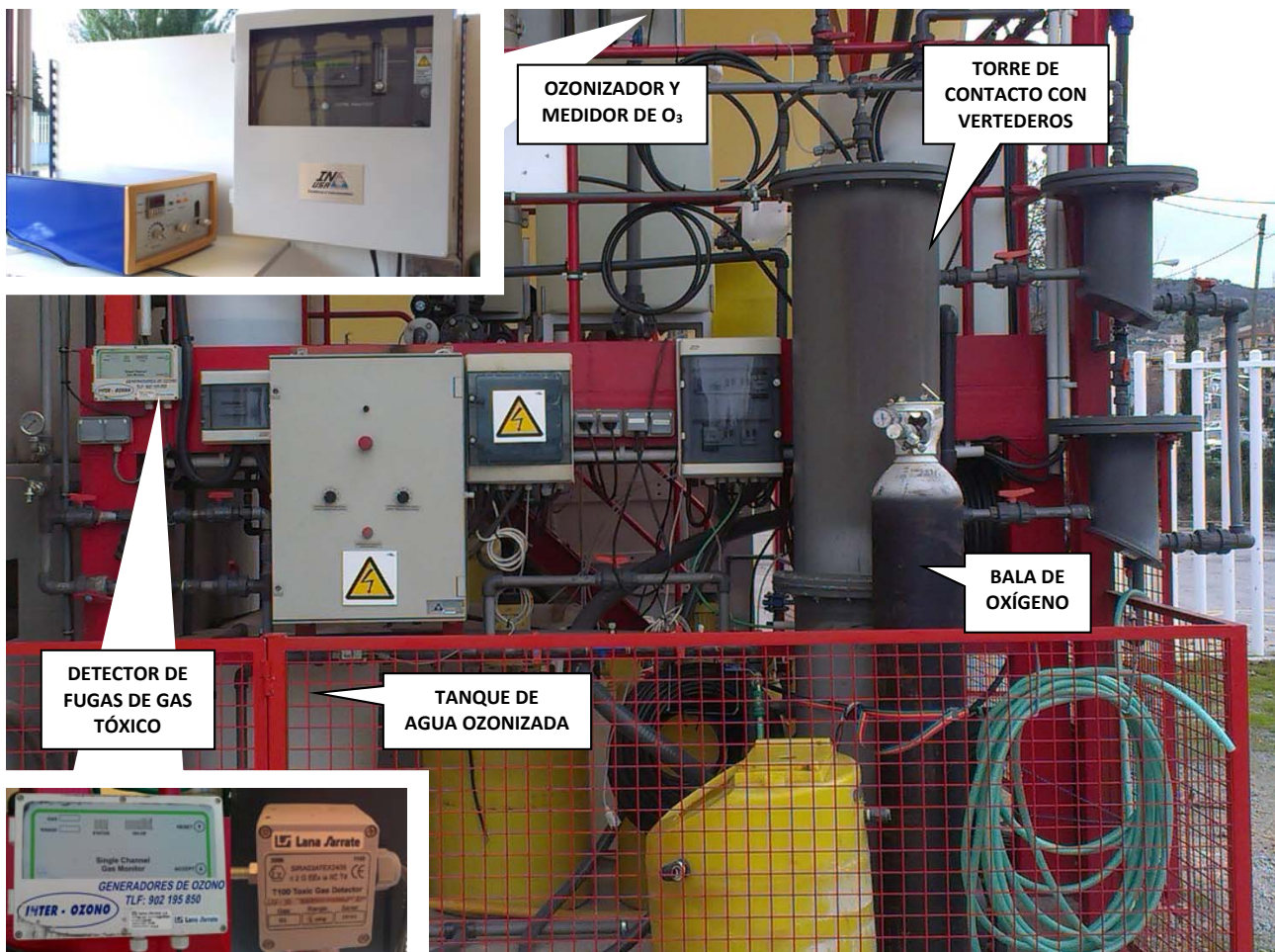


Figura 14. Sistema de ozonización.

3.1.5. Red de distribución de agua potable

Como parte fundamental para este estudio, la instalación disponía de una red de distribución de agua potable (Figura 15) simulada con 300 metros de tubería de polietileno de 14 mm de diámetro interno y una bomba centrífuga (ESPA Tecno 05 4M, 6-36 L/min) con el objetivo de conseguir que el agua circulara por la red a una velocidad aproximada de 1 m/s, valor intermedio entre el mínimo y máximo admisible (0,5-2 m/s) en el cálculo del dimensionado de una red de distribución real según lo establecido en el Código Técnico de la Edificación DB-HS4 (Ministerio de Fomento, 2009).

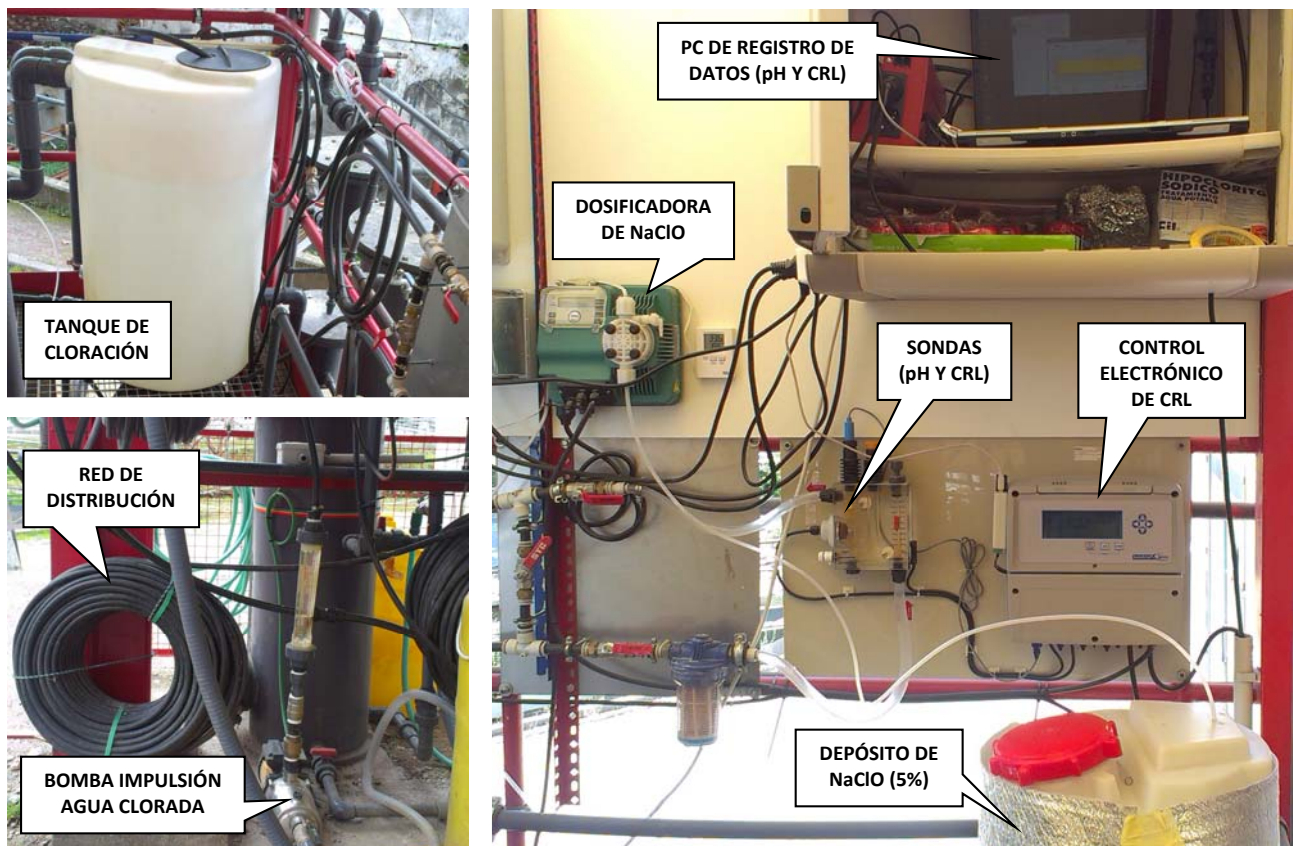


Figura 15. Red de distribución y sistema de post-cloración.

Para la desinfección química del agua se contaba con un sistema de post-cloración (Figura 15). Siguiendo la línea del proceso, el tanque de cloración recibía el agua permeado por rebose del tanque de permeado y el agua clorada permanecía en continua recirculación dentro de la red hasta su salida final del sistema también por rebose. Entre la bomba de impulsión y la red de distribución, la línea contaba con un baipás para el control del CRL en la red. Por este ramal se hacía pasar una porción del caudal de agua (60 L/h) hasta un portasondas donde se encontraban alojadas las sondas de medida de pH y CRL (electrodo cobre-platino). Dichas sondas estaban conectadas a un equipo electrónico de control de cloro (SEKO Kontrol 800 PC, rango CRL: 0-5 ppm) y éste a un ordenador donde, mediante el software SekoNet, quedaba registro de los datos referentes a ambos parámetros. El lazo de control contaba en su programación con un valor de consigna o set-point para el CRL de 0,4 mg/L, valor seleccionado en función del pH del agua. El elemento actuador del lazo de control era una bomba dosificadora (BAEZA BSPG) que dosificaba el agente desinfectante (NaClO, 5%) al agua de la red en función del error detectado en la variable de control CRL (diferencia entre el valor medido y el set-point). De esta forma, cuando el nivel de CRL medido por la sonda era inferior al punto de consigna establecido, la dosificadora inyectaba hipoclorito sódico en la red y una vez alcanzado el valor de consigna, el controlador desactivaba la inyección de la dosificadora hasta nuevo error.

Por este tipo de funcionamiento fue necesario realizar unos ensayos previos para determinar la concentración de NaClO que minimizara las fluctuaciones en el nivel de CRL provocadas por dicho funcionamiento del sistema de control sin que a su vez bajara la efectividad del agente desinfectante por un grado de dilución excesivo, llegando a una solución de compromiso del 5% como concentración óptima.

3.2. DESARROLLO EXPERIMENTAL

3.2.1. Fases experimentales del estudio

En base a los objetivos marcados en esta investigación, se plantearon dos grandes fases experimentales: la primera de ellas, llamada “*estudio evolutivo*”, enfocada al análisis de todas las variables medidas en la RDAP a lo largo del tiempo; y la segunda de ellas, denominada “*estudio comparativo*”, para estudiar la influencia del tipo de tratamiento sobre la calidad del agua potable en la red de distribución.

3.2.1.1. Fase de estudio evolutivo

Para esta fase se contó con una única red de distribución experimental (denominada RED 1) que estuvo operativa durante aproximadamente catorce meses. Durante todo este tiempo el agua que circulaba por la red experimental fue tratada por los distintos pretratamientos estudiados en el orden que se muestra en la Figura 16, contando también con periodos de no operación de la planta entre un tratamiento y otro debido a problemas operacionales con la instalación experimental.

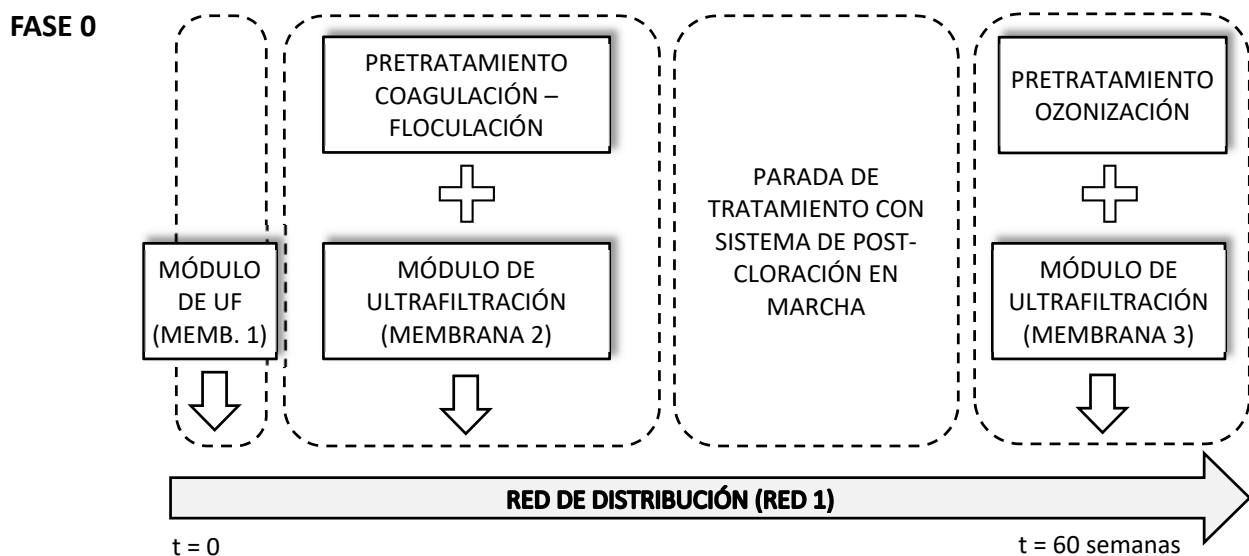


Figura 16. Conformaciones de la línea de proceso ensayadas en la fase de estudio evolutivo de la red de distribución.

Cada vez que se cambiaba de pretratamiento también se cambiaba la membrana de ultrafiltración (membranas 1, 2 y 3) para que las condiciones en las que se hallara ésta tras su vida útil no fuera una variable más del proceso.

3.2.1.2. Fases de estudio comparativo

Para el estudio de la influencia del pretratamiento en la calidad del agua de la red de distribución, se estableció una fase experimental por cada pretratamiento de potabilización. La Figura 17 muestra la línea de proceso con la que se operó la planta en cada una de estas fases experimentales.

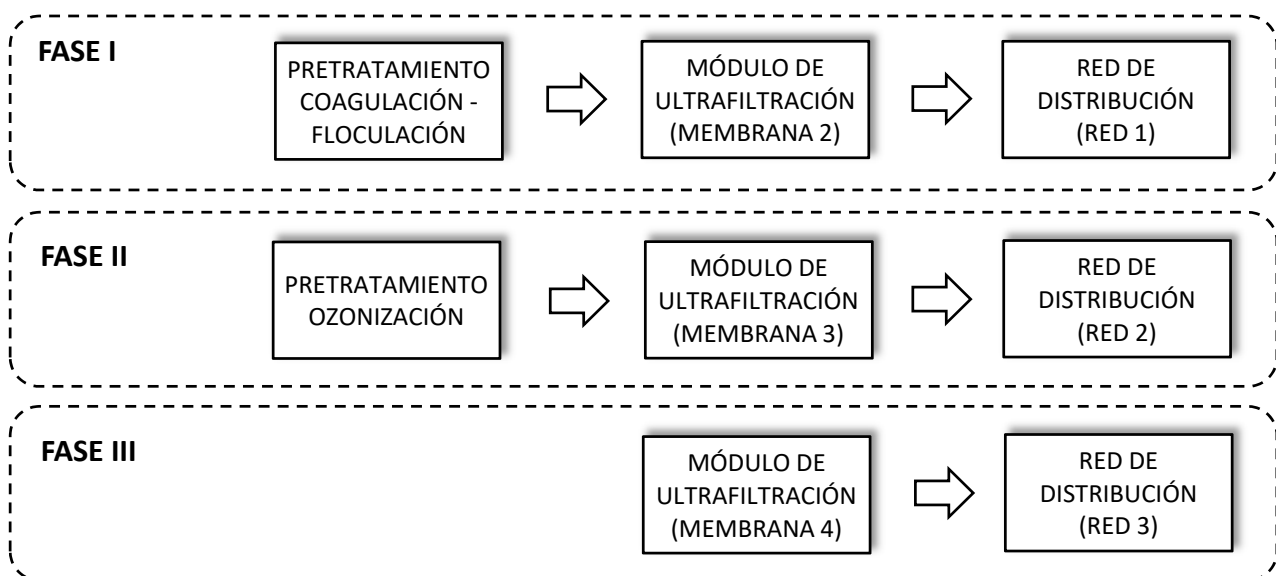


Figura 17. Conformaciones de la línea de proceso ensayadas en cada fase experimental.

Para cada fase del estudio se contó con una membrana y una red de distribución nueva pero de idénticas características con objeto de que las condiciones de partida fueran las mismas y así los ensayos fueran comparables entre sí.

Como se muestra en la Figura 17, la primera fase del estudio se llevó a cabo empleando el pretratamiento de coagulación-floculación seguido por el módulo de ultrafiltración (CF+UF). En la segunda fase el agua fue tratada primero con una ozonización y después con la ultrafiltración (O₃+UF). Y por último, en la tercera fase se empleó sólo la membrana de ultrafiltración (UF) como único tratamiento del agua antes de pasar a la red de distribución experimental (RDE).

La duración de cada fase vino marcada por el estudio de la evolución de la biopelícula en la red de distribución experimental ya que éste era el parámetro que necesitó de más tiempo para ver una evolución

temporal perceptible y comparable entre fases. En consecuencia, cada una de las fases experimentales se llevó a cabo durante el período que se indica en la Tabla 6.

Tabla 6: Períodos que abarcan las distintas fases del estudio evolutivo y comparativo.

	Tratamiento	Fecha inicio	Fecha fin	Nº semanas
FASE 0	Mixto	18/02/2013	06/04/2014	60
FASE I	CF + UF	18/03/2013	01/09/2013	24
FASE II	O ₃ + UF	21/04/2014	23/11/2014	31
FASE III	UF	01/12/2014	12/04/2015	19

3.2.2. Agua de alimentación

El agua bruta o agua de alimentación con la que se trabajó en la investigación fue en su mayoría agua preparada con agua de red a la que se le añadía un producto comercial (Carbotecnia Húmico 10-10, de Carbotecnia S.L.) que es una enmienda orgánica a base de sustancias húmicas procedentes de Leonardita. La cantidad de esta mezcla de extractos húmicos-fúlvicos fue estimada de tal manera que el agua sintética preparada tuviera una concentración de carbono orgánico disuelto (COD) de unos 6,5 mg/L aproximadamente para simular un agua de baja calidad. Además, cada cierto tiempo también se añadía a la mezcla una parte de agua procedente de la acequia cuando era necesario para contar con cierto aporte de microorganismos. La Tabla 7 recoge la caracterización media del agua de alimentación a planta que se empleó durante la experimentación.

Tabla 7. Caracterización físico-química y microbiológica del agua de alimentación a planta experimental.

Parámetro	Valor paramétrico ($\bar{X} \pm \sigma$)
Turbidez (UNT)	3,96 ± 2,61
COT (mg/L)	7,21 ± 2,44
COD (mg/L)	6,54 ± 2,15
UV ₂₅₄ (m ⁻¹)	14,08 ± 6,26
SUVA (L/mg-m)	2,17 ± 0,87
Color ₄₃₆ (m ⁻¹)	2,31 ± 1,00
Color ₅₂₅ (m ⁻¹)	1,12 ± 0,51
Color ₆₂₀ (m ⁻¹)	0,71 ± 0,50
THM (ppb)	n.d.
RC ₂₂ (ufc/mL)	1076 ± 910
<i>E. coli</i> (ufc/100mL)	0,00 ± 0,01
pH	8,23 ± 0,09

n.d.: no detectado

3.2.3. Condiciones operacionales de la planta

Con objeto de poder comparar la calidad del agua en la red de distribución experimental entre las distintas fases del estudio, así como la evolución de la biopelícula en su interior, la planta piloto se operó bajo las mismas condiciones en todas las fases. Estas condiciones fueron fijadas en función de los resultados obtenidos en investigaciones previas llevadas a cabo en la misma instalación experimental, las cuales estuvieron enfocadas a la optimización del proceso de producción de agua potable con membranas de ultrafiltración (Rojas-Serrano *et al.*, 2015a).

A continuación se definen los parámetros operacionales que fueron fijados en la instalación experimental, así como los valores con los que se trabajó para cada uno de ellos (Tabla 8).

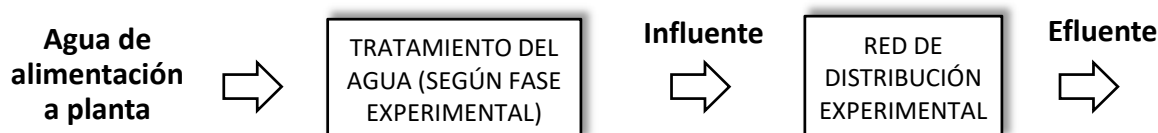
- Tiempo de ciclo: periodo de tiempo existente entre un contralavado y el siguiente, es decir, es el tiempo real durante el cual la membrana estaba produciendo permeado por filtración.
- Caudal de permeado: caudal producido por la membrana de ultrafiltración.
- Caudal de alimentación: es el caudal de agua de entrada a planta, fijado en un valor algo superior al caudal de permeado por exigencias del funcionamiento del módulo de ultrafiltración.
- Tiempo de contralavado: duración del proceso de lavado de la membrana.
- Caudal de contralavado: caudal de permeado que era introducido a través de la membrana en contracorriente para el lavado de la misma.
- Caudal de aireación: caudal de aire suministrado por la soplante en el tanque de membrana para la aireación de la misma.
- Concentración de coagulante: concentración de Cl_3Fe añadido al agua de alimentación en la fase en la que se empleó el pretratamiento de coagulación-floculación.
- TRH: tiempo de retención hidráulica del floculador.
- Gradiente: gradiente de velocidad empleado en el floculador hidráulico.
- Caudal de ozono: es el caudal de O_3 producido por el ozonizador (a partir de oxígeno) con objeto de ozonizar el agua de alimentación durante la experimentación de la fase O_3 +UF.
- Concentración de ozono inicial: cantidad de O_3 en la corriente de gas generada.
- Dosis de ozono transferido (DOT): cantidad del O_3 producido transferido al agua. Si la transferencia no fuera completa, existiría una concentración de ozono residual en la línea gas.

Tabla 8. Condiciones operacionales de la instalación experimental.

Parámetro	Valor
Tiempo de ciclo	30 min
Caudal de permeado	1 m ³ /h
Caudal de alimentación	1,3 m ³ /h
Tiempo de contralavado	30 s
Caudal de contralavado	1,5 m ³ /h
Caudal de aireación	15 Nm ³ /h
Concentración coagulante	50 mg/L
TRH (floculador)	20 min
Gradiente (floculador)	50 s ⁻¹
Caudal de ozono (ozonizador)	0,18 Nm ³ /h
Concentración de ozono inicial	25 g O ₃ /Nm ³
DOT	3,7 g O ₃ /m ³

3.2.4. Muestreo

Para evaluar la calidad del agua, se tomaron muestras tanto del agua de entrada a la red de distribución (*influyente*), que era el permeado producido por la membrana tras el tratamiento de potabilización correspondiente, como del agua clorada que circulaba por la red de distribución experimental (*efluente*). Y para el estudio de la evolución de la biopelícula que podía formarse en las paredes internas de la red de distribución, también se tomaron muestras de la tubería que conformaba la red.

**Figura 18. Puntos de toma de muestras de agua.**

Para el análisis de los distintos parámetros microbiológicos del agua, las muestras de influente y efluente fueron tomadas diariamente en la boca de la tubería de la red de distribución experimental en frascos estériles de 100 mL (conteniendo 1 mL de Na₂S₂O₃ al 3 %) y transportadas en nevera (4°C) hasta el laboratorio. Una vez allí, se mantuvieron refrigeradas (4°C) hasta su análisis, previo a 24 horas tras la toma. Para el análisis del resto de parámetros (físico-químicos), se recogieron también a diario muestras de influente y efluente en botes de plástico de 1 L y transportados igualmente en nevera hasta el laboratorio, donde eran analizadas en el mismo día.

Para el estudio de la biopelícula formada en la red de distribución se cortó mensualmente un fragmento de aproximadamente 2 cm de la tubería de polietileno que forma la red experimental. Estas muestras eran tomadas de un punto medio aleatorio de la tubería. En el mismo momento de la recogida, la muestra era conservada en un bote estéril con una solución de glutaraldehído al 3% en tampón PBS (130 mM NaCl y 10 mM $\text{Na}_2\text{HPO}_4/\text{NaH}_2\text{PO}_4$ pH 7) para fijar los tejidos de la posible biopelícula que pudiera estar adherida a las paredes interiores de la tubería y estos botes eran conservados en el frigorífico (4°C) hasta su análisis. Hay que señalar que antes de comenzar cada una de las fases de investigación, al instalar una red de distribución nueva, se mantenía circulando agua limpia por su interior durante un par de días para que siempre se partiera de una tubería totalmente limpia y a continuación se tomaba la primera muestra (muestra control o *blanco*).

3.2.5. Variables y parámetros del sistema

En la Figura 19 se muestran todas las variables estudiadas que conformaron el sistema y definieron el proceso.

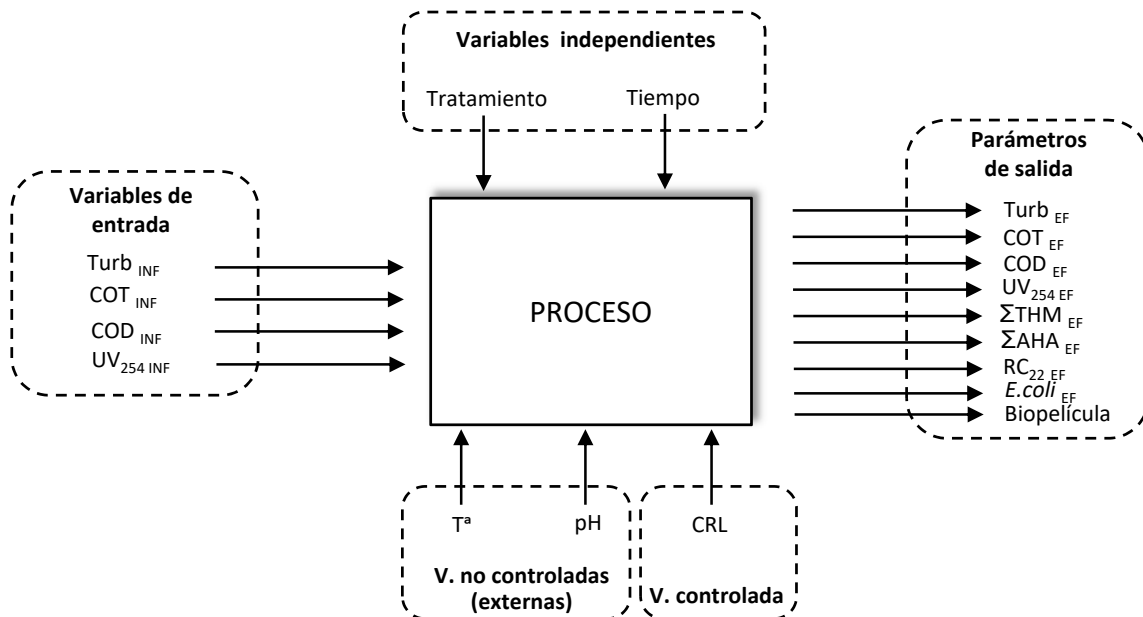


Figura 19. Variables y parámetros de entrada (INF) y salida (EF) del sistema según tipología.

En este estudio se definieron como *variables independientes* aquellas fijadas por el investigador y que son las responsables de los cambios producidos en el sistema. Éstas fueron:

- Tratamiento: tipo de tratamiento empleado en la potabilización del agua de alimentación. Esta variable cualitativa nominal puede tomar los valores UF, CF+UF, O₃+UF y OFF.

- Tiempo: variable cuantitativa continua que establece la duración del ensayo en cada fase de estudio (semanas).

El sistema también contó con unas *variables no controladas*, que pudieron ser evaluadas pero no controladas ni manipuladas por depender de factores externos, como son:

- Temperatura (T^a): temperatura del agua en la red de distribución ($^{\circ}\text{C}$).
- pH: índice de acidez o basicidad del agua de la red de distribución (unidades de pH).

Y una *variable controlada*, es decir, una variable fijada por el investigador que se mantuvo igual en todos los experimentos gracias a un lazo de control por retroalimentación, y que fue:

- Cloro residual libre (CRL): concentración de cloro no combinado presente en el agua de la red de distribución (mg/L).

Se tomaron como variables de entrada aquellas que viéndose afectadas por las variables independientes, externas y controlada, eran medibles pero no manipulables. Entre ellas están:

- Turbidez (Turb): medida el grado de transparencia del agua (unidades nefelométricas de turbidez o UNT).
- Carbono orgánico total (COT): medida de la concentración de carbono orgánico total presente en el agua (mg/L).
- Carbono orgánico disuelto (COD): medida de la concentración de carbono orgánico presente en el agua (mg/L) y que pasa a través de un filtro de $0,45\ \mu\text{m}$.
- Absorbancia ultravioleta a 254 nm (UV_{254}): partiendo de la expresión general de la absorbancia [$A = -\log(I/I_0)$], la UV_{254} se define como el logaritmo negativo del cociente entre la intensidad de radiación a 254 nm que atraviesa una disolución (muestra de agua) y la intensidad de esa misma radiación que atraviesa una disolución blanco (agua destilada). A pesar de ser definida como el logaritmo de un cociente, lo cual convertiría a esta variable en una magnitud adimensional, esta variable se ha expresado en unidades de m^{-1} ya que la intensidad atravesada depende de la longitud del paso o tamaño de la cubeta empleada en su medida.

Los *parámetros* son aquellas magnitudes que reflejan el comportamiento del sistema en función de todas las variables (independientes, de entrada, controladas y no controladas), y que fueron:

- Turbidez, COT, COD y UV_{254} : definidas anteriormente.

- Sumatoria de trihalometanos (ΣTHM): suma de la concentración de cada uno de los cuatro trihalometanos existentes (Cl_3CH , Cl_2BrCH , ClBr_2CH y Br_3CH) presentes en el agua (ppb).
- Sumatoria de ácidos haloacéticos (ΣAHA): suma de la concentración de cada uno de los nueve ácidos haloacéticos existentes ($\text{ClCH}_2\text{CO}_2\text{H}$, $\text{Cl}_2\text{CHCO}_2\text{H}$, $\text{Cl}_3\text{CCO}_2\text{H}$, $\text{BrCH}_2\text{CO}_2\text{H}$, $\text{Br}_2\text{CHCO}_2\text{H}$, $\text{Br}_3\text{CCO}_2\text{H}$, $\text{BrClCHCO}_2\text{H}$, $\text{Br}_2\text{ClCCO}_2\text{H}$, $\text{Cl}_2\text{BrCCO}_2\text{H}$) presentes en el agua (ppb).
- Recuento de colonias a 22°C (RC_{22}): número total de unidades formadoras de colonias de bacterias aerobias mesófilas presentes en el agua (ufc/mL).
- Recuento de *Escherichia coli* (*E. coli*): número total de unidades formadoras de colonias de la bacteria *Escherichia coli* presentes en el agua (ufc/100mL).
- Biopelícula: recuento de bacterias adheridas a las paredes internas de la conducción que conforma la red de distribución experimental (bact/mm²).

Además de todas estas variables y parámetros mostrados en la Figura 19, se definieron algunos parámetros útiles para el estudio de este trabajo de investigación, interpretando estos como una relación numérica entre determinadas variables y/o parámetros del sistema:

- Índice de absorbancia ultravioleta específica (SUVA): mide el carácter aromático de la materia orgánica disuelta (L/mg·m). Su cálculo sigue la expresión:

$$\text{SUVA} = \frac{\text{UV}_{254}}{\text{COD}} \cdot 100$$

- Incremento de una variable o parámetro X (ΔX): es la relación entre el valor de una determinada variable o parámetro a la salida de la RDE con respecto a su valor de entrada a la misma (%). Este parámetro se obtiene a partir de la ecuación:

$$\Delta X = \frac{X_{\text{EF}} - X_{\text{INF}}}{X_{\text{INF}}} \cdot 100$$

- Porcentaje de eliminación por tratamiento (% E_T): mide el porcentaje de eliminación o reducción de un determinado parámetro debido al uso del tratamiento, es decir, la relación entre el valor paramétrico medio del agua bruta y el valor paramétrico medio del agua permeada (aquí llamado influente). Este parámetro se obtiene a partir de la ecuación:

$$\% E_T = \frac{\bar{X}_{\text{AB}} - \bar{X}_{\text{INF}}}{\bar{X}_{\text{AB}}} \cdot 100$$

- Porcentaje de aumento en la RDE (% A_{RDE}): mide el porcentaje de aumento o acrecentamiento de un determinado parámetro debido al paso del agua por la red de distribución experimental, es decir, la relación entre el valor paramétrico medio del agua permeada (o influente) y el valor paramétrico medio del agua final (o efluente). Este parámetro se obtiene a partir de la ecuación:

$$\% A_{RDE} = \frac{\bar{X}_{EF} - \bar{X}_{INF}}{\bar{X}_{INF}} \cdot 100$$

3.3. METODOLOGÍA ANALÍTICA

3.3.1. Variables de control continuo

Para un control del proceso más exhaustivo, las variables controladas y no controlada (temperatura, pH y cloro residual libre) fueron medidos *in situ* de manera continua (cada minuto) y registrados simultáneamente.

3.3.1.1. *Temperatura*

La temperatura del agua fue medida con un medidor-transmisor de temperatura (HENDRESS+HAUSER TMT181). Esta unidad medía la temperatura mediante un sensor eléctrico que transmitía una señal de corriente estándar (4 a 20 mA) hasta un registrador de datos (HENDRESS+HAUSER RSG30), el cual se configuró para que registrase un dato de temperatura cada minuto las 24 horas del día. Mediante el software ReadWin2000 proporcionado para ello, se podían visualizar y exportar los datos de cualquier periodo de tiempo para su consulta o tratamiento.

3.3.1.2. *pH*

El pH del agua fue medido gracias a una sonda de pH alojada en el portasondas del sistema de post-cloración (Figura 15). Mediante un software específico (SekoNet), se programó el registro de valores de pH cada minuto durante todo el día, que después podrían ser exportados para su análisis.

3.3.1.3. *Cloro residual libre*

El cloro residual libre en el agua se midió con una sonda de cloro de electrodo cobre-platino alojada en el portasondas del sistema de post-cloración (Figura 15) y cuyo rango de medición era de 0 a 5 ppm. Al igual que en el caso del pH, gracias al mismo software (SekoNet) se almacenaron en un ordenador los valores de este parámetro de forma continua (cada minuto), pudiendo exportar todo el historial de datos para su análisis y estudio.

3.3.2. Turbidez

La determinación de la turbidez en el laboratorio se realizó siguiendo la técnica descrita por (Gómez y Hontoria, 2003) sobre muestras filtradas (0,45 μm), empleando para ello un turbidímetro (DINKO D-112) con lámpara de tungsteno de amplia banda espectral.

Antes de medir la muestra, el equipo se calibró mediante una recta patrón de formacina. Para preparar la suspensión madre de formacina se disuelven 10 g de hexametilentetramina ($\text{C}_6\text{H}_{12}\text{N}_4$) sobre 100 mL de agua destilada, y 1 g de sulfato de hidracina ($\text{N}_2\text{H}_6\text{SO}_4$) sobre 100 mL de agua. Se trasvasan 5 mL de cada una de estas dos soluciones a un matraz de 100 mL, dejando reposar la solución 24 horas a 25°C. Tras este tiempo se enrasa hasta 100 mL obteniendo una solución madre de 400 UNT (Unidades Nefelométricas de Turbidez), a partir de la cual se obtienen las distintas diluciones que precisa el turbidímetro para su calibración.

Una vez calibrado el equipo, la muestra filtrada a analizar se introdujo en una cubeta portamuestra de vidrio, completamente limpia y en perfecto estado. Colocando la cubeta en el interior del turbidímetro, éste hace pasar un rayo de luz a través de la muestra, mide la luz difractada por las partículas en un ángulo de 90° con respecto al rayo incidente y devuelve la lectura en UNT. El diseño del equipo cumple las normas EPA descritas en "Methods for Chemical Analysis of Water and Wastes" (USEPA, 1983).

3.3.3. Materia orgánica natural

La presencia de materia orgánica natural (MON) en agua se cuantificó mediante la medición de ciertos parámetros físico-químicos como son el carbono orgánico total y disuelto, la absorbancia ultravioleta a 254 nm, obteniendo a partir de ellos el índice SUVA.

3.3.3.1. *Carbono orgánico total y disuelto*

Para la medida del carbono orgánico total (COT) y carbono orgánico disuelto (COD) se empleó el equipo "Formacs^{HT} TOC/TN Analyzer" de SKALAR, que es un sistema de combustión catalítica de alta temperatura y detección de CO_2 por infrarrojos.

De una misma muestra de agua se tomaban dos porciones (8 mL aproximadamente), una de las cuales era filtrada por un filtro de 0,45 μm para la determinación del COD y la otra sin filtrar para la determinación del COT. Los viales con las muestras a analizar se colocaban en el carrusel del equipo y mediante un muestreador automático, la muestra era inyectada hasta el piro tubo que contenía un catalizador de cobalto. En el piro tubo, a una temperatura de 950°C, se producía la oxidación catalítica completa del carbono total

(orgánico e inorgánico) a dióxido de carbono y éste, tras una refrigeración termoeléctrica, era medido por un detector de infrarrojo no dispersivo. Una segunda inyección de la muestra era introducida en un reactor líquido de baja temperatura en medio ácido (H_3PO_4 al 85%) donde el carbono inorgánico era purgado como CO_2 , el cual era medido por detección con infrarrojo. De esta forma el carbono orgánico era calculado por diferencia entre el carbono total y el inorgánico ($\text{CO} = \text{CT} - \text{CI}$).

Para el cálculo de la concentración de carbono, el equipo necesitaba como referencia realizar un análisis previo de dos rectas de calibración (una de CT y otra de CI) que fueron preparadas como sigue. Para la recta de CT se preparó una disolución madre (1000 mgC/L) disolviendo 2,1254 g de biftalato de potasio ($\text{C}_8\text{H}_5\text{KO}_4$, Panreac) en agua destilada y enrasando hasta 1 L. En el caso de la recta de CI, el patrón (1000 mgC/L) se obtuvo disolviendo 4,4122 g de carbonato sódico anhidro (Na_2CO_3 , Panreac) y 3,497 g de bicarbonato de sodio anhidro (NaHCO_3 , Panreac) en agua destilada y enrasando a 1 L. De cada una de estas disoluciones madre o patrones se hicieron las correspondientes diluciones y fueron analizadas por el equipo con el mismo procedimiento descrito para una muestra.

3.3.3.2. *Absorbancia ultravioleta a 254 nm*

Para la medida de la absorbancia ultravioleta a 254nm (UV_{254}) se utilizó un espectrofotómetro UV-visible (Helios γ) trabajando a una longitud de onda de 254nm y empleando agua destilada como blanco. La muestra de agua a analizar era filtrada previamente por filtro de $0,45\mu\text{m}$ y se midió su absorbancia empleando cubetas de cuarzo de 1cm de paso. Los resultados de absorbancia se expresaron en m^{-1} .

3.3.3.3. *Índice SUVA*

La Absorbancia Ultravioleta Específica (índice SUVA) se empleó como un indicador del carácter aromático de la materia orgánica presente en la muestra. Como la absorbancia en el rango UV aumenta con la concentración del COD, la absorbancia ultravioleta específica debe normalizarse a través de la siguiente ecuación:

$$\text{SUVA} = \frac{\text{UV}_{254}}{\text{COD}} \cdot 100$$

Por tanto, esta fue la ecuación empleada en el cálculo del índice SUVA de cada muestra partiendo de los valores conocidos de UV_{254} y COD, los cuales fueron obtenidos como se ha descrito en los apartados anteriores.

3.3.4. Subproductos de desinfección

La red de distribución experimental poseía un sistema de post-cloración cuyo agente desinfectante era el hipoclorito sódico. Debido a la utilización de este desinfectante químico, cabía la posibilidad de que se generaran subproductos de desinfección en el agua de dicha red. El análisis de estos subproductos se particularizó a dos de los más importantes como son los trihalometanos y los ácidos haloacéticos, cuyo método de análisis se describe en los siguientes apartados.

3.3.4.1. *Trihalometanos*

Para el análisis de trihalometanos (THM), se tomaron muestras de 10 mL del efluente de la RDE que circulaba por la red de distribución y se conservaron congeladas (-20°C) en viales de vidrio con tapón roscado de aluminio y septum de caucho para asegurar su hermetismo hasta el momento del análisis.

La determinación de THMs se realizó mediante Cromatografía de Gases con detección Espectrométrica de Masas (CG-EM) usando el método EPA 551.1 (1990^a). El equipo de cromatografía estaba dotado de un sistema de purga y trampa para gases con sistema de captura de electrones para la detección (Thermo Instrument Systems Inc, California USA), y asociado a un espectrómetro de masas (Micromass International Ltd, Manchester UK). La cuantificación de THMs en las muestras de agua se determinó por comparación (Figura 20) con una recta de calibración construida por diluciones a partir de un patrón analítico comercial (SUPELCO Analytical) con una concentración para cada uno de los cuatro THMs (Cl_3CH , Cl_2BrCH , ClBr_2CH y Br_3CH) de 2000 $\mu\text{g}/\text{mL}$ en metanol.

3.3.4.2. *Ácidos haloacéticos*

Para el análisis de ácidos haloacéticos (AHA), las muestras de agua tomadas de la red de distribución experimental se conservaron congeladas a -18°C hasta su análisis.

La determinación de los AHA se realizó mediante extracción líquido-líquido y posterior determinación por cromatografía líquida (AGILENT, serie 1200) equipado con desgasificador, bomba binaria, muestreador automático y compartimento termostatzado para la columna, conectado a un detector de espectrometría de masas (AGILENT, modelo 6410) con fuente de ionización de electroespray y analizador de masas de triple cuadrupolo.

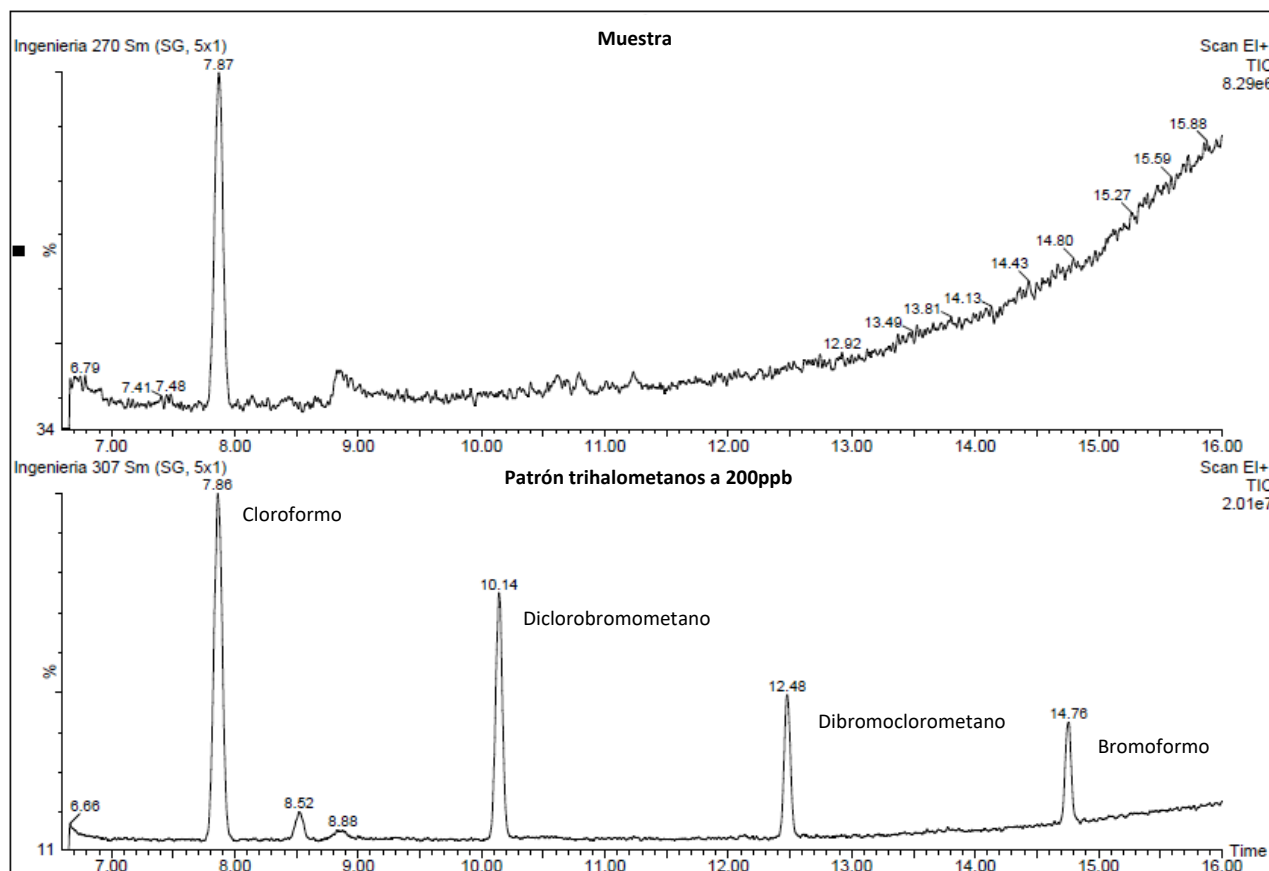


Figura 20. Comparación entre el análisis de una muestra de agua y un punto patrón de THMs.

El procedimiento de extracción se realizó siguiendo el método EPA 552.2 (1990b) con ligeras modificaciones. Para ello, 25 mL de muestra fueron acidificados a pH 0,5 con ácido sulfúrico y colocados en tubos de centrifuga de 50 mL. Se añadieron 1,25 g de sulfato de cobre pentahidratado y se agitó manualmente hasta completa disolución. Posteriormente se añadieron 10 g de sulfato de sodio para aumentar la fuerza iónica y favorecer así la extracción de los ácidos haloacéticos por la fase orgánica. La extracción se realizó empleando metil tert-butil éter (MTBE) como extractante orgánico. Para ello, se añadieron al tubo de centrifuga 4 mL de MTBE y se agitó manualmente durante 2 minutos. El extracto orgánico obtenido se trasvasó a un tubo de centrifuga de vidrio y se evaporó a sequedad con corriente de nitrógeno. El extracto seco se reconstituyó con 0,3 mL de metanol, se filtró por un filtro de 0,22 μm y 20 mL fueron inyectados en el cromatógrafo.

La ionización de los analitos se realizó a un voltaje del capilar de 3000 V, flujo de gas del nebulizador de 9 L/min, temperatura del gas de 350 $^{\circ}\text{C}$ y una presión del nebulizador de 40 psi. Los analitos se detectaron

en modo “multiplex-reaction-monitoring” (MRM) con ionización negativa. Las transiciones empleadas en la determinación se muestran en la Tabla 9.

Tabla 9: Parámetros empleados en el análisis de ácidos haloacéticos por espectrometría de masas de triple cuadrupolo empleando el modo MRM.

Ácido haloacético	Fórmula molecular	Nomenclatura	Precursor	MRM1	Fragmentador	Energía de colisión
ácido bromocloroacético	BrClCHCO ₂ H	BCAA	172,7	81	60	9
ácido bromodicloroacético	Cl ₂ BrCCO ₂ H	BDCAA	207	79	50	8
ácido clorodibromoacético	Br ₂ ClCCO ₂ H	CDBAA	251	79	56	8
ácido dibromoacético	Br ₂ CHCO ₂ H	DBAA	216,8	172,8	50	11
ácido dicloroacético	Cl ₂ CHCO ₂ H	DCAA	126,9	83	50	8
ácido monobromoacético	BrCH ₂ CO ₂ H	MBAA	136,7	78,5	56	4
ácido monocloroacético	ClCH ₂ CO ₂ H	MCAA	92,6	34,8	50	11
ácido tribromoacético	Br ₃ CCO ₂ H	TBAA	249	78,5	50	16
ácido tricloroacético	Cl ₃ CCO ₂ H	TCAA	161	79,1	60	12

La separación cromatográfica se realizó empleando una columna HALO C18 de 50x4,6 mm i.d. y 2,7 µm (TEKNOKROMA, España) y una fase móvil constituida por (A) metanol y (B) una disolución acuosa 10mM en acetato amónico, un flujo de 0,3 mL/min y una temperatura de columna de 35 °C. El programa de gradiente aplicado fue el siguiente: 0-3,5 min isocrático al 1,5 % de B; 3,5-8 min gradiente de B del 1,5 al 50 %; 8-9 min isocrático al 50 % de B; 9-10 min vuelta a las condiciones iniciales (1,5 % de B).

3.3.5. Recuento de colonias a 22°C en muestras de agua

Uno de los parámetros microbiológicos analizados para la evaluación de la calidad del agua fue el recuento de colonias a 22°C, tal y como establecen los criterios sanitarios recogidos en el Real Decreto 140/2003.

El método empleado para este recuento de bacterias aerobias mesófilas totales (AMT) fue el de filtración por membrana (UNE-EN ISO 6222:1999). Para la determinación analítica se filtró un volumen de muestra determinado (100 mL, 10 mL y 1 mL) para cerciorarse de obtener un recuento válido (entre 20 y 200 colonias) a través de un filtro estéril de 0,45 µm (Millipore) y empleando para ello un equipo de filtración en condiciones de esterilidad. Tras la filtración de la muestra, el filtro era colocado sobre la superficie de una placa Petri que contenía agar triptonado de soja (TSA) como medio de cultivo y se incubaba durante 48 horas a 22°C en oscuridad. Transcurrido ese tiempo, se hacía el recuento visual de todas las colonias crecidas en la placa, expresando los resultados en unidades formadoras de colonias (u.f.c.) por cada 100 mL.

El medio de cultivo TSA fue preparado según las indicaciones del fabricante (Difco™). Para su preparación se resuspendieron 20 g en 500 mL de agua destilada en un matraz de fondo plano y se esterilizó en autoclave durante 30 minutos a 105°C. Después era atemperado hasta los 50°C aproximadamente para proceder al reparto del medio en placas Petri en condiciones de esterilidad (campana de flujo laminar). Las placas una vez solidificadas se conservaron en frigorífico (4°C) en bolsas cerradas herméticamente hasta su utilización.

3.3.6. Recuento de *Escherichia coli* en muestras de agua

Otro de los parámetros microbiológicos analizados para la evaluación de la calidad del agua y recogido en el Real Decreto 140/2003 fue el recuento de *Escherichia coli*, especie bacteriana que pertenece al grupo de los coliformes, bacilo Gramnegativo y anaerobio facultativo.

Para la detección y recuento de *E. coli* del agua de muestra se siguió el método rápido descrito en la Norma UNE-EN ISO 9308-1:2000, el cual es de aplicación en aguas destinadas a consumo humano con bajas densidades bacterianas, como es el caso.

Este método, también de filtración por membrana, consistió en filtrar 100mL de muestra por una membrana de 0,45 µm (Millipore) en condiciones de esterilidad, y una vez filtrada el agua de muestra se colocó la membrana sobre una placa Petri con medio de doble capa TBA-TSA y se incubó en oscuridad a 37°C durante un periodo de 4 a 5 horas y, a continuación, se incubó a 44°C durante 19 a 20 h. Para el recuento de colonias positivas se saturó el filtro con un reactivo de indol (reactivo Kovacs) y se consideraron *E. coli* aquellas colonias que se teñían de rojo cereza. Los resultados se expresaron en unidades formadoras de colonias por cada 100 mL (u.f.c./100 mL).

Las placas Petri con medio de doble capa necesarias para este método fueron preparadas como se detalla a continuación. El medio de cultivo de agar triptonado de sales biliares o TBA (TryptoneBile Agar) fue preparado resuspendiendo 21 gramos de un preparado comercial (Difco™) en 500 mL de agua destilada en un matraz de fondo plano y para el medio TSA se resuspendieron 20 gramos de otro preparado comercial (Oxoid) en 500 mL de agua destilada en un frasco Schott. Ambas preparaciones (matraz con TBA y frasco con TSA) se esterizaron en autoclave durante 30 minutos a una temperatura de 105°C. El TBA, una vez atemperado a unos 50°C, se repartía en placas Petri en condiciones de esterilidad (campana de flujo laminar) y tras su solidificación eran conservadas en frigorífico (4°C) hasta su utilización. El TSA esterilizado era conservado en estado líquido dentro del frasco Schott cerrado en una estufa a 45-50°C hasta su utilización, momento en el que se vertía una capa de este TSA (flameando la boca del frasco antes de verter) sobre una

de las placas con TBA preparadas previamente ya que el método recomienda colocar la membrana sobre un medio de reciente preparación.

3.3.7. Evaluación de la biopelícula: recuento total de bacterias adheridas a las paredes de la red de distribución

El análisis sobre la generación de biopelícula en la red de distribución se realizó mediante microscopía electrónica de barrido (SEM) sobre los diferentes fragmentos de la red de distribución tomados tal y como se describe en el apartado 3.2.4.

Previo a la visualización de los fragmentos, estos se prepararon mediante deshidrataron a punto crítico (POLARON CPD 7501) y posteriormente se recubrieron con oro-paladio mediante pulverización catódica (POLARON E5000).

La visualización de las muestras ya preparadas se realizó mediante un equipo SEM (Zeiss DSM-950) operando a 5–30 kV con espectrómetro de energía dispersiva (EDS Link Analytical Pentafet Si (Li), SMT) y a una magnificación fija de 5000X. Se tomaron así unas 50 micrografías aproximadamente de cada muestra a partir de las cuales se llevó a cabo un recuento de bacterias observadas sobre la superficie calibrada siguiendo el método descrito por de la Rúa *et al.* (2008). De esta manera se obtuvo un valor medio del recuento de bacterias por unidad de superficie para cada fragmento de muestra.

3.4. TRATAMIENTO DE DATOS Y ANÁLISIS ESTADÍSTICO

3.4.1. Herramientas matemáticas y estadísticas

El análisis de toda la base de datos recopilada a lo largo de la experimentación fue desarrollado con diversas herramientas matemáticas y estadísticas en función de las necesidades de cada análisis.

Para el caso de los parámetros de control continuo, debido al gran volumen de datos a procesar, inicialmente se trataron con Microsoft® Office Excel 2010 mediante la programación de una macro personal con objeto de obtener una media diaria representativa.

La matriz de datos obtenida de cada fase experimental fue analizada con el software IBM® SPSS® Statistics 22.0 para el cálculo de los descriptivos estadísticos más importantes que definen cada parámetro como son la media (\bar{X}), mediana (\check{Y}), desviación estándar (σ) y varianza (σ^2). Con este mismo

software se realizó el análisis de varianzas (ANOVA) necesario para el estudio comparativo de las fases experimentales y que determina la existencia o no de diferencias estadísticamente significativas entre ellas. Para las comparaciones múltiples post hoc de este análisis se empleó el método de Student-Newman-Keuls (SNK), asumiendo homocedasticidad, y a un nivel de significación de 0,05. Además, también con IBM® SPSS® Statistics 22.0 se estudiaron las correlaciones entre los distintos parámetros del sistema mediante el coeficiente de correlación de Pearson (r) con un nivel de significación del 0,01 (fuerte) y 0,05 (moderada).

Para el análisis de los efectos combinados de las variables sobre los parámetros del sistema se hizo uso del software Canoco for Windows 4.5 con el que se realizaron los análisis de redundancia (RDA), bajo el test de permutación de Monte Carlo y siguiendo para su discusión los criterios que se muestran en la Tabla 10. Para el empleo apropiado de este método de ordenación lineal, previamente se verificó que los datos mantuvieran una correlación lineal mediante un análisis de correspondencias sin tendencia que puede realizar el mismo Canoco (Lepš and Šmilauer, 2003).

Tabla 10: Criterio de correlación entre variables de entrada y salida del sistema vectorial definido en los análisis RDA.

Ángulo entre vectores	Correlación
$\alpha \leq 30^\circ$	Fuerte positivamente
$30^\circ < \alpha < 60^\circ$	Débil positivamente
$60^\circ < \alpha < 120^\circ$	No existe
$120^\circ < \alpha < 150^\circ$	Débil negativamente
$150^\circ < \alpha < 180^\circ$	Fuerte negativamente

3.4.2. Depuración de datos

En este trabajo de investigación se consideró conveniente hacer un estudio estadístico previo de depuración de datos con el propósito de arrojar unos resultados finales fiables, de calidad y sin haber sido sesgados ni tratados de manera arbitraria. Para ello se empleó una técnica de microdepuración de datos basada en la denominada *Detección de outliers* (Villan Criado y Bravo Cabria, 1990), cuyo fundamento es identificar los valores atípicos (VA) para poder decidir sobre su exclusión de la base de datos bajo el criterio de no distorsión de resultados en función de un parámetro estadístico que lo verifique.

Hay que señalar que este estudio previo se realizó tratando la base de datos fraccionada de manera independiente por etapas experimentales y analizando cada parámetro de manera individualizada, ya que el rango de valores para un mismo parámetro podía ser distinto en cada fase.

La metodología aplicada en cada uno de los casos fue la siguiente:

- 1º Determinación de los intervalos definidos por las expresiones [1] y [2], fuera de los cuales se encuentran los valores atípicos leves y extremos respectivamente.

$$[Q_1 - 1,5 \cdot IQR ; Q_3 + 1,5 \cdot IQR] \quad [1]$$

$$[Q_1 - 3 \cdot IQR ; Q_3 + 3 \cdot IQR] \quad [2]$$

donde Q_1 y Q_3 son el primer y tercer cuartil, e IQR es el rango intercuartílico definido por $Q_3 - Q_1$.

- 2º Estudio de la causalidad de los valores detectados como valores atípicos descartando, si los hubiera, aquellos que fuesen debidos a fallos humanos, errores del sistema experimental o de los equipos de control y análisis.
- 3º Cálculo de los descriptivos estadísticos media, desviación estándar, mediana y varianza para cada una de estas opciones:
- Opción A: sin excluir ningún VA de la base de datos original.
 - Opción B: excluyendo solamente los VA extremos.
 - Opción C: excluyendo tanto los VA extremos como leves.
- 4º Decidir sobre la exclusión o no de los valores atípicos extremos y/o leves de la base de datos original en función de la variabilidad que presenten las medias (muy sensibles a los VA) y medianas (poco sensibles a los mismos) comparando cada opción de las definidas en el punto anterior.

La nueva base de datos formada tras la aplicación de este método de depuración de datos descrito fue la empleada en adelante para la obtención de todos los resultados y conclusiones de esta investigación.

4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

4.1. ANÁLISIS EVOLUTIVO DE LA RED DE DISTRIBUCIÓN

La idea principal de esta fase de estudio era conocer si se produce o no un ensuciamiento en el agua de la red de distribución a lo largo del tiempo de operación en comparación con el influente que recibe la misma. Por ello, como ya se ha dicho, en esta fase de la investigación se contó con una única red de distribución (RDE 1) que estuvo operativa 60 semanas, durante las cuales el agua bruta fue tratada por todos los tratamientos especificados en la Figura 16.

4.1.1. Estudio estadístico previo

Aplicando el método de depuración de datos descrito en el apartado 3.4.2, los estadísticos descriptivos obtenidos en esta fase experimental para cada opción según los valores atípicos detectados fueron los mostrados en la Tabla 11.

Tabla 11. Estadísticos descriptivos de los parámetros y variables del estudio evolutivo para las opciones A (sin excluir valores atípicos), B (excluyendo valores atípicos extremos) y C (excluyendo valores atípicos extremos y leves).

	T_{EF}°	pH _{EF}	CRL _{EF}	TURB _{INF}	TURB _{EF}	COT _{INF}	COT _{EF}	COD _{INF}	COD _{EF}	UV254 _{INF}	UV254 _{EF}	RC22 _{EF}	THM _{EF}	
A	\bar{X}	19,50	7,73	0,48	1,47	1,95	4,81	5,89	4,66	5,64	4,72	4,61	0,31	21,88
	\tilde{Y}	19,44	7,76	0,45	1,40	1,66	4,53	4,70	4,63	4,63	3,48	2,70	0,00	14,50
	σ	6,12	0,64	0,14	0,49	1,63	2,34	3,22	1,84	3,03	4,01	4,97	1,06	34,59
	σ^2	37,49	0,41	0,02	0,24	2,64	5,48	10,35	3,39	9,15	16,08	24,69	1,11	1196,75
B	\bar{X}	19,50	7,73	0,48	1,43	1,79	4,81	5,89	4,60	5,64	4,72	4,61	-	-
	\tilde{Y}	19,44	7,76	0,45	1,37	1,65	4,53	4,70	4,65	4,63	3,48	2,70	-	-
	σ	6,12	0,64	0,11	0,38	0,80	2,34	3,22	1,74	3,03	4,01	4,97	-	-
	σ^2	37,49	0,41	0,01	0,14	0,65	5,48	10,35	3,03	9,15	16,08	24,69	-	-
C	\bar{X}	19,50	7,73	0,48	1,43	1,79	4,81	5,89	4,60	5,64	4,72	4,61	-	-
	\tilde{Y}	19,44	7,76	0,45	1,37	1,65	4,53	4,70	4,65	4,63	3,48	2,70	-	-
	σ	6,12	0,64	0,11	0,38	0,80	2,34	3,22	1,74	3,03	4,01	4,97	-	-
	σ^2	37,49	0,41	0,01	0,14	0,65	5,48	10,35	3,03	9,15	16,08	24,69	-	-

Nomenclatura: \bar{X} = media, \tilde{Y} = mediana, σ = desviación estándar, σ^2 = varianza, ■ Valor diferente al obtenido en la opción A.

Cabe señalar que el método de depuración de datos para detección de valores atípicos no se aplicó para los parámetros RC₂₂ y THMs, puesto que por su idiosincrasia son parámetros que pueden alcanzar valores muy dispares y no por ello ilógicos ni desechables, admitiendo por tanto como válido cualquier valor obtenido en su análisis.

No se detectó valor atípico alguno para las variables temperatura, pH, COT_{INF}, COT_{EF}, UV254_{INF}, UV254_{EF}, como demuestra la igualdad de los estadísticos descriptivos comparando los tres casos (A, B y C) de

la Tabla 11. Por tanto, el método de depuración reveló que ningún valor de dichas variables tuvo que ser eliminado de la base de datos original.

Para el resto de variables ($TURB_{INF}$, $TURB_{EF}$ y COD_{INF}) pudo observarse que no hubo diferencia entre en los valores de los estadísticos de los casos B y C, lo que quiere decir que no hubo influencia de valores atípicos leves, solamente extremos. Por tanto, para decidir sobre la eliminación o no de esos VA extremos, se estudiaron dos aspectos: la causa de la ocurrencia de cada VA concreto, y la variación de la media y mediana entre las opciones A y C (sin y con exclusión de VA respectivamente), ya que la media es un estadístico mucho más sensible a los VA que la mediana.

Al comparar las medias y desviaciones típicas de estas variables en los casos A y C, la variación más acusada se dio en la turbidez del efluente ($TURB_{EF}$). Tras ver que la cantidad de VA no era significativa y su causalidad estaba motivada por perturbaciones externas que no representaban la realidad del proceso, se decidió eliminar dichos VA, decisión que se hizo extensiva también al resto de variables donde la diferencia no era tan significativa. De esta forma la media y desviación típica de los resultados finales serían más representativos del proceso sin condicionar la veracidad de los mismos. Por tanto, la base de datos final utilizada para la fase del estudio evolutivo fue la de la opción C (o B, ya que es este caso es la misma), es decir, excluyendo los valores atípicos.

4.1.2. Análisis estadístico complementario

A continuación se exponen todos aquellos resultados de los diferentes análisis estadísticos que han sido necesarios para la discusión de los datos del estudio evolutivo. Por un lado, en la Tabla 12 se han recopilado en forma de matriz los coeficientes de Pearson que muestran el grado de correlación entre todos los parámetros entre sí. Y por otro lado, la Figura 21 muestra la influencia que han tenido las variables del sistema sobre los parámetros estudiados.

En la Figura 21 se muestran las variables del sistema (vectores rojos) que, en orden decreciente de influencia, fueron: Tratamiento > Temperatura > $TURB_{INF}$ > $UV254_{INF}$ > COD_{INF} , todas ellas con p-valores muy significativos por debajo de 0,0120. Sin embargo, el CRL y el pH no mostraron significancia alguna dentro de este sistema, lógico si se tiene en cuenta que ambas variables se mantuvieron prácticamente constantes a lo largo del estudio. La variable “tiempo” se descartó en el RDA porque al introducirla, el factor de inflación de las variables “tiempo” y “tratamiento” era muy superior al de las demás. Para evitar esa redundancia se tomó como criterio de descarte la mayor desviación de valores y menor correlación con el resto de variables, cuestión que se daba en el caso del “tiempo”. Es por ello que se descartó esta variable a pesar de que pueda

parecer contradictorio al tratarse del estudio evolutivo pero realmente no es una decisión discordante, puesto que en el diagrama RDA inicial el vector “tiempo” queda prácticamente superpuesto con el vector “tratamiento”, y por tanto a la hora de discutir los resultados puede hablarse de uno u otro indistintamente.

Tabla 12. Matriz de coeficientes de correlación de Pearson (r) de todos los parámetros y variables del estudio evolutivo.

	T ^a _{EF}	pH _{EF}	CRL _{EF}	TURB _{INF}	TURB _{EF}	COD _{INF}	COD _{EF}	UV _{254INF}	UV _{254EF}	SUVA _{INF}	SUVA _{EF}	THM _{EF}	RC ₂₂	Biop.
T ^a _{EF}	1	-0,549	0,026	0,250	0,012	-0,273	-0,393	-0,450	-0,299	-0,495	-0,170	-0,292	0,185	0,601
pH _{EF}	-0,549	1	-0,209	-0,051	-0,150	0,393	0,368	0,477	0,402	0,438	0,276	0,150	0,044	-0,554
CRL _{EF}	0,026	-0,209	1	-0,032	0,057	0,033	0,028	0,194	-0,069	0,186	-0,131	0,213	0,025	-0,366
TURB _{INF}	0,250	-0,051	-0,032	1	0,492	-0,383	-0,306	-0,245	-0,291	-0,181	-0,177	-0,025	0,176	0,063
TURB _{EF}	0,012	-0,150	0,057	0,492	1	-0,098	-0,140	0,044	-0,287	-0,133	-0,270	0,110	0,090	0,597
COD _{INF}	-0,273	0,393	0,033	-0,383	-0,098	1	0,713	0,753	0,784	0,455	0,520	0,080	-0,264	0,406
COD _{EF}	-0,393	0,368	0,028	-0,306	-0,140	0,713	1	0,682	0,675	0,577	0,256	0,294	-0,231	-0,262
UV _{254INF}	-0,450	0,477	0,194	-0,245	0,044	0,753	0,682	1	0,963	0,883	0,770	0,317	-0,240	0,446
UV _{254EF}	-0,299	0,402	-0,069	-0,291	-0,287	0,784	0,675	0,963	1	0,807	0,841	0,195	-0,148	-0,001
SUVA _{INF}	-0,495	0,438	0,186	-0,181	-0,133	0,455	0,577	0,883	0,807	1	0,682	0,442	-0,196	0,592
SUVA _{EF}	-0,170	0,276	-0,131	-0,177	-0,270	0,520	0,256	0,770	0,841	0,682	1	0,037	-0,044	0,424
THM _{EF}	-0,292	0,150	0,213	-0,025	0,110	0,080	0,294	0,317	0,195	0,442	0,037	1	-0,083	-0,245
RC ₂₂	0,185	0,044	0,025	0,176	0,090	-0,264	-0,231	-0,240	-0,148	-0,196	-0,044	-0,083	1	0,704
Biop.	0,601	-0,554	-0,366	0,063	0,597	0,406	-0,262	0,446	-0,001	0,592	0,424	-0,245	0,704	1

■ Correlación significativa en el nivel 0,01 ■ Correlación significativa en el nivel 0,05

Con tales variables, el sistema bidimensional quedó explicado en un 97,1%, por lo que se asume que la representatividad del proceso por el RDA es muy alta. Y a partir de esta figura se pueden deducir qué variable/s explican el comportamiento de cada parámetro de salida (vectores azules).

Aunque cada uno de los parámetros se analizará más detalladamente en sus apartados correspondientes, haciendo una primera lectura del diagrama bidimensional se puede afirmar que el contenido en THMs del agua de la red de distribución estuvo fuertemente marcado por el tipo de tratamiento usado en la potabilización ($\alpha_{\text{THM-Trat.}} = 13^\circ$) pero no por el nivel de CRL ni el contenido en COD_{INF} como podría esperarse ya que son los dos factores que contribuyen a la generación de DBPs. Aunque el ángulo formado por los vectores COD_{INF} y THM ($\alpha = 158^\circ$) indicaría que existe una influencia fuerte negativa de uno sobre el otro, el poco peso específico que en este caso tiene esta variable permite cuestionar o despreciar dicha relación.

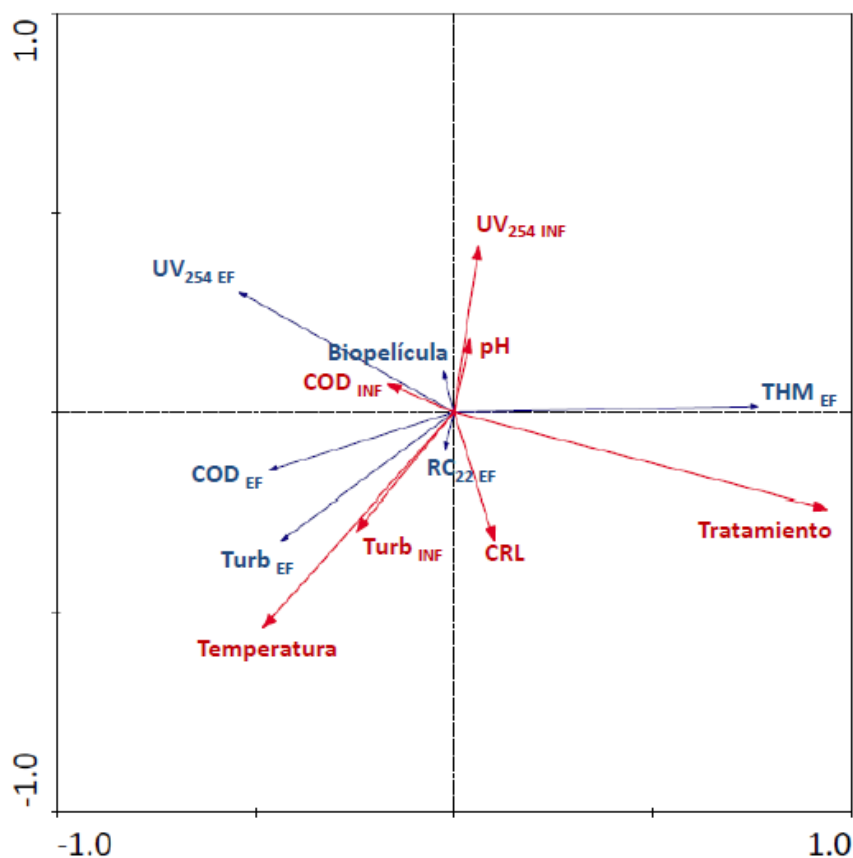


Figura 21. Diagrama bidimensional del análisis de redundancia (RDA) realizado al sistema en la fase de estudio evolutivo.

La turbidez del efluente se rigió fundamentalmente por la turbidez del agua de entrada a la red y la temperatura ($\alpha = 12^\circ$ y 13° respectivamente), y débilmente por el tipo de tratamiento ($\alpha = 140^\circ$). Además, ni la concentración de COD_{INF} ni de CRL influyeron en la turbidez del agua de la RDE ($\alpha = 60^\circ$ y 73°).

El parámetro COD_{EF} no estuvo marcado fuertemente por ninguna variable del sistema, tan sólo de una manera débil por la temperatura, la turbidez y el COD del influente y el tipo de tratamiento ($\alpha = 31^\circ$, 33° , 40° y 148° respectivamente). Pero la UV_{254} del efluente sí que estuvo fuertemente explicada por la concentración de COD_{INF} y el tratamiento ($\alpha = 4^\circ$ y 175°), y débilmente por el CRL ($\alpha = 147^\circ$).

Respecto a los parámetros microbiológicos, los vectores del diagrama son de poca longitud puesto que en el caso de la biopelícula el número de datos era escaso (un análisis mensual) y en el caso del RC_{22} la gran mayoría de los recuentos fueron negativos. Por ello las interpretaciones de estos parámetros a partir del RDA han de hacerse con cautela y teniendo en cuenta más análisis que se detallarán más adelante.

4.1.3. Evolución de las variables de control continuo

4.1.3.1. Temperatura

La temperatura del agua circulante por la red de distribución mostró una variación bastante amplia como puede verse en la Figura 22 dado que la duración de esta fase de estudio fue superior a un año, sufriendo por tanto las oscilaciones estacionales propias entre los meses de invierno y verano. También hay que tener en cuenta que estas oscilaciones pudieron verse magnificadas debido a que la red de distribución experimental se encontraba a la intemperie, así como por la influencia directa de la temperatura ambiental sobre los depósitos de acumulación de agua de alimentación a planta.

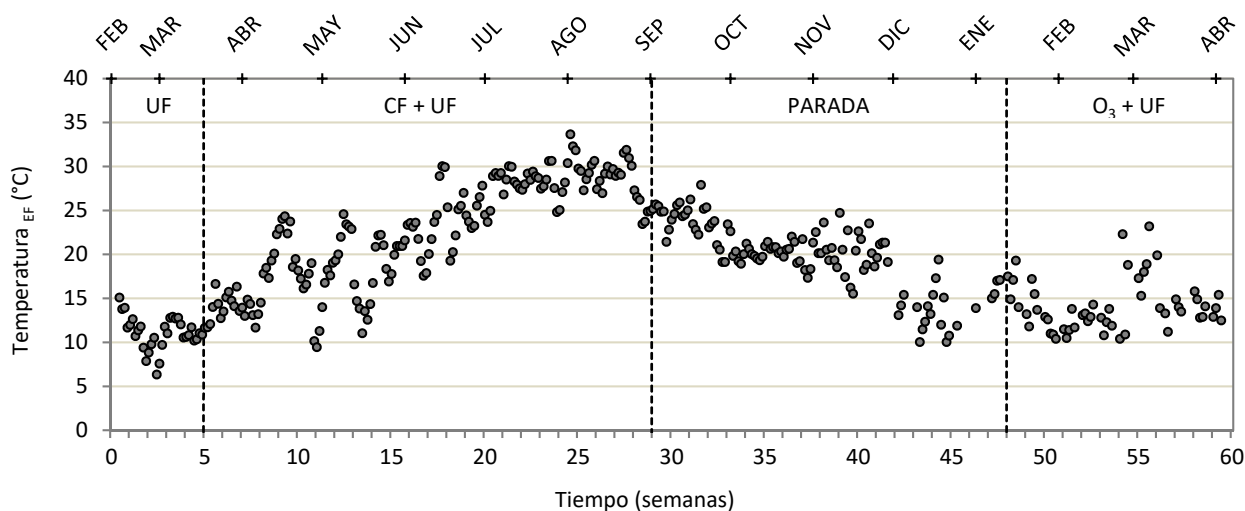


Figura 22. Evolución de la temperatura media diaria del agua de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

El registro de temperaturas del agua mostró un amplio espectro, abarcando valores inferiores a los 10°C en los meses más fríos del invierno, hasta los casi 34°C registrados en el mes de agosto, donde se llegó a temperaturas ambientales por encima de los 40°C en las inmediaciones de la instalación experimental.

En la Tabla 13 se detallan los valores medios de temperatura del agua para cada etapa ensayada en esta fase, marcada cada uno de ellas por el tratamiento de potabilización empleado. Las temperaturas del agua más altas se alcanzaron durante la etapa de CF+UF, sobre todo a finales de este periodo (Figura 22), con una media de 23 °C, mientras que la media más baja se dio en la etapa de UF con 11 °C. Pero hay que señalar que la diferencia existente entre las medias de los distintos subperiodos, así como su oscilación temporal, no puede atribuirse al tipo de tratamiento empleado en la potabilizadora, sino que únicamente fue consecuencia directa de la estacionalidad correspondiente a cada subperiodo. Tanto es así que en la Figura

22 puede observarse cómo las temperaturas más elevadas corresponden a los meses de julio y agosto, mientras que en los meses de inviernos se registraron los valores más bajos.

Tabla 13: Valores medios de temperatura del agua de la RDE en las distintas etapas del estudio evolutivo.

Etapa	Temperatura (°C)
UF	11,1 ± 1,9 ^a
CF + UF	22,5 ± 6,0 ^b
PARADA	19,9 ± 3,9 ^c
O ₃ + UF	14,2 ± 2,9 ^d
Global	19,5 ± 6,1

^{a,b,c,d} Subconjuntos homogéneos por el método SNK con un nivel de significación de 0,05.

El agua de la red de distribución presentó una temperatura media de $19,5 \pm 6,1$ °C en todo el periodo de estudio. Haciendo referencia al RD 865/2003 (Ministerio de Sanidad y Consumo, 2003), donde se recomienda que en instalaciones interiores la temperatura de un agua fría de consumo humano se mantenga por debajo de los 20 °C, cabe pensar que la temperatura del agua de la red experimental presentó un valor medio muy al límite de esta recomendación, incluso se registraron valores de forma continuada muy por encima de ella durante periodos de tiempo prolongados (Figura 22). Puede decirse que en los meses de verano la temperatura del agua en la red experimental presentó valores inusualmente altos en comparación con los que se dan en una red de distribución real. Esto es debido a las condiciones impuestas por la instalación (tamaño de los depósitos de acumulación de agua y red de distribución a la intemperie), que hacen que la estacionalidad tenga una gran influencia sobre este parámetro como puede verse en la Figura 23, donde las temperatura ambiental y del agua son mucho más cercanas entre ellas en los meses correspondientes al verano. Esto no ocurriría en una red de distribución real, donde la influencia de las condiciones meteorológicas se amortigua bastante por estar soterrada y disponer de volúmenes de almacenamiento muy superiores.

En el estudio llevado a cabo por Zhang *et al.* (2012) sobre un sistema de distribución de agua a escala piloto, también quedó patente la influencia de la estacionalidad en la temperatura del agua a pesar incluso de contar con medios para el control de la temperatura (aislamiento y aire acondicionado) en los bucles de tubería que simulaban el sistema. En este caso, el objetivo era no sobrepasar los 23 °C para evitar temperaturas más altas que afectarían a la corrosión de las tuberías, por lo que la instalación no contaba con equipos de calor que amortiguaran el descenso de las temperaturas en los momentos más fríos. Esto produjo que en las horas nocturnas se alcanzaran temperaturas de hasta 11 °C, muy similares a las temperaturas más bajas registradas en el agua de la RDE de nuestro estudio que, recordemos, no disponía de ningún elemento para amortiguar las fluctuaciones de la temperatura ambiental.

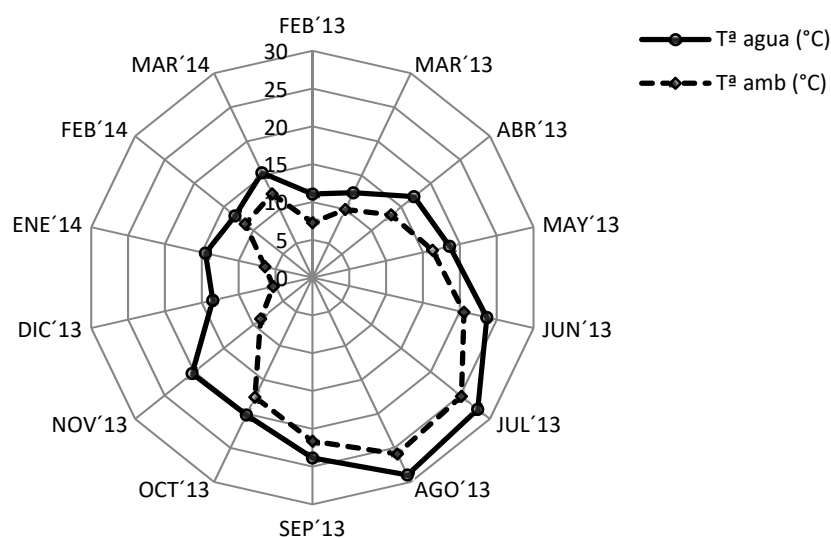


Figura 23. Temperatura media mensual ambiental y del agua de la RDE durante el de estudio evolutivo.

Este hecho de la variabilidad de la temperatura del agua por influencia de la estacionalidad deberá tenerse en cuenta a la hora de hacer el posterior estudio comparativo entre los distintos tratamientos de potabilización, ya que la temperatura es un parámetro fundamental en cualquier proceso en materia de aguas por la influencia que puede tener sobre otros muchos aspectos. Por ejemplo, la temperatura puede afectar a la actividad microbiana y puede favorecer el desarrollo de biopelículas (Calderón *et al.*, 2012) o que su evolución sea más rápida en determinadas épocas. También puede repercutir en la efectividad y degradación del hipoclorito (White, 1999; Vikesland *et al.*, 2001), sobre la corrosión de algunos materiales de tubería (McNeill y Edwards, 2002), la cinética de generación de subproductos de desinfección (Roccaro *et al.*, 2008), etc.

4.1.3.2. pH

El pH del efluente fue medido minuto a minuto durante todo el periodo de estudio. Los valores medios diarios de pH se recogen en la Figura 24, así como los valores medios por etapas que se exponen en la Tabla 14.

Este parámetro se mantuvo bastante constante en todo el estudio evolutivo con un valor medio de $7,73 \pm 0,64$ unidades de pH, con una dispersión global baja, y siempre dentro de los límites marcados por el RD 140/2003 para aguas de consumo humano (6,5-9,5). No obstante, puede remarcarse el hecho de que se apreciara una tendencia descendente del pH del agua a lo largo del segundo subperiodo (CF+UF) desde valores máximos de 8,61 hasta valores mínimos de 6,51 y con una media de $7,54 \pm 0,66$ unidades de pH, la más baja de todo el estudio evolutivo (Tabla 14). Este descenso generalizado con respecto al resto de etapas

se debió al efecto acidificante del coagulante empleado como tratamiento de esta etapa (Siéliéchi *et al.*, 2008; Willhite *et al.*, 2013). A pesar de que el coagulante fue aplicado a una dosis constante, la recirculación del agua en la RDE provocó este descenso de pH paulatino a lo largo del tiempo.

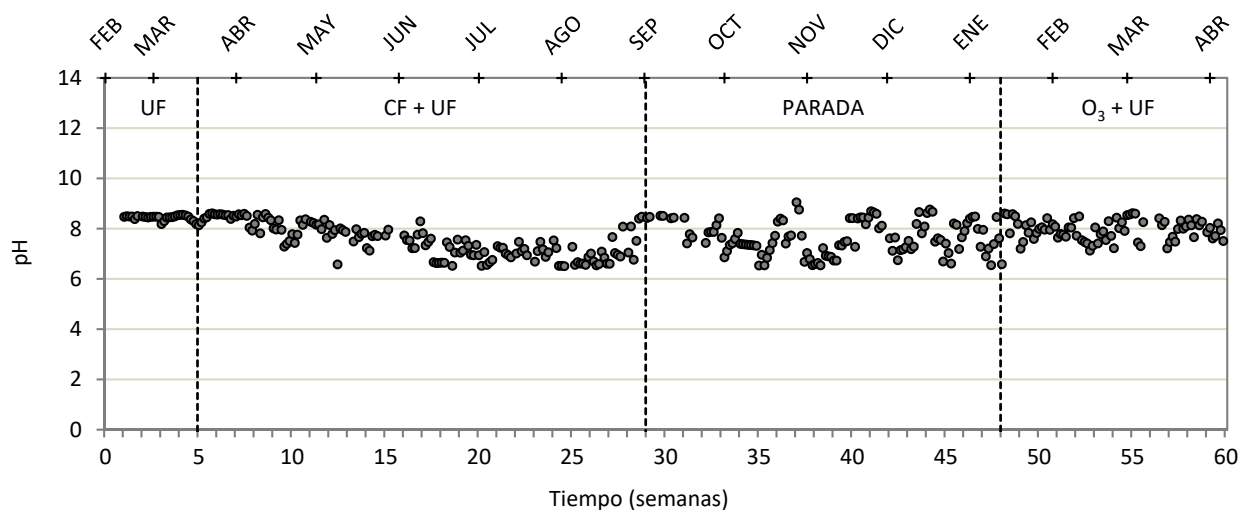


Figura 24. Evolución del pH medio diario del agua de la red de distribución experimental durante la fase de estudio evolutivo.

La siguiente etapa (PARADA) fue un periodo donde se observa una fluctuación frecuente del pH (Figura 24). Durante las primeras semanas es cierto que hay un descenso de pH, puesto que todavía continúa el efecto acidificante de la etapa anterior hasta el momento de la limpieza de choque de la RDE donde alcanza el valor de pH más alto (semana 38). Después, al no estar operativa la parte de tratamiento del agua de la instalación pero sí el sistema de post-cloración, la tendencia general del pH fue ascendente debido a la adición del desinfectante (lejía comercial con pH en torno a 13). Pero éste volvía a descender tras cada renovación del agua que se llevaba a cabo manualmente en la RDE y con cierta periodicidad.

En la última etapa (O₃+UF), el pH del agua estuvo algo más estable que en la etapa de PARADA pero 0,5 unidades por debajo del pH medio de la etapa de UF y con mayores fluctuaciones que ésta. Aunque el pH puede verse algo afectado por la temperatura (Brown *et al.*, 2011), la diferencia de pH entre ambas etapas no puede atribuirse a ella puesto que ambas transcurrieron en meses similares y con rangos de temperatura también similares (Figura 22). Las diferencias significativas de la etapa de O₃+UF con respecto a la UF se correspondieron claramente al efecto del pretratamiento, ya que el ozono produce cambios en la química del agua que pueden afectar no sólo al agua tratada, sino también a la cinética de desintegración del desinfectante dentro la red de distribución (Kim *et al.*, 2014), y con ello al pH. El efecto sobre el pH del agua tratada fue comprobado en una investigación previa, llevada a cabo en la misma instalación experimental, donde se observó que la pre-ozonización producía un agua de pH ligeramente menor que el agua tratada

únicamente por UF (Rojas-Serrano *et al.*, 2016). Además, Kim *et al.* (2014) sugirieron especial precaución en los sistemas de distribución de agua tratada con ozonización porque la gran reactividad del O₃ puede hacer que la concentración de cloro sea insuficiente para impedir el recrecimiento microbiológico. Esto hace pensar que el O₃ residual que existió en la RDE de este estudio (hipótesis contrastada en el apartado 4.1.7) también pudo mermar la efectividad del cloro, interfiriendo en el equilibrio HClO/CLO⁻ y dificultando así la gestión del sistema de post-cloración para mantener un CRL constante, de ahí lo que la dispersión de valores fuera mayor durante la etapa O₃+UF (Figura 24). Este comportamiento coincide con los resultados de Huang *et al.* (2005), que señalaron que la ozonización causó un gran descenso de pH, aunque en su caso el desinfectante usado fue monocloramina en lugar de hipoclorito.

Tabla 14: Valores medios de pH del agua de la red de distribución experimental en las distintas etapas del estudio evolutivo.

Etapa	pH
UF	8,44 ± 0,10 ^a
CF + UF	7,54 ± 0,66 ^b
PARADA	7,66 ± 0,65 ^b
O ₃ + UF	7,94 ± 0,42 ^c
Global	7,73 ± 0,64

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos por el método SNK con un nivel de significación de 0,05.

Los resultados del análisis de varianzas (ANOVA) de los datos de pH del agua de la red experimental revelaron que existen diferencias estadísticamente significativas entre todas las etapas ente sí, excepto entre las etapas CF+UF y PARADA que forman un subgrupo homogéneo (Tabla 14), lo que viene a confirmar que el efecto acidificante del coagulante se pudo haber mantenido de una etapa a otra.

Por otro lado, puede decirse que las variaciones del pH del agua fueron motivadas casi únicamente por el tipo de tratamiento empleado en el sentido anteriormente explicado, lo que está en consonancia con los valores de la matriz de coeficientes de Pearson que no muestra ninguna relación destacable con ninguna otra variable o parámetro del sistema (Tabla 12).

Es importante controlar el pH de un agua, de ahí que en esta investigación fuera una variable de control continuo, ya que puede tener consecuencias sobre otros parámetros. Tanto es así que a veces el pH es usado o manipulado como estrategia de control en algunos campos. Un parámetro que puede verse afectado por el pH es la especiación de los DBPs (Roccaro *et al.*, 2014). Según Von Gunten (2003), una de las mejores estrategias para minimizar la formación de bromatos (un DBP catalogado como carcinógeno de categoría 2B) en tratamientos con ozonización es la disminución del pH, lo que demuestra la repercusión que esta variable puede tener en la formación de algunos DBPs. También ha sido ampliamente estudiado por la comunidad

científica el papel que juega el pH sobre la corrosión de los sistemas de distribución de agua según el material que lo conforme (Ng y Lin, 2016; McAliley *et al.*, 2012; Yannoni y Covellone, 1998; Sander *et al.*, 1996). Las características microbiológicas del agua, como la calidad microbiana de ésta o la presencia, heterogeneidad y abundancia de biopelícula en la red, también pueden verse afectadas por las condiciones de pH en tanto en cuanto éste afecta a las condiciones óptimas y de supervivencia de los microorganismos (Merino Guzmán *et al.*, 2011; Mendoza *et al.*, 2008) y al impacto de las diferentes formas de cloro (HClO/ClO^-) sobre la mortalidad bacteriana (Piriou *et al.*, 1996).

4.1.3.3. Cloro residual libre

Al igual que en el caso del pH, el CRL fue medido en la red de distribución minuto a minuto durante todo el periodo. Los valores medios diarios de CRL se muestran en la Figura 25 y los valores medios por etapas en la Tabla 15.

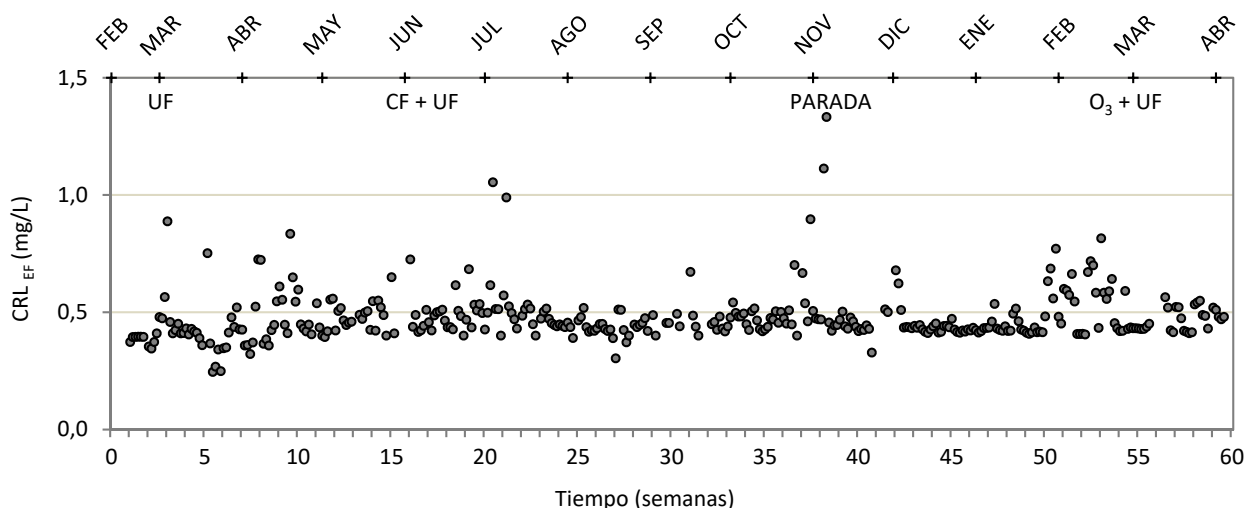


Figura 25. Evolución del CRL medio diario del agua de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

El nivel de CRL registrado siempre se mantuvo constante sobre los 0,40 mg/L fijados como punto de consigna y con una dispersión de valores muy baja, con una media global de $0,48 \pm 0,11$ mg/L, lo que indica que el sistema de post-cloración tuvo un funcionamiento correcto a lo largo del estudio.

Debido a que la regulación del nivel de CRL en el sistema de post-cloración se llevaba a cabo mediante un lazo de control por retroalimentación, era de esperar que el CRL obtenido superara el punto de consigna (0,4 mg/L) ya que en cuanto el controlador detectase el mínimo descenso en la variable medible, el sistema actuaría inyectando NaClO para corregir el error y por tanto subiría el CRL, parando al superar el valor de consigna.

A pesar de que el ozono es un desinfectante altamente eficiente, el cloro sigue siendo necesario a la hora de garantizar un efecto desinfectante residual en la red de distribución y, por tanto, el sistema de post-cloración estuvo operativo durante todo el estudio evolutivo incluyendo el periodo de la etapa de PARADA y la de pre-ozonización, independientemente de si en esta última existiera o no ozono residual en el agua distribuida.

El CRL está calificado como un parámetro indicador dentro del RD 140/2003, el cual establece un valor máximo para dicho parámetro de 1 mg/L en una red de distribución de un agua apta para consumo humano. Este límite rara vez fue sobrepasado como puede verse en la Figura 25 y tan sólo ocurrió de manera muy puntual debido a las fluctuaciones propias de la operación de la planta. Uno de estos casos que conviene resaltar es el pico alcanzado en la semana 38 (media diaria de 1,33 mg/L), que fue motivado por una supercloración intencionada en el sistema de post-cloración con objeto de limpiar las conducciones de la red de distribución por necesidades del estudio (véase apartado 4.1.7).

Los valores mostrados en la Tabla 15 confirman la constancia del CRL obtenido en la red experimental ya que únicamente se detectaron diferencias estadísticamente significativas entre las etapas UF y O₃+UF, hecho que pudo estar influenciado por dos aspectos. Por un lado, la presencia de O₃ residual en el agua de la RDE en la etapa de pre-ozonización, que al ser un oxidante más fuerte que el cloro y entrar ambos en competencia, provocaría un aumento del nivel de cloro residual libre por no consumirse una parte del NaClO inyectado y por dificultar su control por el sistema de medida-actuación que conllevaba un retardo. Por otro lado, también pudo contribuir el hecho de que la etapa de O₃+UF presentó los valores más altos de COD de todo el estudio evolutivo (ver apartado 4.1.4.2.1), obligando al sistema de gestión de cloro a inyectar hipoclorito con más frecuencia para que reaccionara con esa mayor cantidad de materia orgánica (Brown *et al.*, 2011), y provocando ese aumento del CRL medio hasta los 0,50 mg/L.

En la etapa de CF+UF la concentración de CRL presentó un valor medio de 0,47 mg/L frente a los 0,43 mg/L de la etapa de UF. Aunque es una diferencia poco significativa, en gran medida por el tipo de regulación del lazo de control, el pH pudo ser la causa de esta pequeña subida de la media de CRL, ya que un descenso del pH durante la coagulación-floculación pudo desplazar la reacción de equilibrio del CRL más hacia la formación de HClO que de ClO⁻ (Brown *et al.*, 2011), que al ser el primero un producto más oxidante dificulta algo más la regulación del cloro por parte del sistema de gestión.

Tabla 15: Valores medios de CRL del agua de la RDE en las distintas etapas del estudio evolutivo.

Etapas	CRL (mg/L)
UF	0,43 ± 0,10 ^a
CF + UF	0,47 ± 0,11 ^{a,b}
PARADA	0,48 ± 0,12 ^{a,b}
O ₃ + UF	0,50 ± 0,10 ^b
Global	0,48 ± 0,11

^{a,b} Subconjuntos homogéneos según HSD Tukey con un nivel de significación de 0,05.

Tanto el análisis de redundancias (Figura 21) como la matriz de coeficientes de correlación de Pearson (Tabla 12) desvelan que la variable CRL no guardó ninguna correlación significativa con el resto de parámetros del sistema. Esto era esperable, ya que, por el diseño de la experimentación, el CRL fue una variable manipulada para que mantuviera un valor constante durante todo el estudio y por tanto carecería de dominio sobre el comportamiento del sistema.

4.1.4. Análisis para el control del proceso

4.1.4.1. Turbidez

La turbidez del agua en una red de distribución no debe superar, tal y como recoge el RD 140/2003, las 5 UNT para que sea considerada apta para el consumo humano. Esta exigencia siempre se cumplió durante todo el periodo de estudio como reflejan los valores de turbidez del EF en la Figura 26. Sin embargo, el límite legal para el agua de salida de una ETAP es de 1 UNT, cifra que fue sobrepasada prácticamente siempre en el agua tras el tratamiento (INF). Tan sólo en una ocasión el efluente sobrepasó el límite alcanzando una turbidez de 5,6 UNT en la semana 37 como consecuencia de una fuga de fango retenida en el tanque de membrana proveniente de la etapa de coagulación-floculación anterior que provocó una coloración marrón en el efluente apreciable a simple vista. Es por ello y por el desarrollo de biopelícula que impedía en este momento el recuento de bacterias adheridas (ver apartado 4.1.7) por lo que se decidió realizar una limpieza química del sistema de distribución mediante una supercloración (NaClO, 1000 mg/L) en la semana 38.

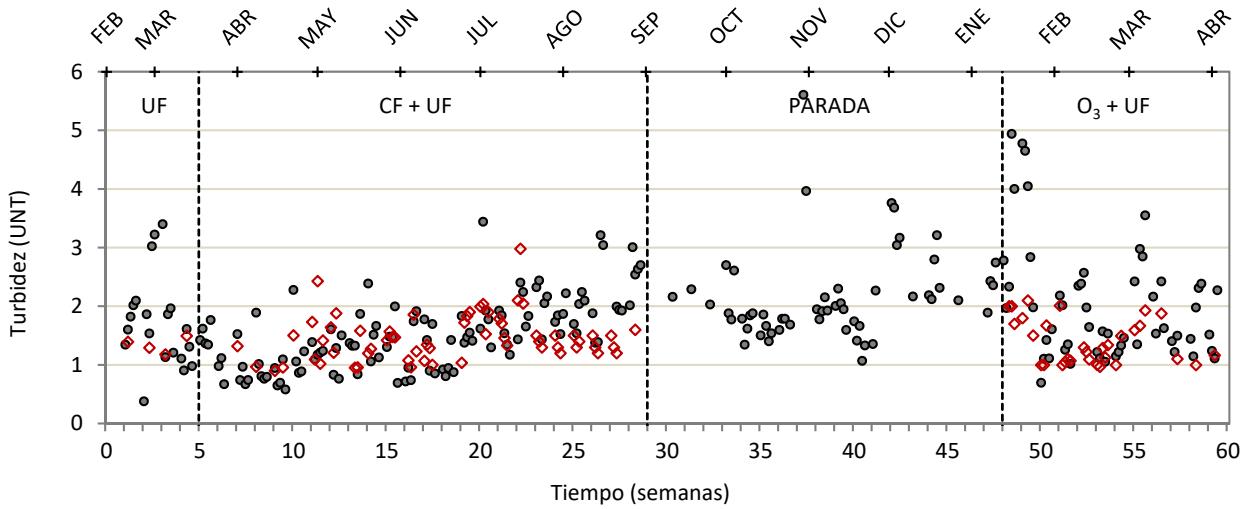


Figura 26. Evolución de la turbidez del influente (◊) y efluente (●) de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

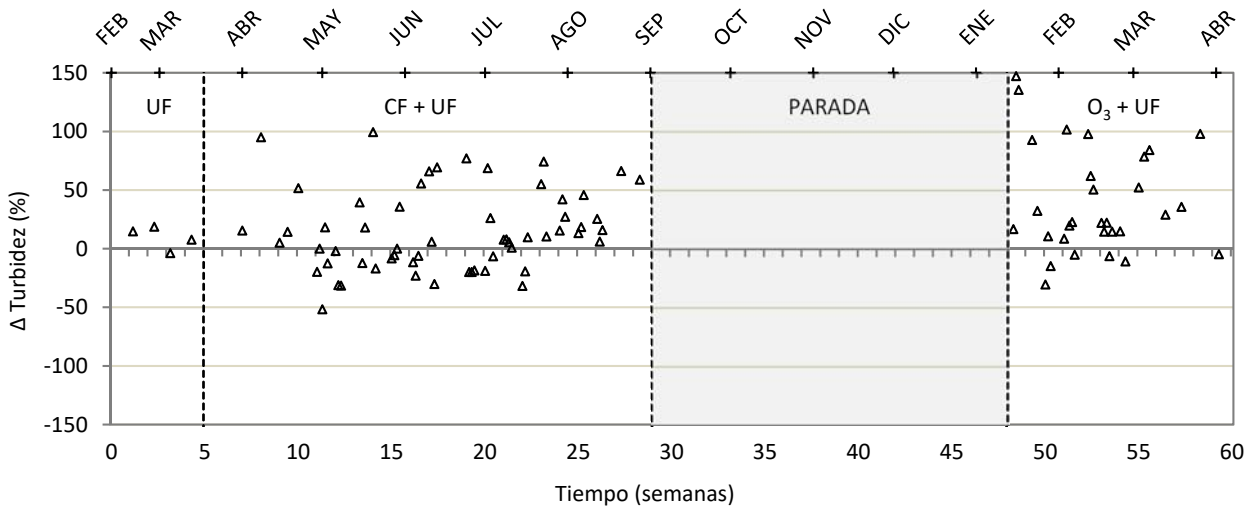


Figura 27. Evolución del incremento de turbidez del efluente con respecto al influente de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

La Figura 27 pone de manifiesto que no en todos los análisis diarios hubo un incremento positivo de la turbidez en la red, pero sí que fueron la mayoría de ellos ya que un 69,57 % de los incrementos fueron positivos frente un 30,43 % que fueron negativos (Tabla 16). De hecho, todas las etapas presentaron una mayor proporción de incrementos que de decrementos aunque con diferencias estadísticamente significativas entre ellas (Tabla 16), lo que hace deducir en principio que la propensión general del agua al entrar en la red es la de aumentar su turbidez.

Tabla 16: Valores medios de turbidez del influente y efluente de la RDE, porcentaje de incremento de turbidez de EF respecto al INF y % de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las distintas etapas del estudio evolutivo.

Etapa	Turbidez (UNT)		Porcentaje de incremento de turbidez (EF vs INF)		
	INF	EF	$\bar{X} \pm SD$ (%)	Δ (%)	∇ (%)
UF	1,34 \pm 0,14 ^a	1,72 \pm 0,78 ^{a,b}	9,37 \pm 9,87 ^a	75,00	25,00
CF + UF	1,46 \pm 0,39 ^a	1,52 \pm 0,60 ^a	14,74 \pm 34,64 ^a	63,16	36,84
PARADA	-	2,16 \pm 0,78 ^c	-	-	-
O ₃ + UF	1,39 \pm 0,38 ^a	2,02 \pm 1,00 ^{b,c}	43,70 \pm 50,32 ^b	80,65	19,35
Global	1,43 \pm 0,38	1,79 \pm 0,80	24,06 \pm 41,97	69,57	30,43

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos de cada parámetro por el método SNK con un nivel de significación de 0,05.

Si se analizan los valores mostrados en la Tabla 16, la turbidez media del influente en cada una de las etapas o subperiodos ensayados fue siempre inferior a la del efluente, presentando una media global durante todo el estudio evolutivo de 1,43 \pm 0,38 UNT frente a 1,79 \pm 0,80 UNT respectivamente, lo que supone un ensuciamiento medio del 24 %. Esto viene a corroborar que el agua tratada sufría un ensuciamiento en su transcurso por la red de forma generalizada, independientemente del tipo de tratamiento aplicado en la potabilización.

Fabris *et al.* (2015) realizaron un experimento a escala piloto con 4 redes de distribución simuladas y en paralelo, cada una de las cuales recibían agua de un tratamiento de potabilización diferente, midiendo distintos parámetros tanto a la entrada como a la salida de la red de distribución. Entre estos parámetros analizaron los sólidos en suspensión (SS), los cuales tienen una relación directamente proporcional y lineal con la turbidez. En su estudio se observa cómo el tratamiento convencional fue el único en el que la cantidad de SS disminuyó en el transcurso del agua por la red. Sin embargo, el tratamiento con membranas (micro y nanofiltración) fue el que sufrió un incremento más acusado de SS. Esto justificaría el aumento de turbidez producido de forma general en la RDE de nuestra investigación por el hecho de ser un agua potabilizada mediante membranas de filtración.

En este estudio evolutivo, el ensuciamiento fue mucho más significativo en la etapa de ozonización, donde el porcentaje de incremento de turbidez fue del 43,70 %, seguido por un 14,74% correspondiente a la etapa de coagulación-floculación y un 9,37% de la etapa de ultrafiltración como tratamiento único.

Haciendo uso de los análisis de correlación y redundancias (Tabla 12 y Figura 21) para conocer los motivos del enturbiamiento que sufrió el agua en su trascurso por la RDE, puede decirse que la turbidez del efluente dependió principalmente del desarrollo de la biopelícula y de la turbidez del influente ($r = 0,597$ y $r = 0,492$), y que la temperatura del agua también estuvo fuertemente correlacionada con el comportamiento

de $Turb_{EF}$ ($\alpha = 13^\circ$). Blokker y Schaap (2015) sugieren que la diferencia en la tasa de ensuciamiento entre RDAPs de diseños similares (longitud y diámetro de tubería, velocidad de flujo, etc.) está determinada en gran parte por la diferencia de calidad del agua entrante en la red, muy definida por la turbidez, lo que apoya el resultado del análisis estadístico con respecto al peso de la variable $Turb_{INF}$ sobre la $Turb_{EF}$.

Analizando cada etapa por separado, los resultados muestran que la etapa donde se produjo menos enturbiamiento del agua durante su distribución fue la de UF. Esto pudo estar motivado por las correlaciones señaladas anteriormente, ya que esta etapa fue la que presentó el valor más bajo de $Turb_{INF}$ y donde no hubo un desarrollo de biopelícula evidente. Liu *et al.* (2013^a) apuntaron que la UF limita fuertemente el crecimiento de depósitos sueltos en la RDAP, lo que se podría traducir como una reducción de la turbidez, apoyando así los resultados.

En el caso de la etapa de CF+UF, el incremento de turbidez en la RDE fue mayor que en la UF directa. Aunque podría esperarse que con la CF la turbidez del agua tratada (INF) fuera menor que en el caso de la UF directa (Rojas-Serrano *et al.*, 2015c), no hubo diferencias estadísticamente significativas, de lo que se deduce que ese mayor enturbiamiento en la RDE no fue debido a la $Turb_{INF}$. La justificación se encuentra principalmente en el desarrollo de la biopelícula que en esta etapa de CF+UF fue muy significativo y provocó ese enturbiamiento del agua de la RDE más acusado. También pudo contribuir la presencia de Fe residual procedente del coagulante en la red de distribución, hecho que se detectó en investigaciones anteriores (Rojas-Serrano *et al.*, 2015c), el cual podría depositarse en las paredes de la RDE y repercutir negativamente en la calidad del agua final como así constataron Zhang *et al.* (2016) en aguas tratadas con coagulantes de aluminio. Además, hay que señalar que la $Turb_{EF}$ mostró un comportamiento evolutivo paralelo al aumento de las temperaturas del agua en esta etapa, siendo ésta otra variable que repercutió en el sistema como corrobora el RDA (Figura 21).

Sin duda el mayor ensuciamiento se dio en la etapa O_3 +UF, a pesar de que ninguna de las variables que podían favorecerlo lo hicieron: ni fue la etapa con más turbidez en el influente, ni la que presentó un desarrollo de biopelícula visible o evidente, ni fue el periodo con las temperaturas más altas. Por tanto la explicación puede encontrarse en el efecto del ozono que quedaba de manera residual en la RDE, que pudo desprender los numerosos depósitos adheridos a las paredes de la tubería (véase Figura 41), provocando así un mayor incremento de turbidez en el agua. Un caso que sustenta esta teoría es el estudio de Videla *et al.* (1995), donde probaron que el O_3 no sólo tenía un carácter biocida sobre las bacterias sino que además facilitaba el desprendimiento de la biopelícula formada. Algunas investigaciones han demostrado que el ozono puede producir cierta corrosión en algunos materiales de tuberías como aquellas de mortero de

cemento o de hierro fundido (Montgomery, 2010; Wei *et al.*, 2004), por lo que cabe la posibilidad de que la corrosión por efecto del O₃ fuera otro factor que afectara al incremento de turbidez en la RDE plástica. Sin embargo, (Holden *et al.*, 1995) concluyeron que el cambio de un tratamiento con pre-cloración a otro con ozonización tendría poco efecto sobre la corrosión en los sistemas de distribución de agua ensayados tanto en materiales de hierro fundido como en polietilenos de densidad media.

Con respecto a la evolución en el tiempo, en la etapa de CF+UF se observa una clara tendencia al alza en la turbidez del efluente (Figura 26), pasando de valores en torno a 1 UNT en las primeras semanas de esa etapa a valores de 2 UNT o más en las últimas semanas, donde también se observa que los incrementos son casi todos positivos (Figura 27). Este comportamiento no puede achacarse a una pérdida de calidad en el influente de la RDE ya que la instalación experimental produjo un agua tratada de calidad constante (Rojas-Serrano *et al.*, 2015a), hecho que además queda patente al no existir diferencias estadísticamente significativas en la turbidez del influente entre las distintas etapas (Tabla 16). Por tanto la explicación se halla en el desarrollo de biopelícula que hubo durante esta etapa y que se detalla en el apartado 4.1.7, que al desprenderse e ir colonizando nuevos puntos de la RDE ocasiona un ensuciamiento del agua, coincidiendo además con el aumento progresivo de la temperatura, variable fuertemente correlacionada con la TurbEF como mostró el RDA (Figura 21).

A lo largo del estudio evolutivo, esta tendencia ascendente en la turbidez del efluente no fue tan clara en las etapas posteriores a la CF+UF que presentaron valores más dispersos (Figura 26). Pero a pesar de que la planta no estuvo operativa entre las semanas 29 y 48, los datos reflejan que la turbidez en el agua de la red subió de media en 0,64 UNT (Tabla 16), aumento que estuvo motivado por el desprendimiento de depósitos acumulados en la etapa anterior y la limpieza de choque que hubo que realizar. Posteriormente, la etapa de ozonización produjo un efluente de turbidez parecida a la etapa de PARADA, sin diferencias estadísticamente significativas entre ambos subperiodos, pero no puede decirse que en los últimos meses del estudio la turbidez del efluente siguiera ninguna tendencia evolutiva clara (Figura 26).

Bai *et al.* (2006) llevaron a cabo un estudio sobre un suministro de agua potable real en la ciudad de Shanghái (China), donde analizaron la calidad del agua tanto a la salida de la ETAP, que contaba con un sistema de tratamiento convencional, como al final de la red de distribución (a 17 y 25 km de distancia). El incremento de turbidez medio a lo largo de la red de distribución fue del 27,3 %, una cifra ligeramente superior al 24 % de media alcanzado en la RDE de esta fase pero que difiere mucho de los incrementos que se obtuvieron de forma independiente para la UF directa (9,4 %) y el tratamiento con pre-ozonización (43,7 %). Esto lleva a pensar que el tipo de tratamiento pudo tener cierta influencia sobre la turbidez del agua tras

su distribución, hecho contrastado por el RDA que apunta una correlación débil ($\alpha = 140^\circ$, Figura 21) entre ellos. No obstante, esta relación se podrá analizar mejor en el estudio comparativo de este trabajo.

4.1.4.2. *Materia orgánica natural*

Todas las aguas superficiales contienen materia orgánica natural (MON), que es una mezcla compleja y heterogénea de compuestos orgánicos procedentes de la degradación química y biológica de los residuos vegetales y animales (Metsämuuronen *et al.*, 2013). La presencia de estos compuestos en el agua tratada mediante membranas de ultrafiltración es frecuente debido a la baja eficacia de las membranas en retener la fracción disuelta (Rojas *et al.*, 2008). Esta es la razón por la que es importante controlar la presencia de materia orgánica en las redes de distribución, puesto que su reacción con el cloro que debe garantizar la desinfección residual del agua incrementa el riesgo de generación de subproductos de la cloración.

Como se detalló en el capítulo 3.3.3, los parámetros seleccionados para su control fueron el carbono orgánico total y disuelto (COT y COD), así como la absorbancia a 254 nm, los cuales permiten calcular el índice SUVA. Este índice es empleado como herramienta de caracterización de MON (J. Weishaar *et al.*, 2003) y como instrumento de predicción en cuestión de generación de subproductos de desinfección (Hua *et al.*, 2015).

4.1.4.2.1. *Carbono orgánico total y disuelto*

De todas las muestras analizadas diariamente durante esta fase de estudio, más del 68 % presentaron la misma concentración de carbono orgánico total que disuelto y el resto de ellas presentaron una mínima diferencia entre ellos (0,21 mg/L de media), sin que existieran diferencias estadísticamente significativas entre ambos parámetros ni en el caso del influente ni en el del efluente (Tabla 17). Esto quiere decir que prácticamente la totalidad del carbono orgánico presente en el agua era disuelto y por este motivo, en este epígrafe será detallado todo lo referente al carbono orgánico disuelto ya que es el parámetro más usado junto con la UV_{254} para cuantificar y caracterizar la MON en aguas (Metsämuuronen *et al.*, 2013), y el COT no aportaría ninguna información añadida en este caso. También por ello en este epígrafe se mostrarán solamente las gráficas correspondientes al COD ya que las diferencias entre las gráficas de COD y COT son prácticamente inexistentes.

La concentración de carbono orgánico disuelto en el agua de entrada y salida de la RDE se ha representado gráficamente en la Figura 28, donde es claro observar que nuevamente, al igual que sucedió en otros parámetros estudiados, el efluente presentó una peor calidad que el influente con carácter general

en todo el estudio evolutivo. Concretamente el agua sufrió un ensuciamiento en la red de casi el 34 % en lo que a COD se refiere, pasando de un valor medio de entrada de $4,60 \pm 1,74$ mg/L a uno de salida de $5,64 \pm 3,03$ mg/L (Tabla 18).

Tabla 17: Valores medios de CO total y disuelto del influente y efluente de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

	INF	EF
COT (mg/L)	$4,81 \pm 2,34$ ^a	$5,89 \pm 3,22$ ^a
COD (mg/L)	$4,60 \pm 1,74$ ^a	$5,64 \pm 3,03$ ^a

^a Subconjuntos homogéneos de cada parámetro por el método SNK con un nivel de significación de 0,05.

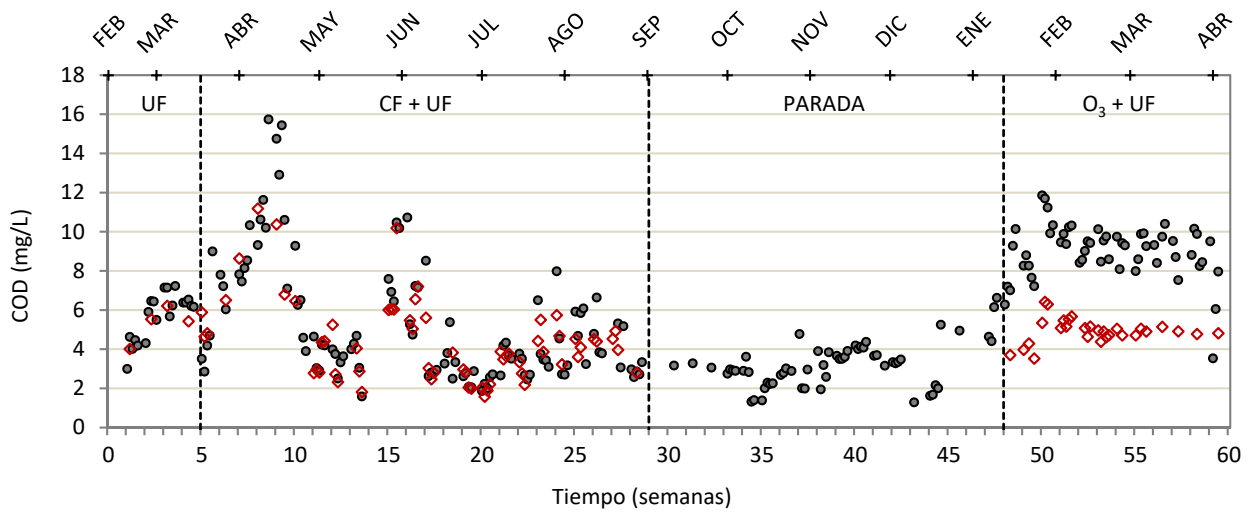


Figura 28. Evolución del carbono orgánico disuelto del influente (◊) y efluente (●) de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

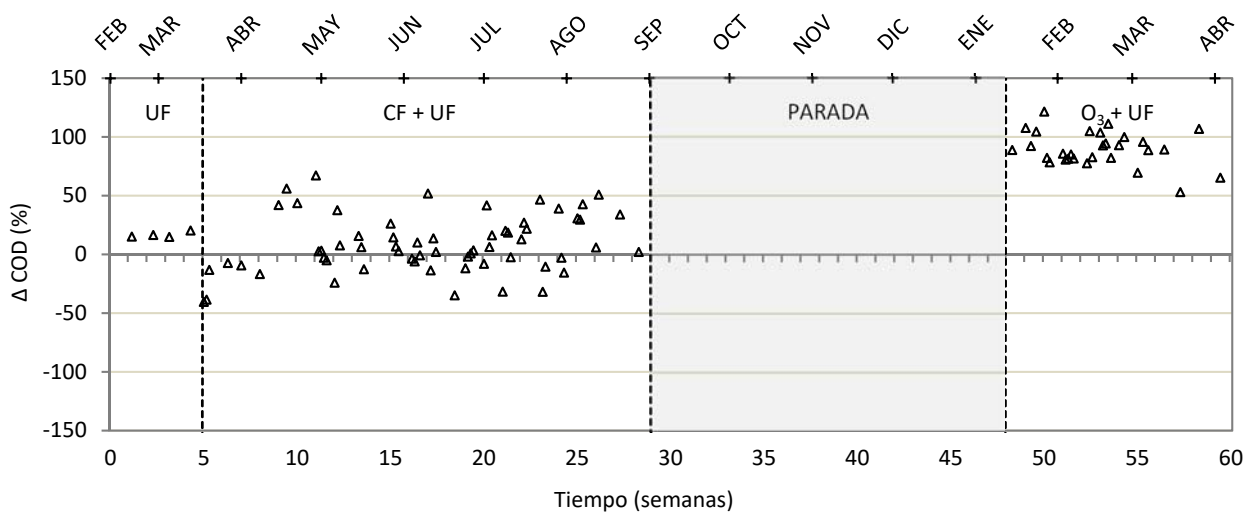


Figura 29. Evolución del incremento de carbono orgánico disuelto del efluente con respecto al influente de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

Respecto a la evolución temporal no se aprecia una tendencia muy clara en el contenido de COD pero según la información de la Figura 29 sí que puede afirmarse que el agua sufrió un empeoramiento de la calidad conforme pasó el tiempo ya que en las dos etapas iniciales este parámetro aumentaba en la red a razón de un 12,6 % de media mientras que en la última etapa lo hizo a una razón media del 90 % (Tabla 18). El análisis de Pearson muestra una correlación positiva alta entre el COD de entrada y de salida a la red (71%, Tabla 12), pero esto se cumple con carácter global en esta fase y no en el caso particular de cada subetapa, ya que como se observa en la Tabla 18 a menor COD_{INF} no siempre se obtuvo menor COD_{EF} por etapa. Sin embargo, ese ensuciamiento progresivo en la RDE sí podría explicarse de manera coherente por el propio paso del tiempo y por la influencia del tipo de tratamiento de potabilización como apoya el análisis de redundancias (Figura 21), obteniendo un agua de peor calidad cuanto más tiempo de experimento había transcurrido y sobre todo con el tratamiento de pre-ozonización (Figura 29).

Haciendo distinción entre estas etapas, la UF y CF+UF fueron similares como ratifica el estudio estadístico de varianzas que indica que ambas etapas forman un subgrupo homogéneo en cuanto al contenido en COD del agua tanto en el influente como en el efluente. Centrándonos en los valores de influente de la Tabla 18, se pone de manifiesto que la asociación de CF+UF fue más efectiva en eliminación de COD que la asociación de O₃+UF con respecto a la UF sin pretratamiento, como también obtuvieron Rojas-Serrano *et al.* (2016) en su comparación de estos mismos tratamientos. Por otro lado, los incrementos de este parámetro producidos en la red de distribución no fueron muy elevados y tampoco presentaron diferencias estadísticamente significativas entre ambas etapas (Tabla 18).

Tabla 18: Valores medios de carbono orgánico disuelto del influente y efluente de la RDE, porcentaje de incremento de COD de EF respecto al INF y % de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las distintas etapas del estudio evolutivo.

Etapa	COD (mg/L)		Porcentaje de incremento de COD (EF vs INF)		
	INF	EF	$\bar{X} \pm SD$ (%)	Δ (%)	∇ (%)
UF	5,30 \pm 0,92 ^a	5,70 \pm 1,20 ^a	16,79 \pm 2,54 ^a	100,00	0,00
CF + UF	4,41 \pm 2,07 ^a	5,24 \pm 3,07 ^a	8,50 \pm 24,66 ^a	60,66	39,34
PARADA	-	3,20 \pm 1,13 ^b	-	-	-
O ₃ + UF	4,93 \pm 0,63 ^a	8,99 \pm 1,40 ^c	89,76 \pm 14,61 ^b	100,00	0,00
Global	4,60 \pm 1,74	5,64 \pm 3,03	33,92 \pm 43,19	74,47	25,53

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos de cada parámetro por el método SNK con un nivel de significación de 0,05.

Si el agua bruta presentó una media de 6,54 mgCOD/L (Tabla 7) y el agua tratada con CF+UF de 4,41 mgCOD/L (Tabla 18), significa que el tratamiento CF+UF consiguió una eliminación de COD del 32,57 %. Según Edzwald y Tobiason (1999), el rendimiento de la coagulación para un agua con SUVA < 2 L/mg-m suele ser inferior al 25 % para coagulantes de aluminio y algo mayor en el caso del hierro. Así q teniendo en cuenta

que en nuestro caso la CF estuvo asociada a una membrana de UF (lo que produciría una mejora del rendimiento), el coagulante empleado era de hierro, y que el agua de entrada a planta presentó un SUVA considerado bajo de 2,17 L/mg-m (Tabla 7), los resultados obtenidos son congruentes.

Dejando a un lado la etapa de PARADA, hay que destacar que el valor más bajo de COD tanto a la entrada y salida de la RDE como en el porcentaje de ensuciamiento ocurrido en ella se alcanzó en la etapa de CF+UF, soslayando ciertos repuntes motivados por la puesta a punto del tratamiento y algunos problemas técnicos de parada y arranque de la planta en las semanas 15-17 (Figura 28) que provocaron una mayor dispersión de los valores. La red de distribución pasó de presentar un ensuciamiento del 17,0 % en COD cuando la potabilización se había llevado a cabo únicamente mediante ultrafiltración a un ensuciamiento más bajo del 8,5 % cuando se combinó con el pretratamiento de coagulación-floculación (Tabla 18). Este hecho se debe a que la combinación de estos dos tratamientos (CF+UF) mejora considerablemente la eficiencia en la eliminación de materia orgánica disuelta (Rojas *et al.*, 2011), resultado que se traslada a su vez la red de distribución.

En la etapa de PARADA se produjo un descenso significativo ($p < 0,05$) en la concentración de COD en el agua de la red con respecto al resto de etapas, alcanzando los valores más bajos de todo el estudio evolutivo ($3,20 \pm 1,13$ mg/L). El hecho de que en esta etapa no hubiera un aporte de nueva materia orgánica en la red no evitó un aumento progresivo de este parámetro con el tiempo como puede apreciarse en la Figura 28 donde se ve cierta evolución al alza. Esto es indicativo de que el COD fue acumulándose dentro de la propia red con el paso del tiempo. La limpieza química (supercloración) realizada en la semana 38 eliminó las bacterias en el agua (véase el análisis microbiológico del apartado 4.1.6) pero no evitó ni minimizó este aumento de COD en el efluente. Por tanto, este aumento evolutivo del COD en la etapa PARADA pudo estar motivado por la proliferación de comunidades bacterianas en las paredes de la red de distribución, hecho que ocurrió en este estudio como se verá en el apartado 4.1.7. Esta hipótesis es validada por la de Chien *et al.* (2009) que señalan a la biopelícula como una causa del aumento del carbono orgánico total y asimilable en las aguas de las redes de distribución. Otro factor que pudo haber influido en el aumento de la concentración de carbono en el agua pudo ser la migración de compuestos del material plástico de la tubería hacia el agua, ya que Zhang y Liu (2014) demostraron la liberación de COT en tuberías plásticas, aumentando significativamente con el tiempo y de forma más acusada en el caso del polietileno (material de nuestra RDE).

El tratamiento de ozonización fue sin duda el que más diferencias marcó con respecto al COD, desmarcándose incluso de la homogeneidad presentada por el resto de etapas en el análisis de varianzas (Tabla 18). En la Figura 28 puede verse una clara diferencia entre los valores de las corrientes influente y

efluente que no sucedió en las demás etapas. Mientras que el agua de entrada presentó un valor medio de COD de $4,93 \pm 0,63$ mg/L, a la salida de la red experimental fue de $8,99 \pm 1,40$ mg/L, valor muy superior a la media global y que representa casi un 90 % de ensuciamiento del agua en la red (Tabla 18). Este comportamiento también se hace muy evidente en la Figura 29, donde el 100% de los incrementos representados son positivos y con valores absolutos significativamente más altos que en el resto de etapas, corroborando que en la etapa de pre-ozonización se produjo un empeoramiento considerable en la calidad del agua circulante por la RDE con respecto al COD.

El influente fue estadísticamente homogéneo ($p < 0,05$) durante todo el periodo, lo cual descarta su posible influencia sobre el ensuciamiento del efluente. Por ende, la explicación a este comportamiento debe encontrarse en otros factores como pueden ser el tiempo, el tipo de tratamiento de potabilización empleado o incluso la corrosión de la propia tubería. Es evidente que el paso del tiempo favoreció un ensuciamiento progresivo de la RDE debido a la acumulación de depósitos y proliferación de comunidades bacterianas (o biopelícula) en las paredes de la tubería como se mostrará en el apartado 4.1.7, aunque estos efectos fueran más notorios en unas etapas que en otras, lo que a su vez pone de manifiesto que el tipo de tratamiento o la temperatura influyeron en el contenido de COD del efluente aunque de manera débil según los resultados del RDA (Figura 21). Esto planteó nuevamente la necesidad de un estudio comparativo para analizar la influencia y correlaciones de algunas variables y parámetros en cada tratamiento por separado.

A pesar de la limpieza química llevada a cabo a mediados de la etapa de PARADA, la acumulación de nuevos depósitos de materia orgánica en la tubería fue rápida (véase Figura 41) y una vez en la etapa de O_3 +UF, el contenido en COD aumentó en el efluente de forma significativa, seguramente por el ozono residual presente en la red que provocó que parte de esa materia orgánica depositada se desprendiera en esta última etapa (Videla *et al.*, 1995). Además, según Escobar y Randall (2001a; 2001b), el ozono causa aumentos importantes en la concentración de carbono orgánico asimilable y biodegradable en el agua, lo que también argumentaría los resultados obtenidos en dicha etapa.

Un alto porcentaje (40-76 %) de las partículas suspendidas en el agua son materia orgánica y estas partículas pueden depositarse fácilmente en los sistemas de distribución (Gauthier *et al.*, 2001). Entonces se puede presuponer ciertamente que las acumulaciones depositadas en las RDAP tengan un alto contenido en materia orgánica, lo que se traduce en un alto contenido en COD. Por otro lado, los depósitos pueden desprenderse fácilmente de las paredes de la red por diversos motivos (flujo turbulento, arrastre de biopelícula, corrosión de la tubería...), pasando estos al agua circulante por la red y revirtiendo así en un

aumento del contenido en COD de esta agua. Es por ello que puede entenderse la acumulación y el aumento progresivo del COD en la RDE durante el estudio evolutivo, incluso en la etapa de PARADA.

Liu *et al.* (2013a) evidenciaron una fuerte correlación entre la carga de partículas del agua y la acumulación de partículas en un sistema de distribución piloto. Considerando que la carga de partículas de un agua se puede asociar de forma directa y proporcional a la turbidez de la misma, podría afirmarse que un agua más turbia produciría más acumulación de partículas en la superficie de la red, favoreciendo el desarrollo de biopelículas y revirtiendo a su vez en un aumento del contenido en materia orgánica del agua al desprender de la tubería parte de estas acumulaciones. Es por ello que si se observan los valores medios obtenidos de turbidez y COD en el efluente (Tabla 16 y Tabla 18), existe una similitud de comportamiento entre etapas de tal forma que la etapa con más turbidez también presentó mayor concentración en COD y viceversa. Este paralelismo también viene respaldado por el análisis de redundancias (Figura 21), donde se puede apreciar que los vectores de estos dos parámetros ($Turb_{EF}$ y COD_{EF}) se hallan muy próximas dentro del mismo cuadrante apuntando hacia una misma dirección y siendo por tanto explicadas de manera similar por las variables del sistema.

Como apuntan Neilands *et al.* (2012) en un estudio llevado a cabo en una RDAP real que contaba con una longitud total de 20 Km y fabricada en 3 materiales distintos de tubería, los accesorios de tubería son áreas de captación para la acumulación de partículas. Teniendo en cuenta que nuestra red simulada estaba formada por una tubería lineal, es decir, no contaba con los accesorios habituales que se encuentran en una red de distribución real como son codos, piezas en T, uniones, etc., se puede esperar que la cantidad de depósitos en una RDAP real de un agua que sea tratada con membranas de UF sea mayor que la obtenida en nuestra RDE, y consecuentemente también se puede esperar una mayor concentración de COD que el obtenido en nuestro caso ($5,64 \pm 3,03$ mg/L, Tabla 18).

Sin embargo, en una amplia investigación llevada a cabo recientemente en 93 plantas de potabilización de Escocia, el valor medio global de COD fue de $1,7 \pm 1,5$ mg/L dentro de las redes de distribución y $1,8 \pm 1,6$ mg/L en el agua potable final. En el caso concreto de las plantas cuyo tratamiento contaba con membranas de UF arrolladas en espiral, este parámetro mejoró hasta los $1,5 \pm 0,6$ mgCOD/L en el agua potable (Valdivia-García *et al.*, 2016). Considerando que este caso es representativo por su tamaño de muestra y comparable con nuestra investigación por la semejanza en el tipo de tratamiento (337 muestras en plantas de UF arrolladas en espiral), se puede decir que en nuestra red de distribución experimental se obtuvo un agua potable de mucha peor calidad, con un contenido en COD de 3,4 veces mayor que en el caso real citado.

En la legislación española referente a aguas de consumo humano (RD 140/2003), el valor paramétrico establecido para el carbono orgánico total es “sin cambios anómalos”. Se considera que existen cambios anómalos cuando los valores cuantificados superan el doble del valor medio de al menos los tres últimos años (Ministerio de Sanidad, Política Social e Igualdad, 2011). Aunque el presente estudio se llevó a cabo durante un tiempo inferior a tres años, tomando esta recomendación como criterio puede decirse que el agua obtenida en la red de distribución se podría considerar potable puesto que no presentó cambios anómalos con respecto al COT medido. Tan sólo en cinco días consecutivos el valor superó el doble de la media (2·5,89 mg/L, Figura 28) pero fueron valores atípicos consecuencia de problemas técnicos en la planta.

A pesar de que no existe conocimiento de que el carbono orgánico provoque efectos adversos sobre la salud humana, cabe reseñar que según un documento publicado por el Ministerio de Sanidad y Consumo consensuado con las Comunidades Autónomas en marzo de 2005, cuando se supere un valor de 6,0 mg/L de COT es necesario una rápida aplicación de medidas correctoras y también establece un valor de referencia de 7,0 mg/L para calificar el agua como no apta para consumo. Por tanto, si se toma este criterio como referencia y a la vista de los resultados, el valor medio de COT para el efluente ($5,89 \pm 3,22$ mg/L) rozó la no potabilidad del agua y en muchas ocasiones sus valores diarios fueron muy superiores a los 7 mg/L, cosa que sucedió por ejemplo durante toda la etapa de ozonización (Figura 28). Así que, en resumen, el agua obtenida en la red no podría calificarse estrictamente de no potable según la normativa, pero sí que se puede afirmar que la calidad fue media-baja atendiendo a las recomendaciones aquí expuestas.

4.1.4.2.2. Absorbancia ultravioleta a 254 nm

La UV_{254} es un parámetro ampliamente utilizado en caracterización de aguas como indicador de la composición aromática la MON (Chin *et al.*, 1994; Metsämuuronen *et al.*, 2013). Se ha demostrado que el agua natural con altos valores UV_{254} tiene un contenido hidrófobo y aromático relativamente alto con fracciones de COD de alto peso molecular, tales como ácidos húmicos y fúlvicos (Kumari y Gupta, 2015).

La UV_{254} del agua muestreada en esta fase no presentó una tendencia evolutiva clara a lo largo del tiempo de estudio, ni para el influente ni para el efluente, pero la superposición de los puntos de ambas corrientes mostradas en la Figura 30 sí denota que su evolución y comportamiento fue muy similar en ellas. Este paralelismo entre ambas corrientes es confirmado también por el altísimo coeficiente de correlación que presentaron ambos parámetros ($r = 0,963$; Tabla 12). No obstante, en esta figura es llamativo que la estabilidad que la UV_{254} mostró en líneas generales a lo largo de esta fase (eludiendo las alteraciones iniciales de la etapa de CF+UF ocasionadas por algunas paradas técnicas de la planta), se vio alterada en la etapa de pre-ozonización. Según apuntan Wittmer *et al.* (2015), una mayor dosis de O_3 por unidad de COD provoca

una mayor diferenciación en la UV_{254} . Entonces las fluctuaciones de ozono que pudieron darse tanto en el agua tratada como en la presencia de O_3 en la RDE, pudo ocasionar esta perturbación de la estabilidad de la UV_{254} durante esta etapa.

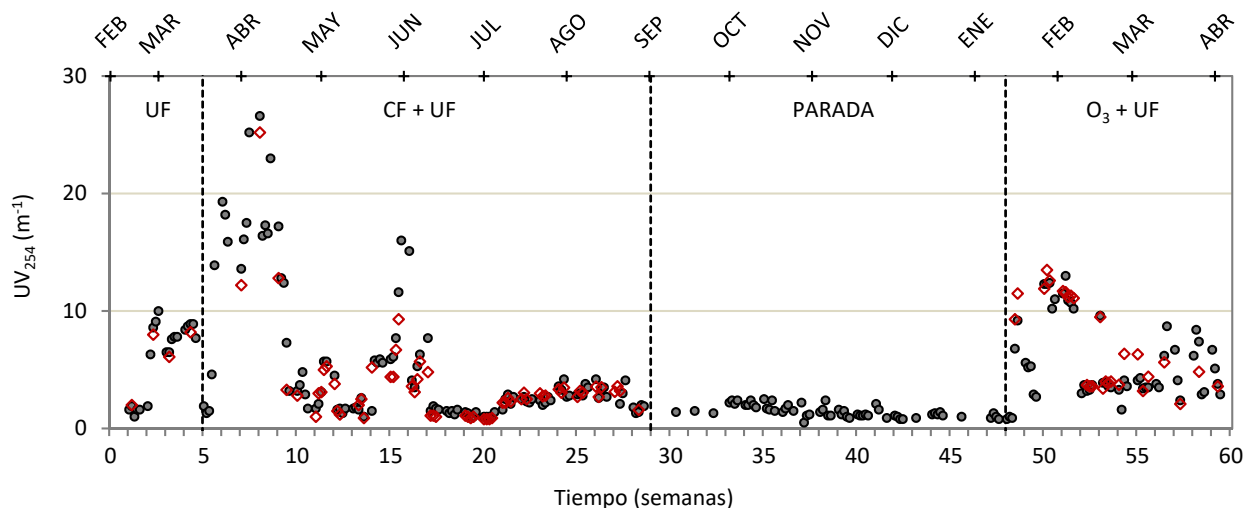


Figura 30. Evolución de la absorbancia ultravioleta a 254 nm del influente (◊) y efluente (●) de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

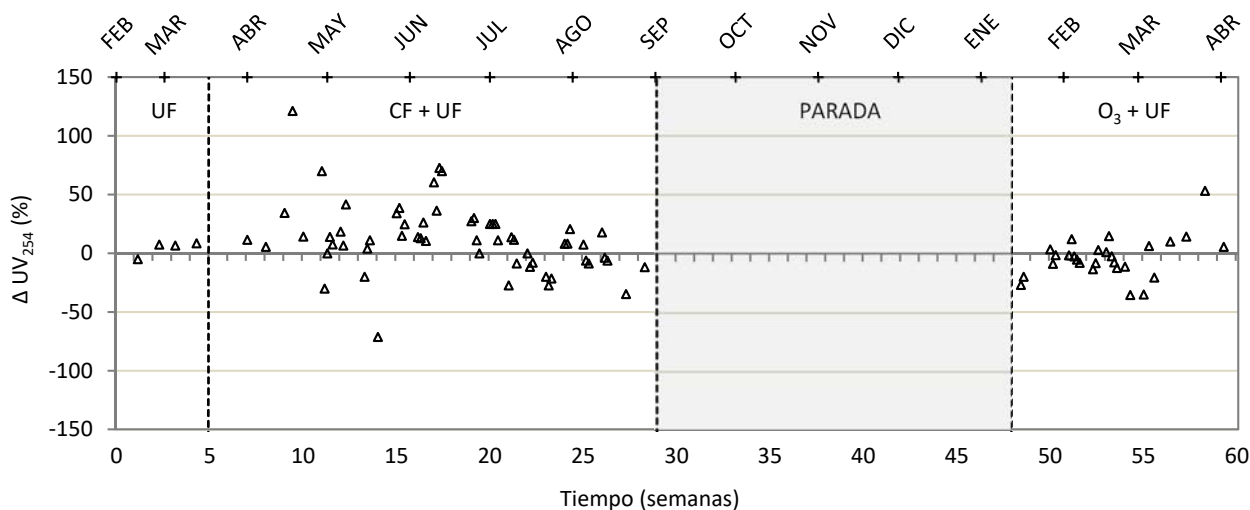


Figura 31. Evolución del incremento de absorbancia ultravioleta a 254 nm del efluente con respecto al influente de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

La UV_{254} media del agua tratada fue de $4,72 \pm 4,01 \text{ m}^{-1}$, similar a las cifras obtenidas por Maeng *et al.* (2015) en aguas tratadas con membranas de microfiltración durante 45 días de operación. La UV_{254} del influente presentó diferencias estadísticamente significativas entre las dos etapas que contaron con un

pretratamiento asociado a la membrana de UF, siendo la CF+UF donde se alcanzó el valor medio más bajo de este parámetro ($3,56 \text{ m}^{-1}$) como se manifestó en estudios previos (Rojas-Serrano *et al.*, 2016). Esto es debido a que el tratamiento de coagulación-floculación favorece en mayor medida la eliminación de la MOD más hidrófoba en comparación con la hidrófila (Matilainen *et al.*, 2002; Tapia *et al.*, 2011), lo que se traduce en una mayor eliminación de la materia de alta absorbancia, dando como resultado aguas con menor UV_{254} . Por otro lado, el ozono, como oxidante que es, puede modificar el carácter de la materia orgánica. De hecho, son numerosas las investigaciones que señalan que la ozonización repercute en un descenso de la UV_{254} del agua al transformar la MON de alto peso molecular/hidrófoba en MON de bajo peso molecular/hidrófila (Galapate *et al.*, 2001; Swietlik *et al.*, 2004; Hua y Reckhow, 2013; Zhou *et al.*, 2015). De hecho Hyung *et al.* (2000) advirtieron que la combinación del tratamiento O_3 +UF produciría una mayor eliminación de UV_{254} que la UF sola porque la pre-ozonización elimina compuestos orgánicos de bajo peso molecular. Sin embargo, en nuestro caso el influente de la etapa de O_3 +UF presentó un valor medio de UV_{254} algo superior al de la etapa de UF ($7,1$ vs. $6,1 \text{ m}^{-1}$, Tabla 19). Aunque esto pudiera parecer un comportamiento enfrentado al referido por otros autores, hay que tener en cuenta que estas dos etapas no presentaron diferencias estadísticamente significativas de UV_{254} y que además la etapa de UF contó con un tamaño muestral muy reducido, por lo que sería necesario un estudio posterior más amplio para analizar mejor el comportamiento de este parámetro en el influente (véase fase de estudio comparativo).

Tabla 19: Valores medios de absorbancia ultravioleta a 254 nm del influente y efluente de la RDE, porcentaje de incremento de UV_{254} de EF respecto al INF y % de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las distintas etapas del estudio evolutivo.

Etapa	$UV_{254} \text{ (m}^{-1}\text{)}$		Porcentaje de incremento de UV_{254} (EF vs INF)		
	INF	EF	$\bar{X} \pm SD$ (%)	Δ (%)	∇ (%)
UF	$6,08 \pm 2,88$ ^{a,b}	$6,12 \pm 3,17$ ^a	$4,40 \pm 6,32$ ^{a,b}	75,00	25,00
CF + UF	$3,56 \pm 3,70$ ^a	$5,43 \pm 6,29$ ^a	$12,08 \pm 29,76$ ^a	70,91	29,09
PARADA	-	$1,46 \pm 0,51$ ^b	-	-	-
O_3 + UF	$7,10 \pm 3,80$ ^b	$5,63 \pm 3,38$ ^a	$-3,67 \pm 17,60$ ^b	37,04	62,96
Global	$4,72 \pm 4,01$	$4,61 \pm 4,97$	$6,96 \pm 26,81$	60,47	39,53

^{a,b} Subconjuntos homogéneos de cada parámetro por el método SNK con un nivel de significación de 0,05.

En el caso del efluente no hubo diferencias estadísticamente significativas entre las distintas etapas, a excepción de la etapa de PARADA (Tabla 19), lo que indica que la caracterización de la MON del agua obtenida en la red fue relativamente homogénea a lo largo del estudio evolutivo con un valor medio de UV_{254} de $4,61 \pm 4,97 \text{ m}^{-1}$. La etapa diferenciada (PARADA) presentó una absorbancia significativamente menor y con bastante menor dispersión de valores (Figura 30). Al no contar ésta con aporte continuo de influente en la red, la cantidad de COD fue la más baja del estudio evolutivo como ya se vio en la Tabla 18 y de ahí que la absorbancia también lo fuera, ya que estos dos parámetros suelen estar bastante correlacionados en aguas

(Huang *et al.*, 2016^a; Chow *et al.*, 2009) y puede entenderse que al haber menos cantidad de materia orgánica, la absorbancia del agua sea menor. Esta correlación también se confirma en este trabajo por el alto coeficiente de correlación de Pearson ($r_{\text{COD-UV}_{254}}=0,784$; Tabla 12) y la fuerte correlación positiva del análisis de redundancias ($\alpha=4^\circ$; Figura 21) que se obtuvo en esta fase.

Aunque en líneas generales la $U_{V_{254}}$ no presentó una tendencia clara, en la Figura 30 puede apreciarse una leve tendencia descendente durante la etapa de PARADA que pudo estar motivada por la falta de influente y la cloración del agua. La materia orgánica puede sufrir transformaciones estructurales al reaccionar con el cloro (Ivancev-Tumbas *et al.*, 1999), además de que dentro de la red se suelen dar condiciones aeróbicas y oxidativas (Chien *et al.*, 2009). Estos fenómenos pudieron provocar que la materia orgánica se oxidara y transformara en estructuras de menor peso molecular, es decir, de menor UV_{254} . Además, al no contar con una renovación continua de influente, tampoco se favorecía la entrada de materia orgánica más aromática (no oxidada por la cloración). Esta tendencia descendente se mantuvo a lo largo de toda esta etapa, incluso cuando los valores de COD presentaron la tendencia opuesta (Figura 28), lo que quiere decir que la materia orgánica aumentó en cantidad pero no en aromaticidad. O lo que es lo mismo, que a pesar del aumento de MON por acumulación en la red, la caracterización aromática de ésta sufrió una transformación con el tiempo hacia formas menos aromáticas debido a la cloración. Sin embargo, en la etapa de CF+UF la tendencia evolutiva fue ligeramente ascendente (una vez superadas las fluctuaciones iniciales ocasionadas por la estabilización de la planta experimental), al igual que la tendencia ascendente del COD, y coincidiendo además con el desarrollo de biopelículas. Es decir, en esta etapa la UV_{254} y el COD evolucionaron en el mismo sentido (ascendentemente). Esta diferencia de tendencias entre las etapas CF+UF y PARADA hace pensar que la influencia de la cloración fue mayor cuando la red operó mayoritariamente en recirculación sin aporte de influente que cuando operó con aporte con éste.

Dejando a un lado la evolución en el tiempo y centrándonos en el comportamiento de la UV_{254} en la RDE, al observar los valores de la Tabla 19 de forma sesgada podría pensarse que la aromaticidad de la materia orgánica del agua disminuyó en su transcurso por la red, ya que la UV_{254} media a la entrada y a la salida de ésta fue de $4,72 \pm 4,01 \text{ m}^{-1}$ y $4,61 \pm 4,97 \text{ m}^{-1}$ respectivamente. Pero teniendo en cuenta que el valor medio en el caso del efluente se vio reducido por la particularidad de la etapa de PARADA y apoyándonos en los resultados del ΔUV_{254} , puede verse que en realidad el cambio sufrido en la red no fue un descenso de absorbancia sino un aumento de ella: en el 60 % de los casos analizados el agua aumentó su UV_{254} frente a un 40 % donde ésta disminuyó, presentando un incremento medio del 7 %. Por tanto, puede decirse que la materia orgánica del agua tuvo una leve tendencia a “aromatizarse” o a aumentar su UV_{254} durante el transcurso por la RDE. Este comportamiento parece no diferir mucho de la investigación realizada por Chien

et al. (2009) donde el agua también sufrió un incremento en este parámetro ($\approx 9\%$) en su paso por una red de distribución real de Taiwán, aunque en este caso el agua procedía de una planta de tratamiento convencional que contaba con una etapa de pre-ozonización y dos desinfectantes (ozonización y cloración), y no con membranas de filtración.

La influencia del tratamiento se puso de manifiesto en los valores de ΔUV_{254} con diferencias estadísticamente significativas entre las dos etapas que contaron con un pretratamiento, presentando comportamientos enfrentados entre sí. Mientras que la etapa de CF+UF presentó un incremento medio positivo del 12 %, la etapa de O_3 +UF obtuvo un incremento negativo del 4 % (Tabla 19). Esto da a entender que la CF pudo favorecer que la MON del agua se aromatizara en la RDE y que la pre-ozonización provocara el efecto contrario. La explicación de ello se encuentra en que en el caso de la O_3 +UF, el ozono residual presente en la red hizo que la materia orgánica se fragmentara y se formaran estructuras de menor UV_{254} (Galapate *et al.*, 2001; Swietlik *et al.*, 2004; Zhou *et al.*, 2015); y en el caso de la etapa de CF+UF el incremento de UV_{254} en la red pudo ser tanto por el aumento del contenido en COD del agua en la red, que como ya se ha mencionado se correlaciona con la UV_{254} , como por el desarrollo de biopelícula que se dio en esta etapa. En este sentido, se entiende que la generación de biopelícula promueve una mayor absorbancia en agua ya que, según afirma Ikonen *et al.* (2013), la UV_{254} es una buena herramienta para detectar el crecimiento bacteriano en sistemas de distribución de agua y de ahí su relación.

En la legislación no existe ningún valor de referencia ni limitante para la UV_{254} en agua potable. En la literatura científica se encuentran valores de este parámetro medidos en RDAP reales que oscilan en un amplio rango dependiendo de diversos parámetros como la fuente de agua, sus propiedades físico-químicas previas, el sistema de potabilización empleado, las condiciones y características del sistema de distribución, etc. Ejemplos de ello fueron los resultados obtenidos por Ikonen *et al.* (2013) en RDAPs de 5 ciudades de Finlandia, donde las muestras tomadas en la red procedían de distintas fuentes de origen y empleando distintos métodos de desinfección, donde la UV_{254} osciló entre 0,19 y 4,16 m^{-1} ; o el caso de un estudio llevado a cabo en Australia donde el agua procedente de una planta de tratamiento convencional con coagulación mejorada presentó un valor medio en red de 3,9 m^{-1} (Chow *et al.*, 2009); la investigación de Bai *et al.* (2006) en Shanghái, con tratamiento convencional, presentó una absorbancia de entre 6,2 - 9,7 m^{-1} en la red; o el estudio de Kumari y Gupta (2015), donde valores de UV_{254} por encima de 10 m^{-1} son calificados de altos. Por tanto, teniendo en cuenta estas referencias reales, puede afirmarse que la UV_{254} que presentó el agua de la RDE en nuestro estudio evolutivo (4,61 m^{-1}) se encuentra dentro de los valores normales encontrados en bibliografía, lo que hace pensar que el hecho de que el agua hubiese sido tratada con membranas de UF en vez de con tratamientos convencionales no tuvo una repercusión significativa en este parámetro.

4.1.4.2.3. Índice SUVA

De entre todos los parámetros estudiados para la caracterización de la MON del agua, quizás el más usado sea la absorbancia ultravioleta específica o SUVA, muy estudiado por la comunidad científica por su estrecha relación con el potencial de formación de los subproductos de desinfección (Hua *et al.*, 2015; Kitis *et al.*, 2002; Croué *et al.*, 2000; Reckhow *et al.*, 1990), relación que será contrastada en el próximo apartado con los resultados de esta fase de estudio.

Puesto que el índice SUVA es el ratio entre UV_{254} y COD, el comportamiento que se observó para este índice en la Figura 32 y Figura 33 fue una combinación de los comportamientos mostrados por estos dos parámetros durante el estudio evolutivo y que han sido analizados anteriormente. Es destacable que el índice SUVA tuvo una mayor correlación con la UV_{254} que la que tuvo con el COD, tanto para el caso del influente ($r_{SUVA-UV_{254}} = 0,883$ y $r_{SUVA-COD} = 0,455$; Tabla 12) como para el caso del efluente ($r_{SUVA-UV_{254}} = 0,841$ y $r_{SUVA-COD} = 0,256$; Tabla 12), por lo que la evolución del SUVA mostró un comportamiento más similar al de la UV_{254} que al del COD como también refleja la similitud entre las gráficas recopiladas en la Figura 35. Así mismo, los valores de SUVA del influente y efluente mostraron una correlación global positiva entre ellos ($r_{SUVA_{INF}-SUVA_{EF}} = 0,681$; Tabla 12) como se aprecia en la similitud del comportamiento de los puntos que representan ambas corrientes en la Figura 32.

Atendiendo a la evolución temporal, y teniendo en cuenta esta influencia de UV_{254} sobre SUVA, no sorprende la estabilidad general que mostró el SUVA con valores en su mayoría inferiores a 1 L/mg-m y sin ninguna tendencia claramente marcada, ya que la UV_{254} también fue bastante estable y sin tendencia notoria obviando los valores atípicos sobrevenidos por paradas técnicas (Figura 35-C y E). Esta estabilidad del SUVA también fue advertida por Huang *et al.* (2016b) dentro de una RDAP real. Si se analiza en más detalle la evolución del SUVA en cada etapa por separado, nuevamente se repite el patrón de comportamiento que mostró la UV_{254} en ambas corrientes de entrada y salida de la RDE: una tendencia ligeramente ascendente al final de la CF+UF, algo descendente durante la etapa de PARADA y sin tendencia clara en la O_3 +UF. Por tanto, los motivos de la evolución de SUVA en el tiempo fueron los mismos que se expusieron en el análisis de la evolución de la UV_{254} en combinación con el COD en menor medida.

En la Figura 34 se han representado los valores medios de los tres parámetros de caracterización de la MON para visualizar su evolución temporal de una manera conjunta y más global. En ella es más fácil apreciar que el índice SUVA presentó una variabilidad mínima en el tiempo, sin grandes cambios en ninguna de las dos corrientes, y manteniéndose siempre en valores en torno a 1 L/mg-m a pesar de que los dos parámetros que definen este índice sí que sufrieron más fluctuaciones en el tiempo. Esos cambios fueron más evidentes

en la corriente del efluente de la RDE, donde la horquilla de valores más amplia para UV_{254} y COD se dio en la última etapa por los motivos explicados en los apartados correspondientes y con un rango de variabilidad aproximado de 4 y 6 unidades respectivamente.

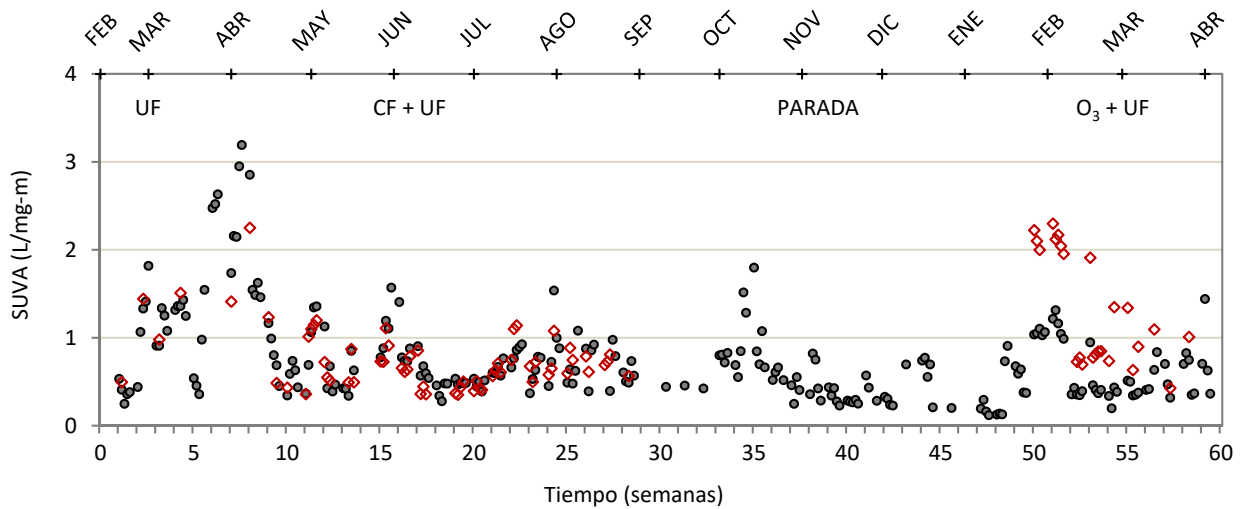


Figura 32. Evolución del SUVA del influente (◊) y efluente (●) de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

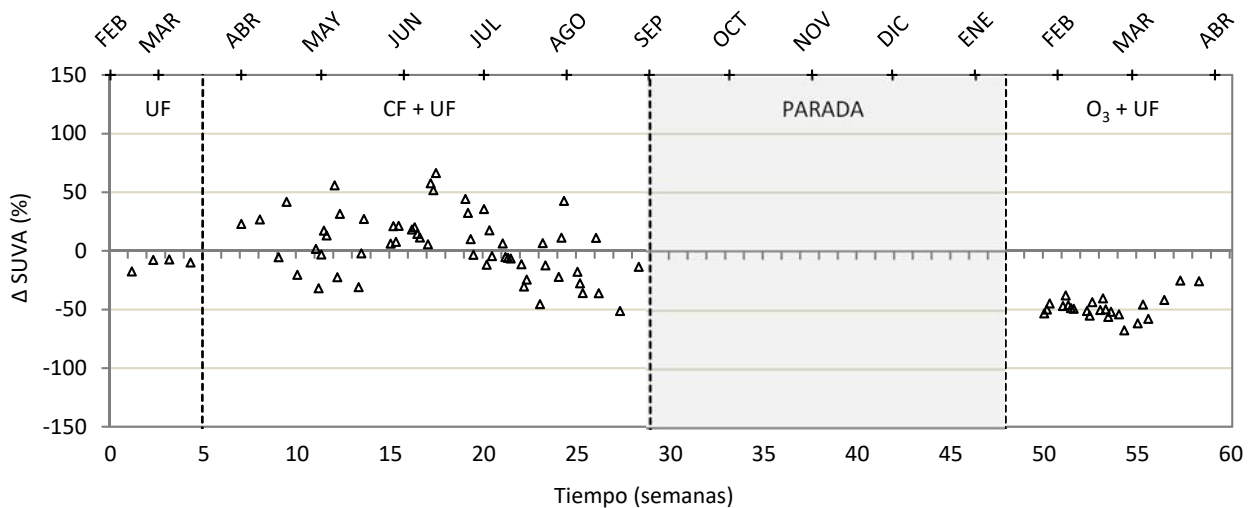


Figura 33. Evolución del incremento de SUVA del efluente con respecto al influente de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

Es cierto que no existen unos estándares para el índice SUVA establecido por ley pero James K. Edzwald, junto con otros colaboradores, desarrollaron un uso de SUVA como indicador operacional de la naturaleza de la MON y de la efectividad de la coagulación en eliminación de MON, COD y precursores de DBPs, y propusieron unos valores guía a partir del estudio de diversas referencias de SUVA en aguas naturales y ácidos húmicos y fúlvicos de distintas fuentes (Edzwald y Van Benschoten, 1990; Edzwald *et al.*, 1985), guía

que ha sido de uso extendido por la comunidad científica desde entonces. Valores de SUVA por encima de 4 L/mg-m indican que el COD está compuesto en su mayoría por sustancias húmicas, relativamente hibróforas, aromáticas y de mayor peso molecular que aquellas aguas que presentan un menor SUVA, por lo que el control de la MON y la eliminación de COD mediante coagulación suele ser buena (> 50 %). Valores de SUVA por debajo de 2 L/mg-m indican que el COD está compuesto mayormente por material no-húmico, relativamente hidrófilo, de menor carácter aromático, menor peso molecular, y con unos rendimientos de eliminación de COD por coagulación pobres (< 25 %). En el caso de que el SUVA se encuentre entre ambos valores, la composición de la MON y la eficacia de la coagulación presentará características y valores intermedios (Edzwald y Tobiason, 1999).

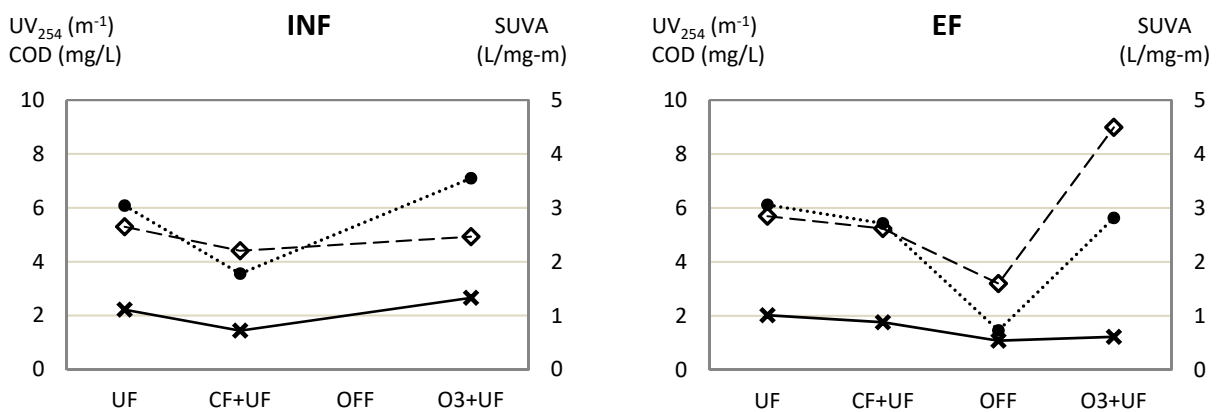


Figura 34. Evolución media de los parámetros de la materia orgánica UV₂₅₄ (●), COD (◇) y SUVA (×) del influente (INF) y efluente (EF) de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

Entonces, de acuerdo con estos criterios, la composición de la MON del agua tanto a la entrada como a la salida de la RDE se caracterizó por material mayoritariamente no-húmico, de baja hidrofobia y bajo peso molecular ya que los valores medios de SUVA para el influente y el efluente fueron bastante inferiores a 2 L/mg-m ($0,91 \pm 0,52$ y $0,75 \pm 0,50$ L/mg-m respectivamente; Tabla 20), con contadas excepciones en el efluente cuyos valores atípicos se debieron a la puesta a punto del tratamiento de CF+UF en sus inicios (Figura 32). En base a estos valores medios globales podría decirse que la calidad del agua tratada mejoró levemente durante su distribución por la red en un 11 %, entendiendo por mejora un descenso de SUVA, ya que esto repercutiría en un descenso del riesgo de generación de subproductos de desinfección y una mayor calidad del agua potable. Pero es interesante discutir el comportamiento de cada etapa, puesto que el análisis de varianzas mostró diferencias estadísticamente significativas entre algunas de ellas (Tabla 20), incluso mostrando comportamientos opuestos en la red según el tratamiento aplicado.

Tabla 20: Valores medios de SUVA del influente y efluente de la RDE, porcentaje de incremento del SUVA de EF respecto al INF y % de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las distintas etapas del estudio evolutivo.

Etapa	SUVA (L/mg-m)		Porcentaje de incremento de SUVA (EF vs INF)		
	INF	EF	$\bar{X} \pm SD$ (%)	Δ (%)	∇ (%)
UF	1,11 \pm 0,47 ^{a,b}	1,01 \pm 0,46 ^a	- 10,63 \pm 4,73 ^a	0,00	100,00
CF + UF	0,72 \pm 0,33 ^a	0,88 \pm 0,60 ^a	4,91 \pm 27,11 ^a	55,36	44,64
PARADA	-	0,54 \pm 0,33 ^b	-	-	-
O ₃ + UF	1,33 \pm 0,64 ^b	0,61 \pm 0,32 ^b	- 48,25 \pm 9,64 ^b	0,00	100,00
Global	0,91 \pm 0,52	0,75 \pm 0,50	- 11,02 \pm 32,95	36,90	63,10

^{a,b} Subconjuntos homogéneos por el método SNK con un nivel de significación de 0,05.

El índice SUVA del influente producido por los distintos tratamientos de potabilización mostró diferencias estadísticamente significativas entre aquellas donde se aplicó un tratamiento previo a la ultrafiltración, es decir, entre CF+UF y O₃+UF (Tabla 20), al igual que sucedió en el caso de la UV₂₅₄ (Tabla 19) y a pesar de que no existieran tales diferencias en el contenido en COD del influente (Tabla 18). Esto vuelve a poner de manifiesto que el parámetro más influente en el valor de SUVA fue la UV₂₅₄, y de ahí que se dieran las mismas diferencias en ambos casos y que, recordemos, estuvieron motivadas por el efecto de los pretratamientos. En el caso de la CF+UF el SUVA_{INF} medio fue de 0,72 \pm 0,33 L/mg-m (Tabla 20), el valor más bajo de todo el estudio evolutivo. Como puede verse en los datos recopilados en la Tabla 21, el empleo de la CF produjo un agua tratada de mejor calidad que la obtenida con la UF en los dos parámetros que definen el SUVA pero la UV₂₅₄ lo hizo en mayor medida que el COD (un 41,45 % frente a un 16,79 % respectivamente), lo que conllevó que la calidad de esta agua también mejorara en un 35,14 % de SUVA_{INF} al usar este pretratamiento. Sin embargo, en el caso opuesto está la etapa de O₃+UF con el SUVA_{INF} más alto del estudio evolutivo (1,33 \pm 0,64 L/mg-m; Tabla 20). Aquí, por razones previamente analizadas en los apartados 4.1.4.2.1 y 4.1.4.2.2, la UV₂₅₄ y el COD tuvieron comportamientos antagónicos: la UV₂₅₄ empeoró en un 16,78 % mientras que el COD mejoró en un 6,98 % con respecto a la etapa de UF, lo que dio como resultado un empeoramiento del SUVA_{INF} del 19,82 % (Tabla 21). Por tanto, si la CF logró una mejora del 35 % en eliminación de SUVA_{INF} y la pre-ozonización consiguió un empeoramiento del 20 %, las diferencias entre ambos pretratamientos son significativamente opuestas en el comportamiento de este parámetro. Gráficamente también puede percibirse esta diferencia si se observa la corriente de influente de la Figura 32, donde los puntos rojos representados en la etapa de O₃+UF quedan más altos en el eje vertical que los correspondientes a la etapa CF+UF.

Estas diferencias entre ambos pretratamientos también fueron evidentes en los resultados obtenidos por Rojas-Serrano *et al.* (2016), donde la CF fue muy efectiva en la eliminación de UV₂₅₄ y COD (81 % y 43 %

respectivamente), mientras que la pre-ozonización produjo en su caso un agua tratada de incluso mayor SUVA que el agua bruta.

Tabla 21: Valores medios de los parámetros de caracterización de la MON y eficacia del pretratamiento (η_T) en influente y efluente de la RDE, incremento medio de los parámetros en la RDE ($\Delta_{INF vs EF}$) y su interrelación en el cálculo de SUVA para cada una de las etapas del estudio evolutivo.

	INF	EF	η_{INF} (%)	η_{EF} (%)	$\Delta_{INF vs EF}$ (%)	Interrelación $\Delta UV / \Delta COD / \Delta SUVA$
Etapas UF						
UV ₂₅₄ (m ⁻¹)	6,08 ± 2,88	6,12 ± 3,17	-	-	4,40 ± 6,32	
COD (mg/L)	5,30 ± 0,92	5,70 ± 1,20	-	-	16,79 ± 2,54	⇒ $\frac{\Delta 4,40 \%}{\Delta 16,79 \%} \cong \nabla 10,63 \%$
SUVA (L/mg-m)	1,11 ± 0,47	1,01 ± 0,46	-	-	-10,63 ± 4,73	
Etapas CF+UF						
			$\eta_{CF INF}$	$\eta_{CF EF}$		
UV ₂₅₄ (m ⁻¹)	3,56 ± 3,70	5,43 ± 6,29	41,45	11,27	12,08 ± 29,76	
COD (mg/L)	4,41 ± 2,07	5,24 ± 3,07	16,79	8,07	8,50 ± 24,66	⇒ $\frac{\Delta 12,08 \%}{\Delta 8,50 \%} \cong \Delta 4,91 \%$
SUVA (L/mg-m)	0,72 ± 0,33	0,88 ± 0,60	35,14	12,87	4,91 ± 27,11	
Etapas OFF						
UV ₂₅₄ (m ⁻¹)	-	1,46 ± 0,51	-	73,11	-	
COD (mg/L)	-	3,20 ± 1,13	-	38,93	-	-
SUVA (L/mg-m)	-	0,54 ± 0,33	-	38,64	-	
Etapas O₃+UF						
			$\eta_{O_3 INF}$	$\eta_{O_3 EF}$		
UV ₂₅₄ (m ⁻¹)	7,10 ± 3,80	5,63 ± 3,38	-16,78	8,01	-3,67 ± 17,60	
COD (mg/L)	4,93 ± 0,63	8,99 ± 1,40	6,98	-57,72	89,76 ± 14,61	⇒ $\frac{\Delta 3,67 \%}{\Delta 89,76 \%} \cong \nabla 48,25 \%$
SUVA (L/mg-m)	1,33 ± 0,64	0,61 ± 0,32	-19,82	39,60	-48,25 ± 9,64	

En el caso del SUVA del efluente, el ANOVA definió dos grupos homogéneos según las etapas: UF y CF+UF por un lado, PARADA y O₃+UF por otro (Tabla 20). En el primer grupo, los correspondientes ANOVAs ya habían definido el mismo grupo homogéneo entre etapas tanto para el COD como la UV₂₅₄, por lo que el SUVA resultante tampoco mostró diferencias significativas entre dichas etapas con valores medios de SUVA_{EF} de 1,01 ± 0,46 y 0,88 ± 0,60 L/mg-m (Tabla 20). Pero sí que puede resaltarse que, aunque estas diferencias no fueran significativas, la aplicación de la CF como pretratamiento consiguió rendimientos positivos en los tres parámetros de caracterización de la materia orgánica, con una eliminación del 11 %, 8 % y 13 % en UV₂₅₄, COD y SUVA con respecto a la UF sin pretratamiento. No obstante, estos rendimientos deberán ser validados en el estudio comparativo para evitar la posible influencia del efecto de una etapa en etapas posteriores.

Por otro lado, y siguiendo con el análisis del efluente, a pesar de que las etapas de PARADA y O₃+UF sí mostraron grandes diferencias con respecto al COD (Tabla 18) y a la UV₂₅₄ (Tabla 19), no las presentaron para SUVA_{EF}. Esto encuentra explicación en el hecho de que distintos valores de UV₂₅₄ y COD (dividendo y divisor del cálculo de SUVA) pueden dar un mismo cociente si ambos parámetros varían en distinta magnitud aunque

lo hagan en el mismo sentido. El valor medio más bajo de $SUVA_{EF}$ fue el obtenido en la etapa de PARADA ($0,54 \pm 0,33$ L/mg-m; Tabla 20), lógico si se tiene en cuenta que fue el periodo con menos concentración de materia orgánica y menos aromática, lo que es indicativo de la influencia que tiene el influente en el SUVA del agua final. Pero en el caso de la O_3+UF , el comportamiento de la UV_{254} y el COD habían estado enfrentados, presentando el valor medio de COD más alto del periodo (un 57,72 % más que en la UF) y un valor moderado de UV_{254} , lo que resulta en un $SUVA_{EF}$ bajo de $0,61 \pm 0,32$ L/mg-m (Tabla 21). Esto supone que durante el tratamiento de pre-ozonización se consiguió un 40 % de eliminación de SUVA en el agua de la RDE que pudo deberse al efecto del tipo de tratamiento (por O_3 residual). Esta influencia deberá ser contrastada en el estudio comparativo para descartar la influencia de las etapas anteriores. Aunque el RDA no pudo cuantificar la influencia del tratamiento en el $SUVA_{EF}$ del experimento por presentar redundancias con $UV_{254,EF}$ y COD_{EF} , estos por separado sí que mostraron correlaciones con el tratamiento en el estudio evolutivo de forma global ($\alpha_{Trat.-COD} = 148^\circ$ (débil) y $\alpha_{Trat.-UV254} = 175^\circ$ (fuerte); Figura 21).

A pesar de tales diferencias descritas entre etapas, el agua potable obtenida en todas ellas tras su paso por la red conservó el bajo carácter húmico e hidrófobo de la entrada a la RDE con un valor medio de SUVA de $0,75 \pm 0,50$ L/mg-m (Tabla 20), por lo que puede deducirse que la distribución y cloración de este agua no alteró de forma considerable este parámetro. No obstante, es complejo conocer la reactividad del desinfectante con la MON a través del estudio del SUVA ya que Weishaar *et al.* (2003) apuntan que muestras con SUVAs similares presentan una amplia gama de reactividad con el cloro y otros desinfectantes, en gran parte por la heterogeneidad del COD que puede estar formado tanto por grupos que reaccionan con el cloro (formando cloroformo) como por compuestos orgánicos inertes a ese mismo desinfectante.

Si se analizan los resultados obtenidos para el parámetro $\Delta SUVA$, la Figura 33 muestra que no existió ninguna tendencia ni pauta global seguida por este parámetro. Sí que se ve en esta gráfica una clara diferencia de comportamiento de las etapas iniciales con la etapa de O_3+UF , diferencia advertida y apoyada por el análisis de varianzas, donde esta última etapa se desmarca con el 100 % de los incrementos negativos y con un valor medio de $-48,25 \pm 9,64$ % cuando las otras dos etapas mostraron valores medios significativamente más bajos -10,63 % y 4,91 % de $\Delta SUVA$. Esto quiere decir que el tratamiento influyó en el comportamiento de la absorbancia específica de la MON al circular el agua por la red, sin importantes cambios de SUVA para el orden de magnitud de éste, pero con una perturbación considerable en su incremento cuando el agua fue tratada con la pre-ozonización. La justificación de estos hechos hay que encontrarla de nuevo en lo sucedido con los parámetros ΔUV_{254} y ΔCOD . Si se observa la Figura 35-B, D y F, las nubes de puntos de ΔUV_{254} y ΔCOD se movieron en una franja más próxima al eje horizontal en las etapas UF y CF+UF que en la etapa O_3+UF , donde la nube de ΔCOD se desplazó a una franja claramente más positiva,

lo que hizo que la nube de puntos de Δ SUVA se desplazara a una franja más negativa. Numéricamente este comportamiento puede verse en la Tabla 21 con la interrelación de estos parámetros: en la etapa de CF+UF, tanto UV_{254} como COD experimentaron un incremento de su valor en el transcurso por la RDE, y al hacerlo el primero en proporciones algo mayores que el segundo (12 % vs. 8,5 %), resultó en un pequeño Δ SUVA medio del 5%; durante el tratamiento de UF directa, la MON del agua sufrió un incremento en red de UV_{254} y COD, pero en este caso al hacerlo en mayor proporción el COD que la UV_{254} (17 % frente a 4 %), ocasionó un decremento del SUVA del 11 %; y este mismo comportamiento se dio en la etapa O_3 +UF, pero al ser el porcentaje del divisor mucho mayor que el del dividendo (4 % vs. 90 %), se produjo un decremento del SUVA considerable con un valor medio del 48 %.

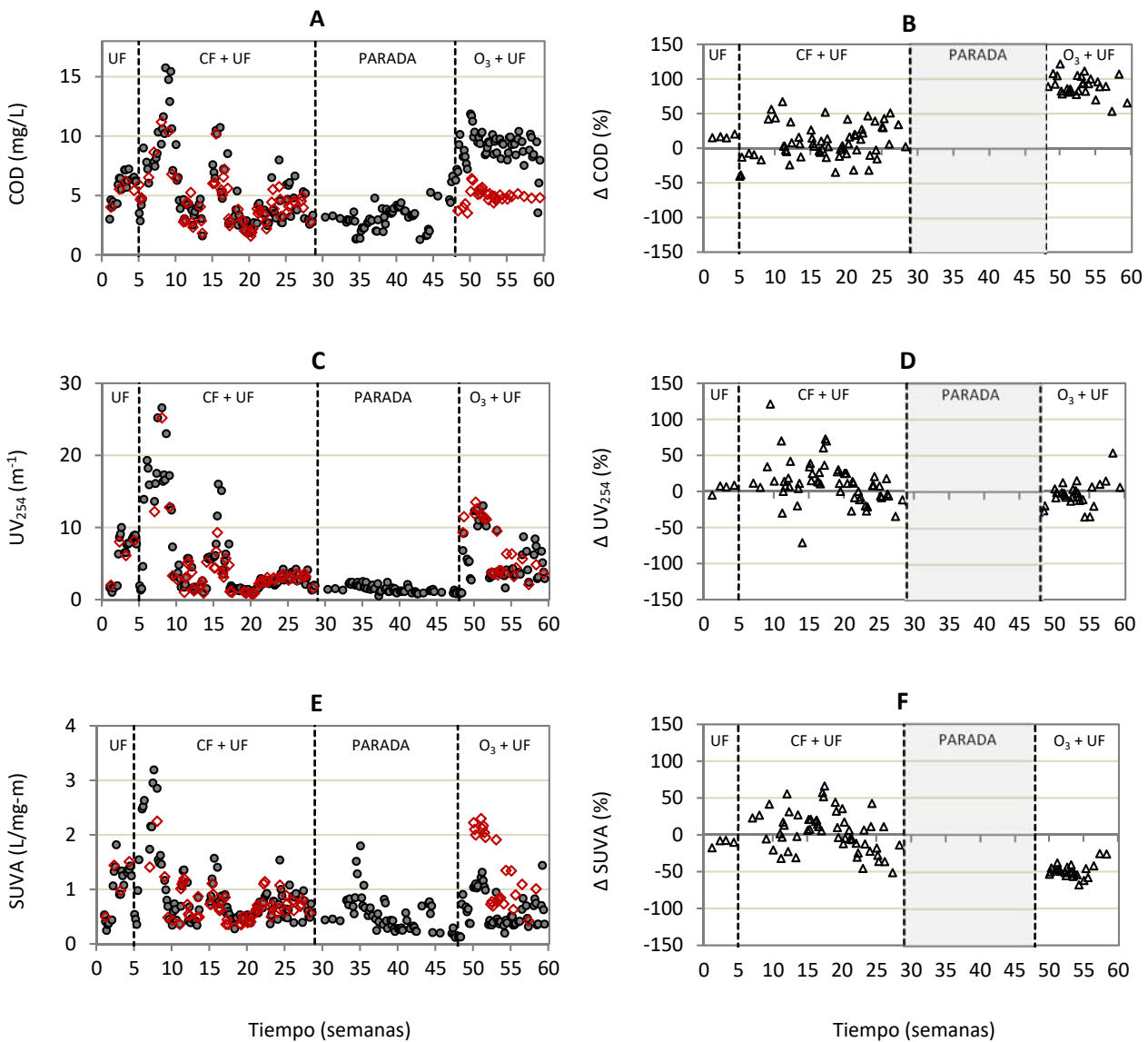


Figura 35. Comparativa de los parámetros de caracterización de MON del influente (◊), efluente (●) e incremento entre ellos (Δ) en la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

La Figura 36 ha sido construida para resumir toda la caracterización de la MON del agua potable (o efluente de la RDE) en función de los tres parámetros que la definen de manera conjunta: COD, UV_{254} y SUVA. De ella puede deducirse de manera general que la MON del agua distribuida se caracterizó en gran parte por una baja aromaticidad ya que la gran mayoría de puntos quedan representados por debajo de la línea de $SUVA = 1 \text{ L/mg-m}$ y el resto por debajo de la línea "SUVA 3", siendo muy pocos los puntos por encima de "SUVA 2" correspondientes a los momentos de parada y arranque que hubo en la instalación al comienzo de la etapa de CF+UF. Haciendo distinciones por etapas, la MON en la UF directa fue la más compensada en proporción UV_{254}/COD , siendo un efluente relativamente aromático y de peor calidad debido al uso de la membrana como único tratamiento. La etapa de CF+UF fue en la que se produjo un efluente algo más heterogéneo por esos días de arranque y parada en la instalación experimental pero en su mayoría de menor aromaticidad y COD debido a la eficacia de la coagulación en eliminación de materia y sobre todo de la fracción más hidrófoba (Tapia *et al.*, 2011) que hizo que su composición no fuera tan reactiva con el cloro de desinfección (Lavonen *et al.*, 2013). La etapa de PARADA fue la que presentó la MON más homogénea, de menor concentración de carbono y menor aromaticidad de todas, puesto que no existía corriente de entrada a la RDE. Y por último, en la etapa de O_3+UF es donde hubo más cantidad de materia orgánica pero de baja aromaticidad, seguramente debido al efecto del ozono residual en la red que pudo desprender los depósitos de las paredes de la tubería y también al descenso de reactividad de la materia al ser transformada de hidrófoba a hidrófila por el O_3 (Galapate *et al.*, 2001), decreciendo su reactividad para la cloración.

El SUVA medio obtenido en el agua de la RDE durante toda la fase de estudio evolutivo fue de $0,75 \pm 0,50 \text{ L/mg-m}$ (Tabla 20), con un máximo de $3,19 \text{ L/mg-m}$ alcanzado en la 7ª semana del estudio (Figura 32). Haciendo una comparación relativa de estos resultados con otros disponibles en bibliografía, donde la variación de valores es amplia y teniendo siempre en cuenta las particularidades de cada caso, se puede considerar que la calidad del agua potable producida en este estudio fue buena en lo que a SUVA se refiere. Un caso a escala real es el estudio realizado por Huang *et al.* (2016b) en una RDAP de Australia abastecida con agua procedente de una planta de tratamiento convencional donde obtuvieron valores de SUVA en el sistema de distribución siempre por encima de $1,5 \text{ L/mg-m}$, mientras que en nuestra RDE rara vez alcanzó dicho valor (Figura 32), aunque también es cierto que ambos casos parten de un agua bruta con SUVA's muy diferentes. Otro caso es el de Wert y Rosario-Ortiz (2011), en el estado americano de Nevada, donde el agua final presentó un SUVA medio de $1,79 \text{ L/mg-m}$ y que descendió a una media de $0,79 \text{ L/mg-m}$ cuando se instaló una pre-ozonización en la planta de tratamiento, es decir, un 56 % de mejora. Esto soporta los resultados obtenidos en nuestro estudio donde, recordemos, el $SUVA_{EF}$ experimentó un descenso de $1,01$ a $0,61 \text{ L/mg-m}$ con el empleo de la pre-ozonización, o sea, un 40 % de mejora (Tabla 21). Todo ello hace prever que la

calidad del agua potable obtenida con tecnología de membranas puede no verse perjudicada tras su paso por la red de distribución en lo que a índice SUVA se refiere.

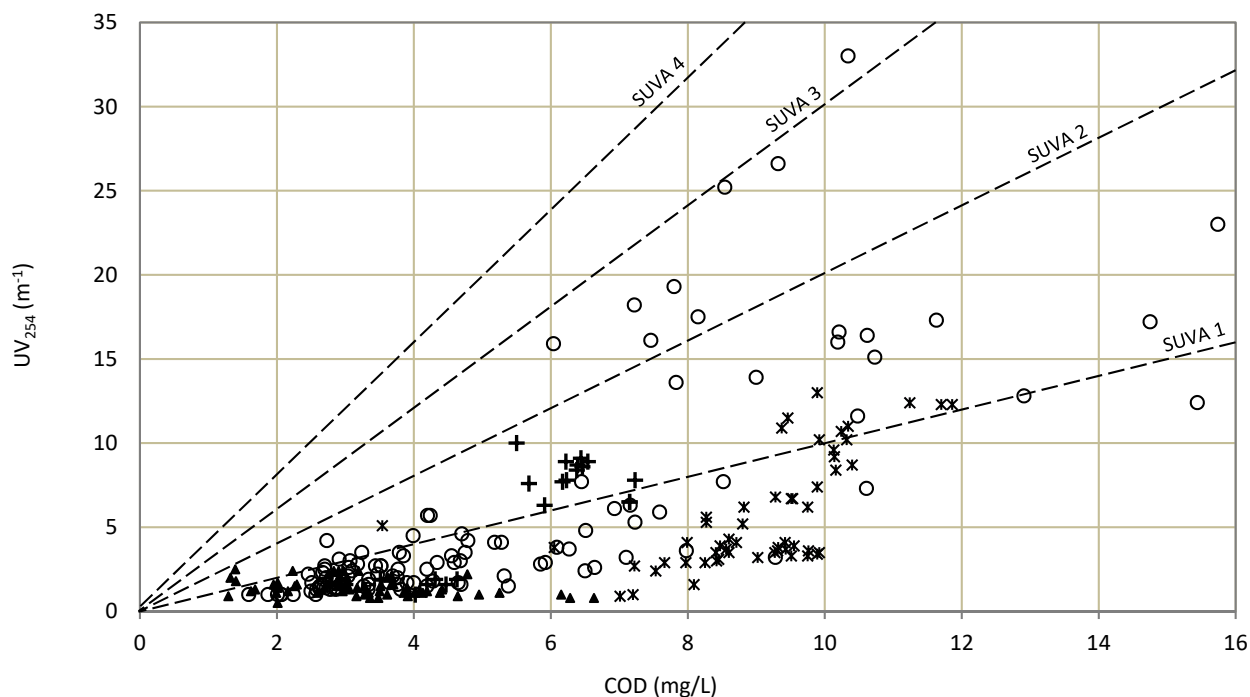


Figura 36. Caracterización de la MON del agua de la RDE en función de la UV_{254} y el COD en las distintas etapas del tratamiento durante la fase de estudio evolutivo: UF (+), CF+UF (O), PARADA (▲), O_3 +UF (*).

4.1.5. Subproductos de desinfección: trihalometanos

La desinfección del agua es necesaria para eliminar los microorganismos patógenos que puedan existir en ella, pero el uso de agentes desinfectantes presenta la contrapartida de que favorecen la formación de subproductos de desinfección (DBPs), los cuales son indeseados por su conocido efecto nocivo sobre la salud humana al ser considerados potencialmente cancerígenos (Rodríguez *et al.*, 2007).

Los DBPs analizados en esta fase del estudio fueron los trihalometanos puesto que es el grupo más predominante en aguas de consumo cloradas, seguido de los ácidos haloacéticos (Rodríguez *et al.*, 2007), y además los únicos contemplados en la legislación española hasta la fecha.

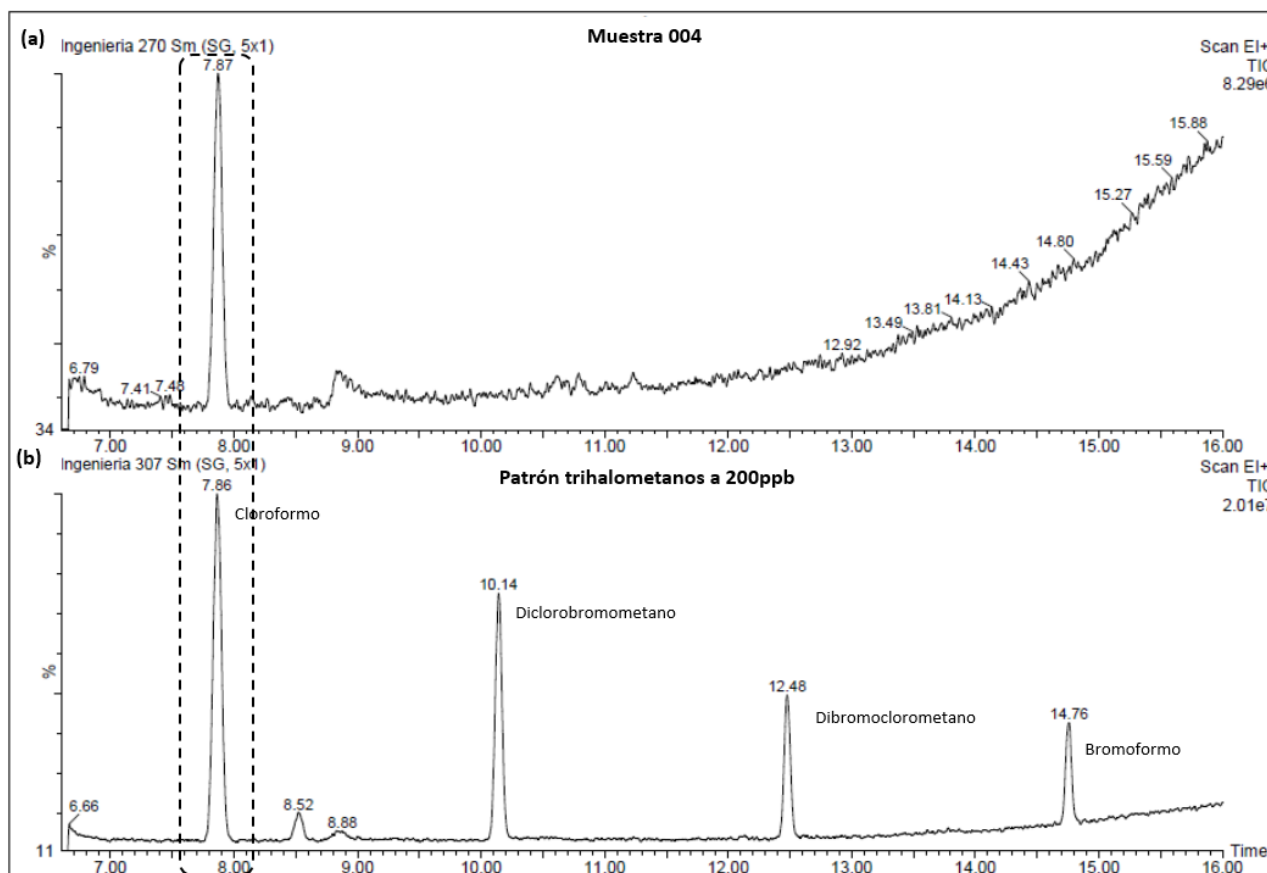


Figura 37. Cromatograma de una de las muestras analizadas para detección de trihalometanos (a) en comparación con un patrón comercial de estos (b).

Los resultados obtenidos mostraron que, de entre las cuatro especies de THM existentes, el único hallado en las muestras analizadas fue el triclorometano (CHCl_3) o cloroformo. Un ejemplo de los cromatogramas obtenidos del análisis de las muestras de agua es el que se ve en la Figura 37, donde puede observarse que de los cuatro picos correspondientes a las cuatro especies presentes en el patrón de THMs (b), tan sólo el pico correspondiente al cloroformo se manifestó también en la muestra (a). Puesto que la desinfección del agua en la RDE se llevó a cabo mediante cloración y el agua de alimentación estaba libre de compuestos bromados, no sorprende que el único THM detectado en las muestras fuera el cloroformo. Esto sucede en muchos casos encontrados en bibliografía donde el CHCl_3 es la única especie presente en el agua o al menos la mayoritaria con respecto a las demás (Kumari y Gupta, 2015; Zhang *et al.*, 2010; Teksoy *et al.*, 2008; Roccaro *et al.*, 2008; Sérodes *et al.*, 2003; Williams *et al.*, 1997).

La normativa con respecto a los THMs ha ido cambiando con el paso del tiempo, siendo cada vez más restrictiva. En la actualidad, y desde el 1 de enero de 2009, en España el límite que establece el RD 140/2003 para la suma de los THMs en aguas de consumo humano es de $100 \mu\text{g/L}$. Teniendo esto en cuenta y a la vista

de los resultados obtenidos durante todo el estudio evolutivo (Figura 38), puede decirse que el agua de la red experimental cumplió sobradamente con el límite legislativo, con una concentración media en la fase evolutiva de $21,88 \pm 34,59 \mu\text{gCHCl}_3/\text{L}$ (Tabla 22), concordando en magnitud con lo obtenido por Mouly *et al.* (2010) en tres RDAPs reales francesas cuya concentración media de THMs osciló entre los 21,6 y los 59,9 $\mu\text{g}/\text{L}$. Tan sólo en 4 muestras puntuales del estudio evolutivo se sobrepasó el límite permitido, ocurriendo uno de ellos en la semana 38 por la supercloración llevada a cabo para limpiar el interior de la RDE; y los otros 3 puntos se dieron durante la etapa $\text{O}_3 + \text{UF}$, seguramente por el aumento de COD y UV_{254} que se experimentó en dicha etapa, lo cual tiende a favorecer la generación de DBPs (Rodríguez *et al.*, 2007).

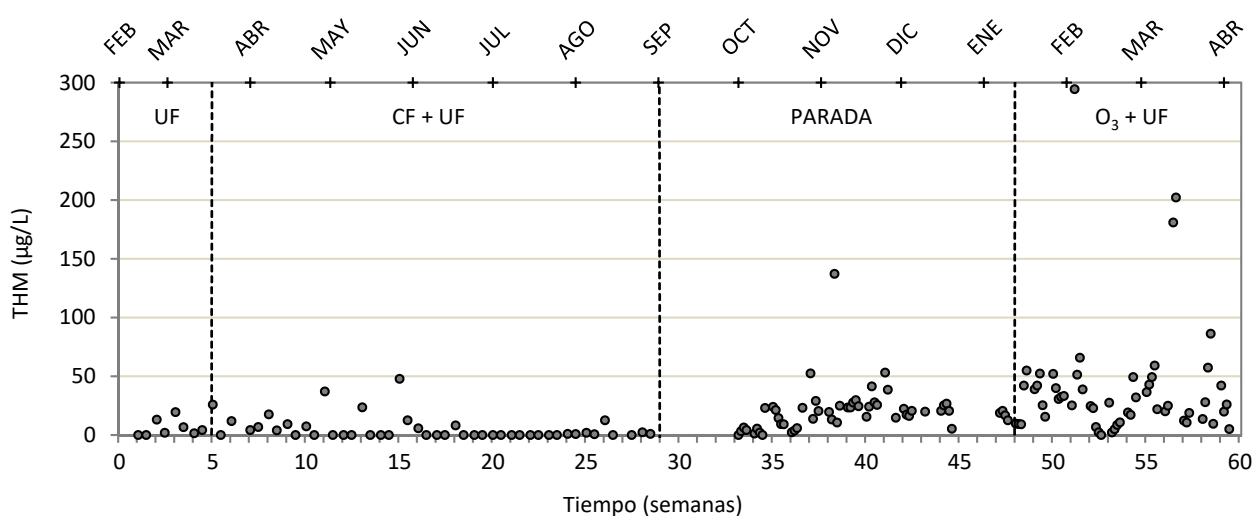


Figura 38. Evolución de la concentración de THMs (● cloroformo) en el agua de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

Si se presta atención a la Figura 38 se aprecia un aumento paulatino en la concentración de cloroformo con el tiempo y además con ciertas diferencias entre etapas. Esto puede sugerir que la concentración de este THM en el agua clorada pudo estar influenciada tanto por el paso del tiempo como el tipo de tratamiento, tal y como refleja la fuerte correlación positiva existente entre los vectores de la variable “tratamiento” y el parámetro “THM” en el análisis de redundancia ($\alpha = 16^\circ$, Figura 21). Recordemos que en dicho análisis, aunque no aparezca el vector “tiempo” por redundancia con “tratamiento”, la correlación existente THM-tratamiento es aplicable y similar a la correlación THM-tiempo. Por otro lado, la matriz de coeficientes de Pearson muestra que el resto de parámetros que podrían haber influido en la cantidad de THM en agua como el CRL (que fue prácticamente constante), la temperatura, el pH o las propiedades de la materia orgánica (COD, UV_{254} , SUVA), presentaron una correlación casi insignificante, siendo la más alta la existente entre THM-SUVA con una correlación de 0,442 (Tabla 12). Esto quiere decir entonces que en este estudio la concentración de THMs en el agua potable estuvo más determinada por el tipo de tratamiento (o el tiempo)

que por ninguna otra variable o parámetro del sistema. Esto soporta la teoría de que diferentes tratamientos son efectivos en eliminación de diferentes tipos de MON, lo que produce distintas especies de DBPs (Teksoy *et al.*, 2008), lo que en aguas con ausencia de bromo podría traducirse en diferentes concentraciones de cloroformo. No obstante, en la fase de estudio comparativo se analizará de una forma más fiable la influencia del tratamiento sobre los THMs, ya que cada fase (determinada por un tratamiento distinto) parte de unas mismas condiciones y evita así las posibles alteraciones que unas etapas pueden causar en otras posteriores en el tiempo.

Tabla 22: Valores medios de concentración de THM (cloroformo) y SUVA en el agua de la RDE en las distintas etapas del estudio evolutivo.

Etapa	Cloroformo ($\mu\text{g/L}$)
UF	5,89 \pm 7,01 ^a
CF + UF	5,28 \pm 10,23 ^a
PARADA	20,64 \pm 19,99 ^{a,b}
O ₃ + UF	39,30 \pm 50,59 ^b
Global	21,88 \pm 34,59

^{a,b} Subconjuntos homogéneos por el método SNK con un nivel de significación de 0,05.

En la Tabla 22, donde se recogen los valores medios de la concentración de CHCl_3 detectado en el agua de la RDE en cada etapa, se advierten dos grupos homogéneos de valores: por un lado el formado por las etapas iniciales UF, CF+UF y PARADA; y por otro lado el grupo formado por las etapas finales PARADA y O₃+UF. Estas diferencias pudieron tener su origen en el tipo de tratamiento como se deduce del RDA, aunque también en el tiempo transcurrido. En las dos etapas primeras, la concentración de cloroformo fue muy baja, con una media inferior a los 6 $\mu\text{g/L}$ y siempre por debajo de la mitad del valor límite permitido en agua potable. Sin embargo, en las etapas finales esta media superó los 20 $\mu\text{g/L}$, llegando incluso a duplicarse en la última etapa. Cabe señalar que los valores más bajos se alcanzaron en la etapa de CF+UF, coincidiendo con Brooks *et al.* (2015), donde la eliminación de THMs fue mayor en aguas donde se había aplicado la CF, y también con la conclusión de Ivancev-Tumbas *et al.* (1999) que señalaron que el nivel de cloroformo descende con la aplicación de la coagulación. Esto tiene sentido ya que el tratamiento de coagulación es más efectivo eliminando la materia más hidrófoba (de ahí que la UV_{254} del efluente fuera más baja), y puesto que el cloro es selectivo hacia los compuestos con más dobles enlaces (Lavonen *et al.*, 2013), la formación de CHCl_3 no se ve tan favorecida en aguas con baja UV_{254} . En el extremo opuesto estuvo la etapa de O₃+UF, presentando los valores más altos del estudio. Esto está en contraposición con lo obtenido por la mayoría de autores, donde la ozonización supone una reducción en el nivel de DBPs (Domínguez-Tello *et al.*, 2015; Wert y Rosario-Ortiz, 2011b; Hua y Reckhow, 2013); Gallard y Von Gunten, 2002). Entonces, la mayor

concentración de cloroformo experimentado en la etapa de O₃+UF de este estudio debió ser consecuencia del gran incremento de MON en dicha etapa (la de mayor COD_{EF} de todo el estudio y abundantes depósitos acumulados en las paredes de la tubería formando parte de la biopelícula), lo que aumentaría el número de reacciones entre la MON y el cloro de desinfección, produciendo más cantidad de este subproducto. Además, Hua y Reckhow (2013) señalaron que hay que prestar especial atención en el caso de aguas con bajo índice SUVA (como es el caso) ya que el impacto del ozono sobre los precursores de DBPs depende mucho de las propiedades de la MON, siendo poco efectivo en la destrucción de determinados precursores, tanto que incluso provoque un aumento neto del CHCl₃ (Zhou *et al.*, 2015). Por todo ello, el O₃ residual presente en la RDE pudo conseguir el efecto contrario al habitual, ya que la gran cantidad de materia orgánica de esta etapa (y de SUVA < 2 L/mg-m) pudo ser transformada en materia de menor peso molecular y, junto con la cloración, provocar un aumento en la formación de subproductos dirigidos hacia la formación de CHCl₃ en el agua final. A la vista de este comportamiento, tal vez no se deba extrapolar la eficacia del proceso de ozonización en el agua tratada al caso del agua clorada ya que el poder oxidante el ozono residual en la red de distribución puede influir en la caracterización de la MON y en las vías de reacción en la generación de DBPs.

La influencia del tratamiento sobre la presencia de THMs en agua ha sido estudiada por otros autores como Domínguez-Tello *et al.* (2015), quienes también probaron esta influencia en los sistemas de distribución de agua. Igualmente la bibliografía ha plasmado en numerosas ocasiones la relación que presentan otros parámetros sobre la formación de THMs u otros DBPs (Chowdhury *et al.*, 2009), pero en este estudio no han guardado una correlación muy significativa, siendo en algún caso hasta contraria a lo habitual. Por ejemplo, autores como Brooks *et al.* (2015) y Edzwald *et al.* (1985) observaron que las variaciones estacionales impulsaban cambios en la formación de THMs, generalmente formándose más cantidad de subproductos en la estación estival. Sin embargo en este estudio la concentración de THMs en el agua potable no se vio influenciada por la temperatura, presentando concentraciones similares en estaciones térmicamente opuestas (Figura 38). Otro parámetro que suele influir en la formación de DBPs es el pH, aunque con una gama amplia de correlaciones que van desde coeficientes bajos como el hallado por Domínguez-Tello *et al.* (2015) de 0,285 hasta casos como el de Kumari y Gupta (2015) con un coeficiente de correlación de 0,873, mientras que en nuestro estudio la correlación fue casi inexistente ($r_{\text{THM-pH}} = 0,150$; Tabla 12). La literatura también ha relacionado habitualmente las propiedades de la materia orgánica con la formación y especiación de DBPs, siendo normal encontrar correlaciones positivas del nivel de THMs con el TOC, COD, UV₂₅₄ o SUVA, y de hecho multitud de modelos matemáticos desarrollados para la predicción de la formación de DBPs contemplan estas variables en sus ecuaciones (Chowdhury *et al.*, 2009). Pero no siempre deben asumirse estas relaciones como indiscutibles, ya que la UV₂₅₄ tiene la limitación de no dar información específica acerca

de las moléculas individuales del COD, limitando a su vez la utilidad del SUVA como indicador de la reactividad del COD con los desinfectantes porque hay compuestos que contribuyen a la UV_{254} pero son inertes para la formación de THMs y sin embargo hay otros compuestos que sí forman THMs pero no proporcionan UV_{254} (Weishaar *et al.*, 2003). En nuestro caso los coeficientes de correlación encontrados para estos parámetros del efluente con el nivel de THMs en agua fueron de 0,294 para el COD, de 0,195 para la UV_{254} y de 0,037 para el SUVA, cuando en investigaciones como la de Kumari y Gupta (2015) la correlación de TOC, COD y UV_{254} con los THMs sobrepasó siempre el 0,500.

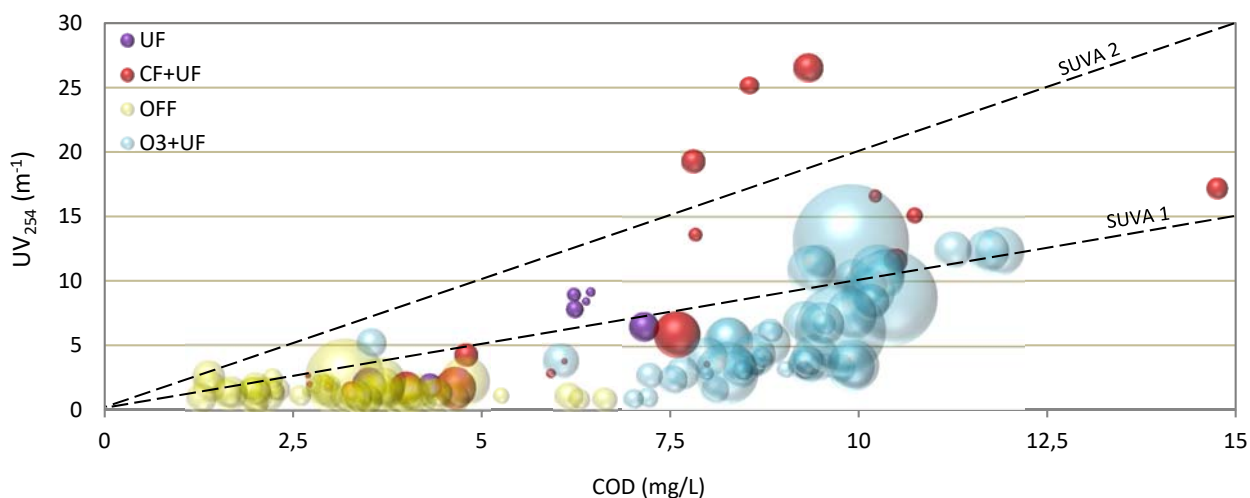


Figura 39. Gráfico de burbujas de la concentración de cloroformo en relación a la UV_{254} , el COD y el SUVA del agua de la RDE en las distintas etapas del tratamiento durante la fase de estudio evolutivo.

La Figura 39 muestra de manera clara y muy visual la concentración de cloroformo (a mayor diámetro de la burbuja, más concentración de este THM hubo en la muestra) en función del plano de coordenadas definido por los parámetros UV_{254} y COD, cuya combinación define a su vez distintas regiones de SUVA (señaladas por las líneas SUVA 1 y 2 L/mg-m). Además, el color de la burbuja indica la etapa de tratamiento en la que se obtuvieron dichas concentraciones, por lo que el gráfico recopila la información de estos cuatro parámetros (THM, COD, UV_{254} y SUVA) y la variable “tratamiento de potabilización”.

Según algunos autores (Kitis *et al.*, 2002; Croué *et al.*, 2000), el índice SUVA es una buena herramienta para la predicción de formación de DBPs, donde un menor valor de SUVA supone un menor riesgo de generación de DBPs. Sin embargo, hay otros estudios que indican que la correlación entre el SUVA y los DBPs clorados no es tan significativa (Hua *et al.*, 2015; Ates *et al.*, 2007) o incluso que es un débil indicador de la reactividad del COD con los desinfectantes porque hay compuestos que contribuyen a la UV_{254} pero son inertes para la formación de THMs y sin embargo hay otros compuestos que sí forman THMs pero no dan

UV₂₅₄ (Weishaar *et al.*, 2003). Tal vez por estas razones en este estudio la generación de THMs tampoco siguió la predicción marcada por los valores de SUVA, ya que en las dos etapas que presentaron los valores más bajos de SUVA (PARADA y O₃+UF con 0,54 y 0,61 L/mg-m respectivamente) fueron donde se obtuvieron los niveles más altos de cloroformo (20,64 y 39,30 µg/L). Este efecto se aprecia muy bien la Figura 39, donde las burbujas de mayor tamaño (mayor concentración de CHCl₃) se encuentran en la región inferior de la línea "SUVA 1" y en la zona más baja del eje de UV₂₅₄. Por tanto, a la vista de todos estos resultados, se puede confirmar que no siempre las correlaciones entre los parámetros de caracterización de MON y la generación de DBPs guardan una misma relación ni en un mismo sentido o dirección, pudiendo entrar en el juego un gran número de factores que pueden hacer que las rutas de reacción de la MON sean diversas y con ello la especiación de los DBPs formados. Entre esos factores pueden encontrarse la cantidad de Br, Fe o nitratos en el agua (Zhai *et al.*, 2014; Pifer *et al.*, 2014), las propiedades de la materia orgánica, el tipo y la dosis de desinfectante, la presencia de otro agente oxidante en la red que pueda entrar en competencia con el desinfectante, las células planctónicas y en biopelícula que pueden liberar precursores de DBPs (Wang *et al.*, 2013), los materiales procedentes de la corrosión de la tubería, y un largo etcétera.

Por último, por mencionar otro parámetro también contemplado generalmente en los modelos predictivos de DBPs, el tiempo de residencia del agua en la red de distribución suele guardar una correlación fuerte y positiva con los DBPs (Domínguez-Tello *et al.*, 2015; Mouly *et al.*, 2010), generando más cantidad de estos cuanto mayor es el tiempo de contacto de la MON con el desinfectante. A este respecto sólo puede decirse que si en este estudio, donde el tiempo de residencia en la RDE fue muy bajo (unos 5 minutos aproximadamente), se detectaron ciertos niveles de cloroformo aunque no llegaran a concentraciones que descartaran la potabilidad del agua, podría preverse que en RDAPs reales el nivel de cloroformo u otros DBPs generados fuesen mayores, ya que en redes reales los tiempos de retención pueden ser de horas o días. De hecho, este puede ser un factor que influyera en el aumento de la concentración de CHCl₃ durante la etapa de PARADA, donde al no contar con una entrada de influente constante y solamente renovar parte del agua semanalmente, los tiempos de retención aumentaban considerablemente. Además, hay estudios que demuestran que la cantidad de DBPs aumenta desde la salida de planta de tratamiento hasta el punto final de consumo (Domínguez-Tello *et al.*, 2015), incluso pueden llegar a duplicar su concentración, dependiendo en gran medida de su concentración en la entrada a planta y del tratamiento aplicado (Mouly *et al.*, 2010).

Teniendo en cuenta todo esto, y como advirtieron Delpla y Rodríguez (2016), los niveles de MON deberían ser estrictamente controlados en el tratamiento de potabilización del agua para así controlar o mitigar la formación de DBPs en los sistemas de distribución, por lo que en aguas tratadas con membranas

de UF (cuyo inconveniente es la baja eficacia en retención de MOD) se debería tener especial cuidado y vigilancia con los DBPs generados en las redes de distribución de aguas de consumo humano.

4.1.6. Parámetros microbiológicos

A pesar de la alta eficacia de la tecnología de membranas como método físico de desinfección (Gómez *et al.*, 2006), es necesario emplear también un método de desinfección química que mantenga el carácter residual en la red de distribución, ya que las zonas tras la membrana no se encuentran en condiciones de esterilidad y pueden aparecer bacterias que afecten negativamente a la calidad del agua potable, además del riesgo de generación de biopelícula que puede conllevar.

Por ello, el agua fue clorada en la red de distribución experimental, y se llevó el control de dos de los parámetros más representativos de la calidad microbiológica de un agua de consumo humano y que vienen contemplados en el RD 140/2003: el recuento de colonias a 22 °C y *Escherichia coli*.

4.1.6.1. Recuento de colonias a 22 °C

Como se ve en la Figura 40, el recuento de colonias a 22 °C (RC₂₂) en el agua de la RDE se mantuvo en valores prácticamente nulos durante la mayor parte del estudio evolutivo pero sobre la semana 20, tras cuatro meses de operación y coincidiendo con el mes de julio y las altas temperaturas, empezaron a obtenerse recuentos positivos con mucha más frecuencia y progresivamente más numerosos hasta la semana 37, tras la cual recordemos que se llevó a cabo una limpieza de choque en la RDE (véase apartado 4.1.7), donde vuelven a caer los recuentos casi a cero.

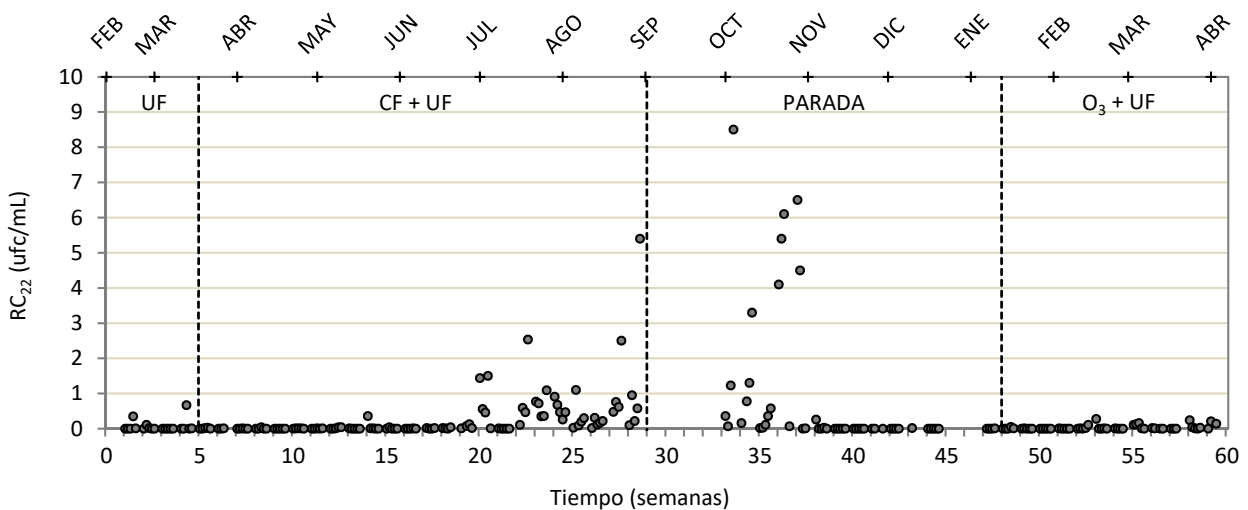


Figura 40. Evolución del recuento de colonias a 22 °C en el agua de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.

La legislación española marca como criterio de sanidad que el recuento de colonias a 22 °C en un agua de consumo humano no puede superar las 100 ufc/mL a la salida de la ETAP y “sin cambios anómalos” en la red de distribución (RD 140/2003). Según el documento donde se desarrolló el artículo 27.7 del RD 140/2003 (Ministerio de Sanidad y Consumo, 2005), se entiende por cambios anómalos en este parámetro aquellos valores superiores al doble del valor medio de al menos los tres últimos años en la red. Aunque el estudio evolutivo tuvo una duración menor a esos tres años, aplicando esta pauta cabría pensar que el agua de la red no fuese apta para consumo humano puesto que a partir de la semana 20 se alcanzaron valores de RC_{22} muy superiores a 0,62 ufc/mL (doble de la media, Tabla 23) en multitud de ocasiones. Pero si se presta atención a las cifras en sí, el máximo recuento de colonias obtenido fue de 8,50 ufc/mL, que dista mucho de las 100 ufc/mL fijadas como valor paramétrico en la ETAP y más aún de las 10000 ufc/mL fijadas por consenso como valor paramétrico para calificar un agua no apta para el consumo (Ministerio de Sanidad y Consumo, 2005). Por tanto, teniendo en cuenta la legislación y demás valores establecidos por consenso a nivel gubernamental, el agua producida en esta fase no sólo se puede considerar apta para consumo humano durante todo el periodo estudiado sino de muy alta calidad con respecto a este parámetro microbiológico.

El agua producida en esta red experimental puede considerarse de mejor calidad microbiológica que la obtenida en otras redes de distribución reales. Un ejemplo de ello es el estudio realizado por Perez-Martinez *et al.* (2013), quienes analizaron más de un centenar de muestras de agua de grifo en hogares de 5 puntos distintos de Ciudad de México, y en las cuales obtuvieron un recuento de bacterias aerobias mesófilas de entre 12 y 87 ufc/mL. La mitad de las muestras eran procedentes de río y habían sido tratadas mediante técnicas convencionales; la otra mitad, captada de pozos, fue tratada con ósmosis inversa entre otros tratamientos. Nótese que, a pesar de este último tratamiento, los recuentos al final de la red fueron superiores a los del presente documento, aunque tan sólo 2 de las 120 muestras sobrepasaron los estándares de calidad (<100 ufc/mL). Otro ejemplo es el estudio llevado a cabo en una RDAP de Taiwán, donde la planta de tratamiento no contaba con tecnología de membranas aunque sí con dos métodos de desinfección (ozonización y cloración), y los recuentos de bacterias obtenidos en diversos puntos de la red nunca fueron superiores a las 20 ufc/mL (Chien *et al.*, 2009). Un caso más extremo cuyos valores distan mucho de los aquí expuestos es el de Scott y Pepper (2010), que analizaron el agua de la RDAP de 6 ciudades de EEUU y encontrando recuentos que iban desde las 5 ó 340 ufc/mL hasta $2,4 \cdot 10^5$ ufc/mL, y con una presencia de bacterias de al menos 10^3 por mL en todas las muestras al emplear el método de recuento directo con naranja de acridina. No es de extrañar que los métodos de recuento directo proporcionen valores más altos, como así sucedió en el estudio de Homonnay *et al.* (2014) en una RDAP de Budapest, que mientras los recuentos

en placa fueron de escasas unidades, el recuento directo de células por epifluorescencia se movió en un orden de magnitud de 10^5 células/mL.

A pesar de que la filtración por membrana elimina más del 99,5 % de las células bacterianas (Prest *et al.*, 2016), no es de extrañar la presencia de bacterias en la red de distribución. En el presente estudio, a pesar de la alta eficacia que mostró la membrana de ultrafiltración en retención de microorganismos según datos previamente publicados (Rojas-Serrano *et al.*, 2015a), hubo alguna presencia de estos en la red puesto que no existían condiciones de esterilidad en zonas posteriores al tratamiento. A pesar de que las altas temperaturas favorecieron el recrecimiento bacteriano en el agua de la RDE y que hubo un desarrollo de biopelícula cada vez más evidente conforme avanzaba el tiempo de operación (Figura 42), el RC₂₂ presentó cifras muy, muy bajas. Esto quiere decir que el sistema de post-cloración consiguió mitigar y controlar la proliferación bacteriana, que hubiera sido mucho mayor de no haber clorado el agua de la red, lo que justifica la necesidad de una desinfección química de carácter residual en las redes de distribución de agua potabilizada con membranas de ultrafiltración. Homonnay *et al.* (2014) comprobaron que la cloración es capaz de reducir el recuento bacteriano, pero además produce una reducción de la diversidad bacteriana y provoca cambios significativos en las estructuras comunitarias (antes y después de la cloración), e incluso a lo largo del sistema de distribución.

El análisis de varianzas desveló que no existieron diferencias estadísticamente significativas entre las distintas etapas del estudio evolutivo en el RC₂₂, excepto en la etapa de PARADA. Realmente, observando las cifras en sí de la Tabla 23, esta diferencia debe ser obviada, puesto que el recuento medio en esta etapa no llegó a ser ni una unidad más alta que en el resto de etapas, resultando además insignificante una media de $0,83 \pm 8,50$ ufc/mL en comparación con las 10000 ufc/mL que descartarían el agua como potable (Ministerio de Sanidad y Consumo, 2005). Dicha diferencia mostrada por el ANOVA se debe a que, entre una gran mayoría de recuentos nulos, cualquier recuento positivo por bajo que sea, se identifique como un valor significativamente más alto que los demás. Además, plantearse la influencia del tipo de tratamiento sobre el RC₂₂ carece de sentido en tanto en cuanto todos ellos cuentan con una membrana de UF al final del tratamiento, que es lo que hace que se alcance ese excelente rendimiento en eliminación de microorganismos, aunque una vez en la RDE, es verdad que el RC₂₂ se podrá ver afectado por otros parámetros que indirectamente dependan del tratamiento, como por ejemplo el contenido en materia orgánica o la presencia de O₃ como oxidante.

Tabla 23: Valores medios, máximos y mínimos del recuento de colonias a 22 °C del agua de la RDE en las distintas etapas del estudio evolutivo.

Etapa	RC ₂₂ (ufc/mL)	RC ₂₂ máximo (ufc/mL)	RC ₂₂ mínimo (ufc/mL)
UF	0,06 ± 0,67 ^a	0,67	n.d.
CF + UF	0,26 ± 0,66 ^a	5,40	n.d.
PARADA	0,83 ± 8,50 ^b	8,50	n.d.
O ₃ + UF	0,03 ± 0,06 ^a	0,28	n.d.
Global	0,31 ± 1,06	8,50	n.d.

^{a,b} Subconjuntos homogéneos por el método SNK con un nivel de significación de 0,05; n.d.: no detectado.

El motivo del comportamiento que presentó el RC₂₂ a lo largo del estudio evolutivo no se debe por tanto al tipo de tratamiento ni el paso del tiempo, como confirma la no correlación de estos vectores en el RDA (Figura 21), sino a la influencia de otros parámetros del sistema como la biopelícula, que fue el que mostró una mayor correlación positiva con el recuento bacteriano ($r_{RC_{22}\text{-Biof.}} = 0,704$; Tabla 12). Según la matriz de coeficientes de correlación de Pearson, el resto de parámetros apenas tuvieron influencia en el recuento de colonias planctónicas del agua de la RDE a pesar de que el RDA señaló una fuerte correlación positiva entre RC₂₂-temperatura y RC₂₂-Turb_{INF} ($\alpha=24^\circ$ y 23° respectivamente; Figura 21). Pero analizando esto último detenidamente puede llegarse a la conclusión de que estas correlaciones a nivel global en el estudio no explicaban la realidad del sistema, y de ahí que sea necesario un estudio comparativo que elimine variables que puedan perturbar el análisis de los datos. Prueba de ello es que en el caso de la temperatura es cierto que el aumento en el RC₂₂ comenzó con el aumento de la temperatura del agua en los meses de verano (Figura 40), quizá por coincidencia temporal, pero dicha tendencia al alza también continuó durante los siguientes meses correspondientes al otoño donde la temperatura ya cambió a una tendencia descendente, y seguramente el RC₂₂ podría haber seguido en aumento de no ser por la limpieza química realizada en la semana 38 que rompió esta tendencia. Lo mismo ocurrió con la turbidez del agua, que su comportamiento coincidió con el del RC₂₂ durante el largo periodo de los meses iniciales del estudio pero no en los últimos, quedando esta relación desmentida por el bajo coeficiente de correlación que presentaron ambos parámetros ($r_{RC_{22}\text{-TurbINF}} = 0,176$ y $r_{RC_{22}\text{-TurbEF}} = 0,090$; Tabla 12).

Una de las variables más importantes en el control de la calidad y estabilidad microbiológica del agua es el cloro residual libre. Muestra de ello es el estudio realizado por Escobar y Randall (2001b), donde a pesar de alto contenido en carbono orgánico asimilable y biodegradable que podría haber propiciado un recrecimiento bacteriano considerable, el recuento de bacterias heterótrofas en placa fue siempre cercano a cero (3 -15 ufc/mL) como consecuencia del alto nivel de desinfectante residual mantenido en la red de distribución (entre 3,3 y 4,8 mg/L de cloramina). Sin embargo, en el presente estudio la instalación

experimental fue diseñada para que el nivel de CRL fuera bajo y constante a lo largo de toda la experimentación (0,4 mg/L), por lo que realmente no representó una influencia significativa en el sistema ($\alpha_{RC22-CRL} = 37^\circ$; Figura 21) más allá de lo que supuso para el control de la proliferación bacteriana en el agua de la RDE.

Por último, del comportamiento que tuvo el RC_{22} en el estudio evolutivo, cabe detenerse en lo sucedido tras la drástica caída provocada por la supercloración de la semana 38, donde el recuento permaneció constante en valores prácticamente nulos durante los 5 meses restantes del estudio, mientras que anteriormente sólo habían sido necesarios 4 meses para empezar a experimentar una subida en el recuento de colonias. A pesar de que tras la semana 38 la superficie de la tubería se cubrió con depósitos de materia orgánica en pocas semanas y el contenido en COD del agua fue significativamente más alto en la etapa de O_3+UF (factores ambos que podrían haber propiciado la formación de biopelícula bacteriana y el aumento de RC_{22}), la proliferación en el recuento de colonias a 22 °C no llegó a producirse en esta última etapa. Esto sugiere que la presencia de O_3 residual en la RDE tuvo un efecto desinfectante que evitó la presencia de bacterias tanto en forma planctónica en el agua circulante (RC_{22}) como adheridas a las paredes de la tubería (véase la Figura 41-L, M, N). A pesar de que Lund y Ormerod (1995) comentaron que el agua ozonizada aumenta el contenido de moléculas orgánicas fácilmente degradables y con ello la cantidad (y variedad) de bacterias, en este estudio no fue así porque aunque el O_3 pudo hacer la materia orgánica del agua más asimilable por las bacterias, éstas no sobrevivieron en presencia del O_3 residual que actuó como desinfectante en la RDE.

Aunque es verdad que en este estudio se obtuvieron valores muy bajos de RC_{22} en referencia a los estándares marcados, la tendencia al alza manifestada en momentos donde las condiciones del sistema permitieron la influencia de factores como la biopelícula, hacen anunciar que la tecnología de membranas como único método de desinfección sólo sería aconsejable en sistemas de uso puntual pero no en sistemas de distribución y almacenamiento de agua potable, en cuyo caso sería necesario complementar la desinfección física con una química posterior para evitar el empeoramiento de la calidad microbiana del agua durante su distribución. Este planteamiento coincide con lo expresado por Aschermann *et al.* (2016) que señalaron que no es muy conveniente la distribución del agua desinfectada físicamente con UF porque la MON que ésta no es capaz de eliminar contribuye a la regeneración bacteriana y se requiere un post-tratamiento para la estabilización microbiana del agua.

Por último, hay que tener en cuenta que en la RDE los tiempos de residencia del agua fueron muy inferiores a los que pueden darse en una RDAP real. Éste es un parámetro que puede influir en la estabilidad

biológica del agua, llegando a tener un impacto considerable en el recuento bacteriano del agua cuando se trata de depósitos o reservorios (donde los tiempos de residencia son elevados) según advirtieron Kerneis *et al.* (1995). Pero también revelaron que el tiempo de residencia no afecta a dicha estabilidad biológica en el caso del agua circulante por las tuberías. Con lo cual, si se trata de extrapolar los resultados aquí obtenidos (una RDE simulada a escala piloto) al caso de una RDAP real, puede vaticinarse que las condiciones operacionales aquí ensayadas no supondrían una pérdida de estabilidad microbiológica del agua potable final.

4.1.6.2. Recuento de *Escherichia coli*

Uno de los parámetros especificados en el anexo I del RD 140/2003 es el referido a las bacterias coliformes. La bacteria *Escherichia coli* es el género predominante dentro de las bacterias coliformes y es considerada el mejor indicador de contaminación fecal en agua potable por su asociación con enfermedades diarreicas, por lo que en el ámbito del tratamiento de aguas es un hito de garantía y seguridad en salud pública (Gruber *et al.*, 2014; Edberg *et al.*, 2000). Es por ello que se eligió esta bacteria como parte del estudio de la calidad microbiológica del agua.

La legislación establece que un agua apta para consumo humano debe presentar un recuento de *Escherichia coli* de 0 u.f.c. en 100 mL. Todos y cada uno de los recuentos a lo largo del estudio fueron siempre nulos (0 ufc/100mL), cumpliendo así el límite de potabilidad normativo y pudiendo afirmar por tanto que el agua de la red experimental era apta para consumo humano en este aspecto. Homonnay *et al.* (2014) tampoco detectaron indicadores fecales ni patógenos en su sistema de distribución real (en Budapest), pero hay que señalar que en su caso el agua era tratada únicamente por filtración de bancadas en río y una cloración por seguridad (0,1-0,3 mg/L) debido a su buena calidad natural, por lo que no detectaron dichos indicadores ni antes ni después de la cloración. Sin embargo, en el estudio de Perez-Martinez *et al.* (2013), en los puntos de muestreo de la RDAP de Ciudad de México donde el agua había sido tratada por métodos convencionales, el análisis detectó 3 positivos en coliformes totales y 1 en coliformes fecales de un total de 60 muestras analizadas en esa zona.

El estudio estadístico para el parámetro "*E. coli*" no pudo realizarse porque todos sus valores fueron nulos. Por tanto, no puede analizarse cuantitativamente la influencia y las correlaciones de las distintas variables y demás parámetros sobre él, pero sí cualitativamente si existió o no alguna relación según lo que expone la literatura científica.

La ausencia de *E. coli* durante toda la fase de estudio evolutivo no dependió de la etapa (o el tipo de tratamiento) en sí, es decir, el recuento fue negativo siempre con independencia del tratamiento empleado en la potabilización del agua. Esto fue así porque todas las etapas contaron con la ultrafiltración como tratamiento y estas membranas reducen drásticamente la presencia de *E. coli* en el agua filtrada por ellas (Molelekwa *et al.*, 2014). No obstante, es frecuente encontrar bacterias tras estos sistemas físicos de desinfección (en depósitos, tubería, etc.) dado que estas zonas son susceptibles a la contaminación por microorganismos de distinta procedencia, llegando incluso a dar positivo determinados test de coliformes en zonas posteriores a la filtración (Gómez *et al.*, 2006). Es por esta razón por la que, a pesar de que la UF fue empleada en toda la investigación, cabría la posibilidad de encontrar bacterias como *E. coli* en el agua de la red de distribución experimental (aunque no fue el caso).

Otro factor que podría haber influido en la aparición de *E. coli* en la RDE es la temperatura. Vital *et al.* (2012) observaron una competitividad mejorada de *E. coli* dentro de una comunidad bacteriana autóctona de agua potable con el aumento de temperatura (desde 12 hasta 30 °C) y un aumento en su tasa de crecimiento, y sin embargo en el presente estudio no se obtuvo recuento positivo alguno a pesar de que el agua alcanzó esas altas temperaturas durante los meses de verano.

También el cloro pudo ser otro factor relevante en la presencia o ausencia de esta bacteria coliforme, no tanto por la evolución del CRL, que se mantuvo muy constante al ser una variable controlada en el sistema, sino más bien por el nivel de CRL en sí. LeChevallier *et al.* (1996) informaron de un número sustancial de bacterias coliformes en sistemas de agua potable con un nivel de CRL < 0,2 mg/L (0,5 mg/L para sistemas cloraminados). Gillespie *et al.* (2014) afirmaron que un nivel más bajo de desinfectante aumentaba la probabilidad de encontrar coliformes o *E. coli* y encontraron que un nivel de CRL por debajo de los 0,5 mg/L estaba asociado un aumento sustancial del porcentaje de células bacterianas intactas en sistemas clorados. Sin embargo, en el presente estudio a pesar de que la concentración de CRL presentó una media en la fase evolutiva de $0,48 \pm 0,11$ mg/L (Tabla 15), no muy alta según valores referenciados, la ausencia de *E. coli* fue total, por lo que se considera que este nivel de CRL fue suficiente para evitar su aparición.

Por último, es importante destacar la bondad de las membranas de UF frente a la reducción de *E. coli* porque con ellas se reduce la probabilidad de que esta bacteria colonice la superficie de la RDAP y sobreviva dentro de la matriz de una biopelícula, con el riesgo sobre la salud pública que esto puede suponer, ya que se ha demostrado que *E. coli* es metabólicamente más activa en la biopelícula que su homóloga de vida libre (Williams y Braun-Howland, 2003).

4.1.7. Análisis de la evolución de la biopelícula

Las biopelículas en los sistemas de distribución son otro parámetro que afecta a la calidad del agua. Tanto es así que Gomes *et al.* (2016) enuncian que la biopelícula debe ser considerada como un contaminante crónico de las redes de distribución de agua potable. Por ello mensualmente se procedió a la inspección de la superficie interna de la tubería que conformó la RDE mediante SEM, tal y como se describe en el apartado 3.3.7, para observar los posibles depósitos de suciedad y biopelícula generada, así como el recuento de bacterias adheridas (RBA) a dicha superficie. Estos resultados se muestran por un lado en la Figura 41, donde se recopilaron las micrografías representativas de cada una de las muestras de tubería ordenadas cronológicamente; y por otro lado en la Figura 42, donde se representan los RBA medios mensuales durante la fase de estudio evolutivo.

Hay muchos y diversos factores que pueden influir en la formación de una biopelícula (véase apartado 1.3.3.1). Para conocer las influencias y correlaciones de las variables y parámetros aquí evaluados, se realizó el análisis estadístico recogido en el apartado 4.1.2. Pero en este caso particular del parámetro “biopelícula”, al disponer de un solo dato experimental mensualmente frente a uno diario en el resto de casos, la representatividad de éste en el RDA no puede considerarse muy significativa (nótese que la longitud del su vector es bastante escasa; Figura 21). Además, también es remarcable el hecho de que en la semana 38 del experimento tuviera que realizarse una limpieza química de la RDE (justificado más adelante), lo que sin duda afectó a la biopelícula y por lo que las correlaciones, calculadas tomando en cuenta la totalidad del periodo de estudio (Tabla 12), no representan el comportamiento de la biopelícula de manera fiable como sí lo harían de no haber hecho dicha limpieza química o de haber calculado las correlaciones considerando solamente el periodo anterior a ese momento. No obstante, para un estudio más reforzado estadísticamente hablando, se realizó el estudio individualizado de la biopelícula hasta el momento antes de la limpieza (apartado 4.4).

A pesar de que los análisis de redundancias y correlaciones no sean del todo útiles al abarcar globalmente todo periodo de la fase evolutiva, en este apartado se hace un análisis cualitativo y cuantitativo de la biopelícula, haciendo una descripción visual de las micrografías y calculando un modelo matemático que describa el comportamiento del RBA con el tiempo.

Para construir la Figura 41 se seleccionó una micrografía representativa de las 50 aproximadamente que se hicieron a cada fragmento muestra y se exponen por orden cronológico para ver la evolución mensual

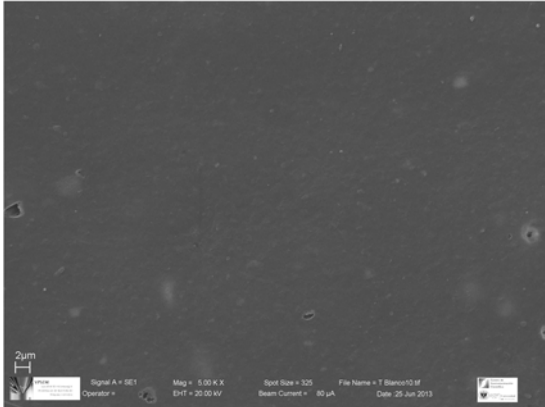
de la superficie de la tubería. En ellas se pudieron distinguir las distintas etapas descritas por Percival *et al.* (2010) en la formación de una biopelícula.

La primera imagen (Figura 41-A), considerada la muestra control o *blanco*, representa el estado inicial de la tubería donde no se apreció ningún tipo de suciedad y sólo ocasionalmente alguna bacteria adherida, ya que antes del comienzo del experimento se dejó circular agua limpia por su interior para el lavado previo de la misma.

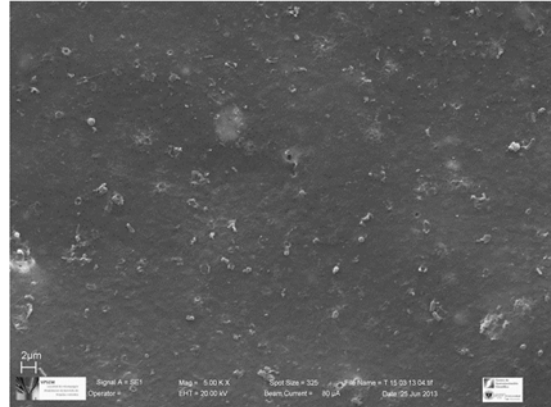
En los meses de marzo, abril y mayo del año 2013 (imágenes B, C y D) comenzaron a distinguirse algunas acumulaciones de depósitos sobre la conducción que de forma progresiva iban cubriendo la totalidad de la superficie. Un análisis químico de estos depósitos reveló que su principal componente era carbono, lo que desvela el origen orgánico de los mismos. Este ensuciamiento progresivo por depósitos de materia orgánica pudo estar justificado por la calidad media-baja que presentó el agua de entrada a la RDE, con una concentración media de $4,60 \pm 1,74$ mgCOD/L (Tabla 18), debido principalmente a la baja eficiencia de las membranas de ultrafiltración en retención de materia orgánica disuelta y a pesar de que estas imágenes ya se corresponden con la mejora que supuso el pretratamiento de CF en este aspecto. Si se tiene en cuenta que el 20-30 % del COD es biodegradable (Sibille, 1998) y que éste es el nutriente principal en la formación de biopelículas en agua potable (Park y Hu, 2010), se puede pensar que ya se estaban propiciando las condiciones para la formación de una biopelícula. Tal vez pudo haber influido también en esta acumulación de depósitos los restos de hierro residual usado como coagulante de la etapa CF+UF que lograron pasar la filtración, hecho confirmado por análisis químico en investigaciones previas (Rojas-Serrano *et al.*, 2015c), al igual que sucedió en el estudio de Zhang *et al.* (2016), donde comprobaron que el aluminio residual formaba depósitos en la RDAP e influía significativamente en la calidad del agua de grifo.

Gracias a estos primeros depósitos, que supusieron el acondicionamiento de la superficie, algunas bacterias comenzaron a colonizar distintos puntos de la tubería como se detectó en el mes de mayo (Figura 41-D). Estas bacterias pioneras tenían forma de bastones (bacilos), de dimensiones homogéneas y se disponían de forma muy disgregada sobre la superficie.

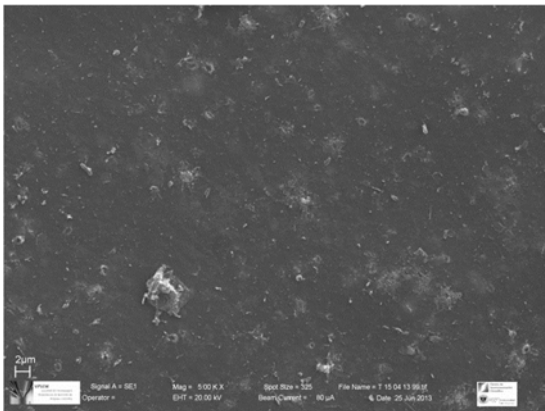
A. Febrero '13 (blanco)



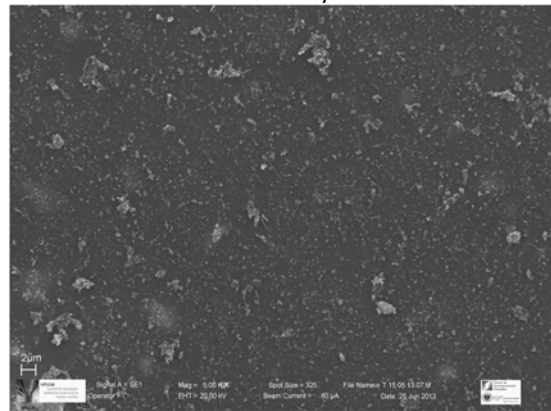
B. Marzo '13



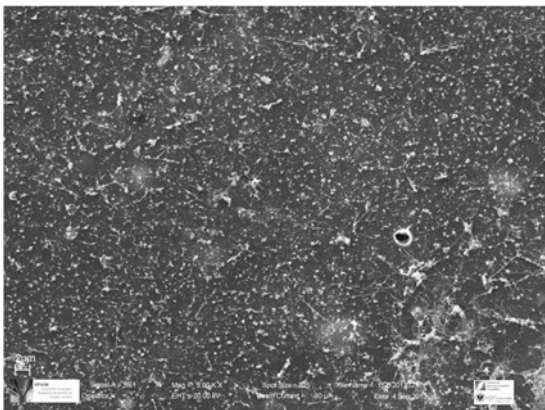
C. Abril '13



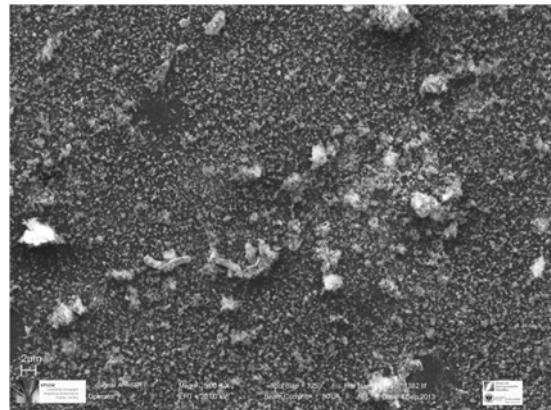
D. Mayo '13



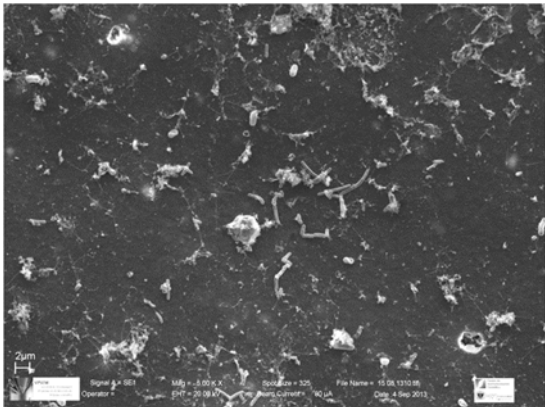
E. Junio '13



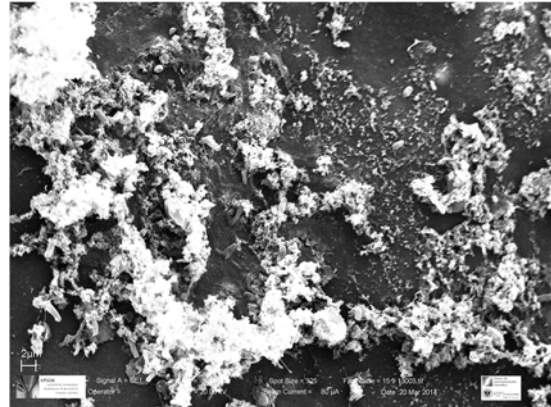
F. Julio '13



G. Agosto '13



H. Septiembre '13



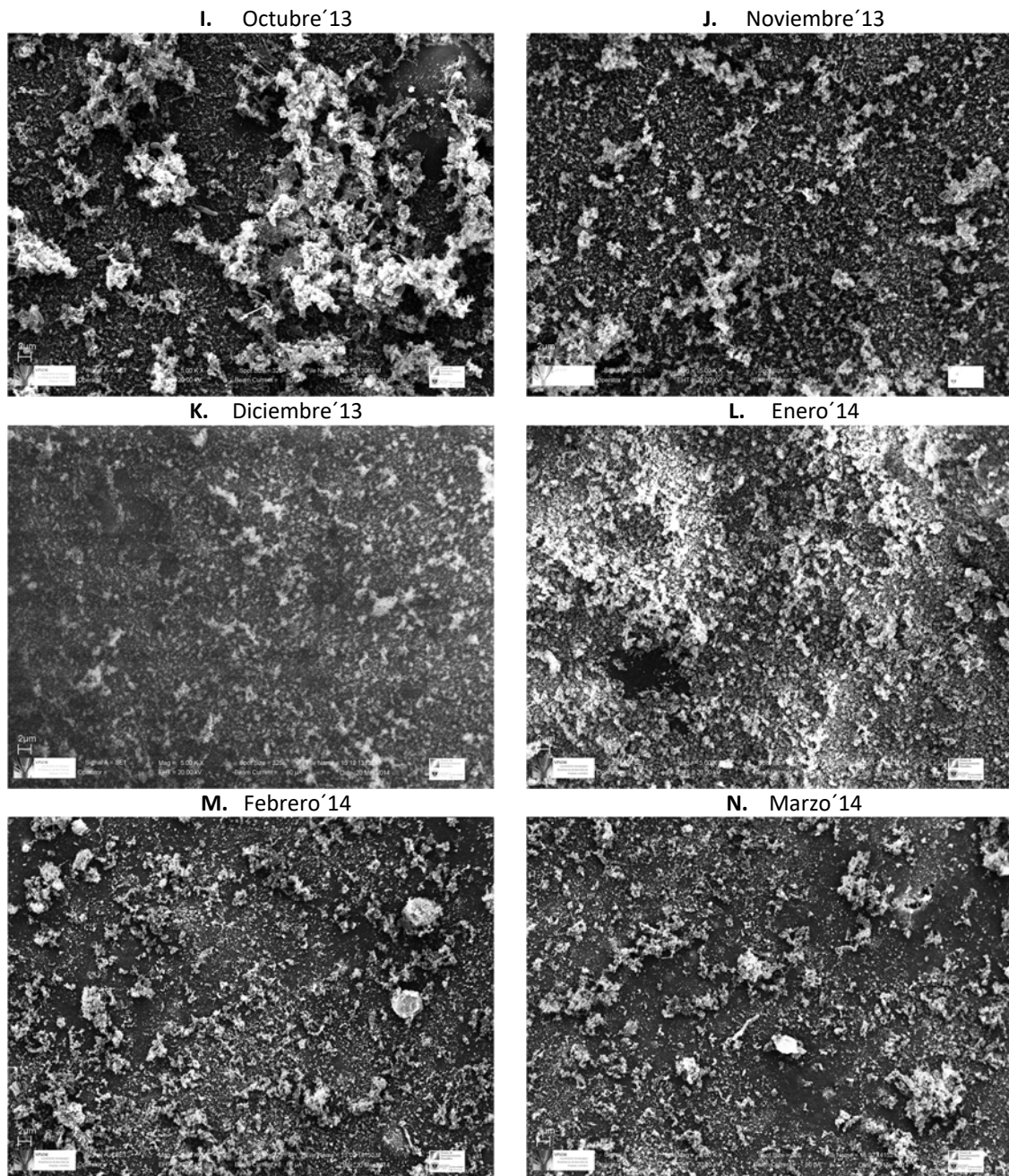


Figura 41. Micrografías SEM de la superficie interna de la tubería que conforma la RDE representativas de cada mes de la fase de estudio evolutivo.

En las imágenes posteriores (E, F y G), aún correspondientes a la etapa de CF+UF, puede observarse que conforme transcurría el tiempo el número de bacterias adheridas a la superficie era cada vez mayor. La morfología de todas las bacterias era tipo bacilo y de dimensiones algo más variadas. Ya en la imagen G pueden apreciarse ciertas agrupaciones de ellas, incluso divisiones bacterianas. También en algunas micrografías se visualizaron desarrollos de estructuras como fimbrias o pili, lo que hace de medio de sujeción de las bacterias hacia la superficie, y que podría considerarse como una fase temprana de una biopelícula

todavía en fase reversible (de la Rúa *et al.*, 2008). Estas tres imágenes se corresponden con los meses de verano (junio, julio y agosto de 2013) donde se alcanzaron las temperaturas más altas del estudio, variable que suele estar estrechamente relacionada con la biopelícula en los sistemas de distribución (Lund y Ormerod, 1995). El coeficiente de correlación de Pearson de la temperatura con la biopelícula fue de 0,601 (Tabla 12), lo que indicaría la existencia de una correlación considerable entre ellas. Pero esta correlación debe tratarse con cautela por dos motivos: (i) tal coeficiente de correlación fue calculado considerando la totalidad del ensayo, cuando no puede obviarse que la supercloración realizada hacia la mitad del experimento provocó una perturbación contundente en el desarrollo normal de la biopelícula; (ii) el tiempo de operación también pudo ser un factor determinante en la formación de esta biopelícula que, al coincidir con la época estival, pudo enmascarar el efecto. Es decir, tal vez los 5 meses de operación fueron suficientes para que se formara igualmente una biopelícula incluso si hubieran transcurrido en los meses de invierno. Tanto es así que, en las siguientes imágenes correspondientes a septiembre y octubre, la biopelícula siguió en esa tendencia de crecimiento a pesar del descenso de las temperaturas. A este respecto, un estudio de de la Rúa *et al.* (2008) confirmaron que la colonización de la superficie por parte de las bacterias tuvo lugar independientemente de la temperatura, aunque es cierto que a temperaturas más bajas (5 y 10 °C) la formación de biopelícula se vio ralentizada con respecto a las más altas (20 y 30 °C).

En el mes de septiembre (Figura 41-H) ya se pudo ver una abundancia de microorganismos colonizando toda la superficie, una considerable acumulación de depósitos y suciedad que servirían de nutrientes para la reproducción microbiana, y una gran cantidad de sustancias poliméricas extracelulares (EPS) producidas por las propias bacterias, lo que proporciona un mecanismo de estabilidad para la biopelícula (Fish *et al.*, 2016). Todo ello conformaba lo que ya sí puede considerarse una biopelícula en estado irreversible y se fue desarrollando hasta alcanzar su madurez (imagen I). Hay que recordar que cuando se tomaron estas dos muestras (H e I) la planta de tratamiento ya estaba en etapa de PARADA (aunque la RDE nunca estuvo en estado estacionario), y a pesar de que la entrada de nuevos nutrientes ya era mucho más limitada, no fue impedimento para el recrecimiento bacteriano en el interior de la tubería. También conviene recordar aquí que las cifras más altas de RC_{22} se dieron en este mes de octubre (Figura 40) y, aunque en este caso de la biopelícula haya que tratar las correlaciones con más cautela que en el resto de casos, es interesante señalar que este parámetro fue el que guardó la mayor correlación de todas ($r_{\text{Biopelícula-}RC_{22}} = 0,704$; Tabla 12). Esto demuestra cómo los procesos biológicos pueden contribuir al empeoramiento de la calidad microbiológica del agua durante su distribución tanto por la presencia de biopelículas como por células planctónicas (Liu *et al.*, 2013b), y aunque en este caso la cloración sirvió para mantener una buena calidad y estabilidad microbiológica del agua potable, no pudo evitar la proliferación de desarrollos biológicos como también

advirtió Sibille (1998). También otros autores han señalado que las concentraciones de desinfectantes usadas en sistemas de distribución de agua potable no evitan el desarrollo de biopelículas (Wang *et al.*, 2014; Revetta *et al.*, 2013; LeChevallier *et al.*, 1987).

En las imágenes de la Figura 41-H ya era prácticamente imposible hacer el recuento visual de bacterias sobre la superficie de la tubería con el microscopio porque la cantidad de EPS y demás sustancias depositadas ocultaban muchas bacterias, por lo que se tomó la decisión de realizar una limpieza química del interior de la red mediante supercloración (1000 mgNaClO/L). En un estudio realizado recientemente por Gomes *et al.* (2016) sobre el efecto del NaClO sobre algunas especies bacterianas, se informa que el número de ufc de una biopelícula formada sobre PVC se ve significativamente reducido con una concentración de 0,5 mgNaClO/L y que con 125-175 mgNaClO/L (según la especie) la reducción es completa. Por tanto, con una limpieza de choque de casi 10 veces estas concentraciones, es normal que la biopelícula madura desapareciera como se observa en la Figura 41-J, aunque sí aparecieron nuevamente algunos depósitos de suciedad en la conducción pero de una forma más disgregada que en meses anteriores. Podría pensarse que estos depósitos fueran restos de la biopelícula anterior o incluso productos generados por la degradación oxidativa sufrida por el polietileno de la tubería (Mitroka *et al.*, 2013), pero ambos hechos son descartables porque tras la adición del desinfectante se hizo pasar agua limpia por la red (sin recircular) para arrastrar y desechar cualquier residuo, evitando así acumulaciones de materia indeseada.

A pesar de que esta materia fragmentada pudiera permitir de alguna manera la recolonización de la superficie por parte de algunas de las bacterias planctónicas del agua, la Figura 41-K muestra que no fue así. De hecho, en ninguna de las micrografías de esta muestra de tubería se encontró ni una sola bacteria adherida a la superficie, dificultando incluso el buen enfoque de las imágenes con el microscopio electrónico. Esta ausencia de bacterias en la superficie de la conducción durante los dos meses posteriores a la limpieza de la RDE (noviembre y diciembre) pudo deberse fundamentalmente a la ausencia de bacterias en el agua (recordemos que el RC_{22} fue prácticamente nulo de manera prolongada tras la supercloración; Figura 40). En este punto llama la atención que los dos primeros meses del estudio evolutivo, correspondientes a la etapa de UF, fueron suficientes para apreciar cierto RBA a pesar de que el RC_{22} fue nulo casi siempre. Y sin embargo, en los dos meses tras la supercloración, correspondientes a la etapa de PARADA, no se detectaron bacterias adheridas a la superficie (RBA nulos) en esas mismas condiciones de RC_{22} . La explicación de esta diferencia de comportamiento se encuentra en cómo afecta el modo de operación en una etapa y en otra: en la etapa de PARADA, al no haber producción de permeado, la variación de flujo en los tanques de permeado y cloración era mínima, lo que hacía que las bacterias presentes en estos depósitos sin esterilidad apenas pasaran a la RDE para colonizar la tubería y el CRL fue suficiente para evitar cualquier rebrote bacteriano; sin

embargo, las variaciones de flujo en la etapa de UF eran mayores porque sí se producía permeado y estas fluctuaciones podían hacer que las bacterias de los depósitos fueran arrastradas hacia el interior de la RDE y adhiriéndose a las paredes de la tubería.

Las imágenes posteriores (Figura 41-L, M y N), correspondientes a la etapa de O₃+UF, muestran que los depósitos de materia orgánica siguieron cubriendo la superficie distribuyéndose de una manera disgregada y tampoco se detectó presencia de bacterias adheridas salvo alguna excepción. Escobar y Randall (2001b) comprobaron cómo al introducir una etapa de ozonización en una planta de tratamiento de agua que ya disponía de una cloración, el carbono orgánico asimilable (AOC) y el disuelto biodegradable (BDOC) aumentaban significativamente debido a que el oxidante añadido hizo que los compuestos orgánicos se descompusieran en otros más asimilables por los microorganismos. De igual manera, Lund y Ormerod (1995) comentaron que el agua ozonizada aumentaba el contenido de moléculas orgánicas fácilmente degradables y con ello la cantidad de bacterias. Y otro aspecto contemplado por Holden *et al.* (1995) fue el de la corrosión, concluyendo que la implantación de la ozonización previa a la cloración tuvo un efecto sobre la corrosión y el crecimiento de la biopelícula en la distribución. Si todos estos estudios se trasladan al presente trabajo, cabría pensar que la ozonización favorecería la nutrición y proliferación bacteriana en la superficie de la tubería, pero la realidad es que no fue así (Figura 41 L, M y N). Esto hace pensar que el comportamiento en esta última etapa estuvo marcado probablemente por el efecto del ozono residual en el agua de la RDE, que más que actuar como oxidante de la materia orgánica (que sí explicaría la distribución disgregada de los depósitos), desempeñó más un papel biocida, impidiendo la supervivencia microbiana y el desarrollo de biopelícula en un tiempo que anteriormente había sido suficiente para la generación de la misma.

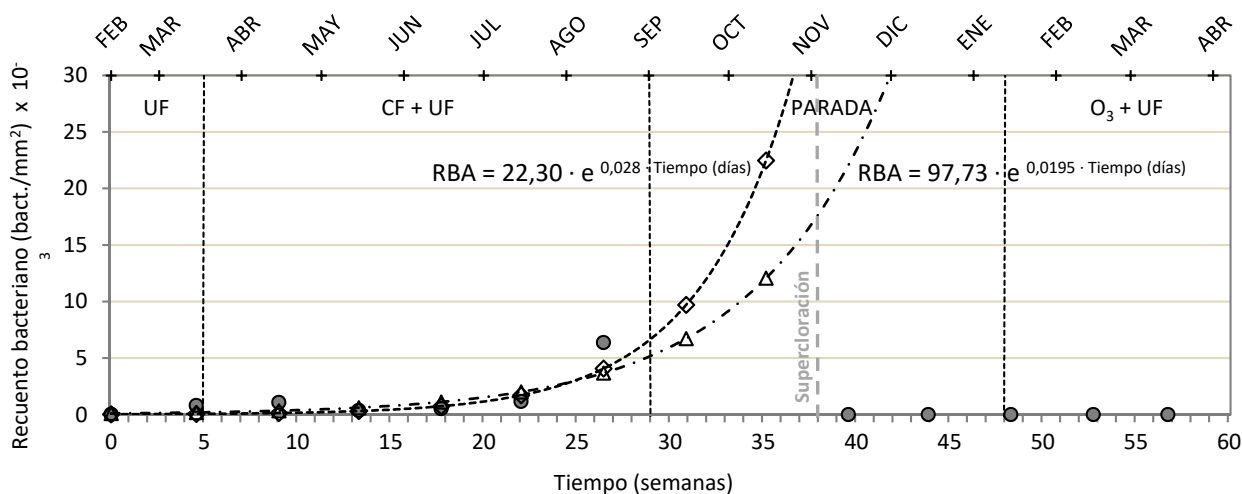


Figura 42. Evolución del recuento de bacterias adheridas a la superficie de la RDE (●) durante la fase de estudio evolutivo y representación de los modelos de ajuste del crecimiento bacteriano en biopelícula con el tiempo (Δ ec. [3] y ◇ ec. [4]).

En la Figura 42 se han representado los valores medios de los recuentos de bacterias adheridas a la superficie de la tubería para cada uno de los fragmentos de ésta tomados durante el estudio evolutivo. Nótese que en las semanas 30 y 35, correspondientes a los meses de septiembre y octubre, no se muestran los valores reales sino unos valores estimados, ya que el recuento real resultaba subestimado debido a la enorme cantidad de depósitos, EPS y demás elementos de la biopelícula desarrollada que imposibilitaban la correcta visualización de todas las bacterias (Figura 41-H e I). Estos dos valores fueron estimados entonces haciendo uso de la ecuación de ajuste exponencial [3] obtenida a partir de los RBA reales comprendidos desde el inicio del experimento (semana 0) hasta el último recuento correctamente visible (semana 26). En estas semanas ya puede verse en la gráfica cómo el RBA fue creciendo progresiva y exponencialmente desde un recuento inicial de 25 bacterias/mm² en la muestra control hasta un máximo de 6373 bacterias/mm² en la semana 26, coincidente este último con el mes donde se alcanzaron las máximas temperaturas en el agua.

Si se observa la representación de esta ecuación en la Figura 42, en las semanas 4 y 9 se aprecian las mayores desviaciones del RBA real con respecto al ajuste. Estas desviaciones son típicas a pequeña escala, no siendo significativas en el orden de magnitud en el que se mueve este parámetro pero sí influyentes en la bondad del cálculo de la ecuación que estima el crecimiento bacteriano en la biopelícula. Por este motivo se calculó una nueva ecuación de ajuste (ec. [4]) descartando aquellos valores de RBA que presentaran una desviación o error (ϵ) mayor al 75 % (ϵ definido como la diferencia entre el RBA real y el RBA estimado mediante la ec. [3]), que fueron precisamente los valores correspondientes a las semanas 4 y 9 antes señaladas.

$$\text{RBA (bacterias/mm}^2\text{)} = 97,73 \cdot e^{0,0195 \cdot \text{Tiempo (días)}} ; R^2 = 0,5954 \quad [3]$$

$$\text{RBA (bacterias/mm}^2\text{)} = 22,30 \cdot e^{0,028 \cdot \text{Tiempo (días)}} ; R^2 = 0,9691 \quad [4]$$

Si el mejor modelo matemático se elige bajo el criterio del coeficiente de correlación, es obvio que la ec. [4] es la seleccionada porque tiene una bondad de ajuste del 97% frente al 60% de la ec. [3]. Pero existe otro criterio importante que reforzaría aún más esta elección y es el de la tendencia evolutiva más lógica, que es sabido que en una biopelícula es la del recrecimiento bacteriano. Pues si se observa en la Figura 42 lo que sucede tras la semana 26 (cuando los recuentos ya no eran visibles), se ve como en la siguiente muestra (semana 31) el valor de RBA estimado por la ec. [3] es prácticamente igual que en el mes anterior, mientras que el RBA estimado por la ec. [4] es mayor y guarda esa tendencia al alza que define el crecimiento bacteriano en una biopelícula. Por tanto, aunando criterios, se puede decir que el crecimiento bacteriano en

la biopelícula del estudio evolutivo siguió la ecuación $RBA = 22,30 \cdot e^{0,028 \cdot \text{Tiempo}}$, donde el RBA se expresó en unidades de bacterias/mm² de superficie y el tiempo en días.

Lehtola *et al.* (2004) realizaron una investigación en la que también evaluaron el desarrollo de biopelícula en dos redes distribución en paralelo a escala piloto, una de cobre y otra de polietileno, formadas por 2 bucles de 100 m cada una. Por un lado, evidenciaron que la biopelícula se formó con mayor rapidez en la red plástica en comparación con la de cobre, aspecto que pudo haber influido en la formación de biopelícula en nuestro estudio al tratarse del mismo material plástico. Pero además el RBA obtenido en su red de polietileno fue muy superior que en nuestro caso, obteniendo ellos un recuento próximo a las 700000 bacterias/cm² en tan sólo 37 días, mientras que en nuestra RDE se alcanzó una cifra similar (637300 bacterias/cm²) a los 186 días. Esta diferencia cuantitativa en el recuento bacteriano reflejaría una gran ventaja del tratamiento de ultrafiltración (el aquí empleado) frente a los sistemas convencionales de tratamiento (usado en el citado estudio).

Tras la limpieza química en la semana 38 del estudio, la biopelícula se destruyó como se ha visto en la Figura 41-J y desde entonces el recuento se mantuvo nulo hasta el final del estudio evolutivo (Figura 42). Este hecho tiene su explicación en las condiciones nada favorables para la formación de una biopelícula que se dieron tras esa semana, y que como se han detallado más anteriormente fueron: (i) el nulo RC₂₂ en el agua de la RDE durante este periodo final; (ii) la no producción de permeado en la etapa de PARADA que no favoreció el arrastre de bacterias desde la zona post-membrana hacia el interior de la RDE para que colonizaran la tubería (iii) y el ozono residual en el agua de la RDE durante la última etapa (O₃+UF), que se presume que actuó de biocida. El conjunto de estos factores es lo que protegió la conducción de posibles desarrollos biológicos en un intervalo de tiempo suficientemente prolongado como para que se hubiera formado una nueva biopelícula.

4.2. ANÁLISIS DE LA INFLUENCIA DEL TRATAMIENTO EN LA VARIACIÓN DE LA CALIDAD DEL AGUA EN LA RED DE DISTRIBUCIÓN

Con el objetivo de conocer la influencia del tipo de tratamiento de potabilización sobre los distintos parámetros que definen el agua de consumo en una red de distribución, en esta parte del estudio se comparan los resultados obtenidos en tres redes de distribución distintas (RDE1, RDE2 y RDE3) sometidas cada una de ellas a un tratamiento de potabilización diferente (CF+UF, O₃+UF y UF respectivamente), tal y como se indicó en la Figura 17, durante un tiempo de operación de 24, 30 y 19 semanas respectivamente. Estas 3 fases tuvieron en común una ultrafiltración como etapa final del tratamiento seguida de post-cloración, por lo que se espera que la calidad del agua potable sea media-baja en lo que respecta al contenido

en materia orgánica disuelta pero muy buena en calidad microbiológica, como así sucedió en el estudio evolutivo o fase 0.

4.2.1. Estudio estadístico previo

Aplicando el método de depuración de datos descrito en el apartado 3.4.2 se obtuvieron los estadísticos descriptivos obtenidos en cada fase del este estudio comparativo (Tabla 24, Tabla 25 y Tabla 26) clasificados en tres bloques según la situación definida por los valores atípicos detectados. Hay que mencionar que este método de depuración de datos no se aplicó para los parámetros RC₂₂, THMs y AHAs, puesto que por su idiosincrasia son parámetros que pueden alcanzar valores muy dispares y no por ello desechables, admitiendo por tanto como válido cualquier valor obtenido en su análisis. Así mismo, el parámetro “biopelícula” (cuantificado como RBA) no se muestra en las tablas porque por lo general sigue una progresión de crecimiento continuo y no tiene sentido calcular su media ni mucho menos descartar ningún valor por su desviación respecto a ella.

Tabla 24. Estadísticos descriptivos de los parámetros y variables de la Fase I para las opciones A (sin excluir valores atípicos), B (excluyendo valores atípicos extremos) y C (excluyendo valores atípicos leves y extremos).

	T ^a _{EF}	pH _{EF}	CRL _{EF}	TURB _{INF}	TURB _{EF}	COT _{INF}	COT _{EF}	COD _{INF}	COD _{EF}	UV254 _{INF}	UV254 _{EF}	RC22 _{EF}	THM _{EF}	AHA _{EF}	
A	\bar{X}	22,54	7,54	0,47	1,46	1,52	4,74	5,50	4,41	5,24	3,56	5,43	0,26	5,28	12,46
	\tilde{Y}	23,39	7,51	0,45	1,42	1,44	4,53	4,21	4,05	4,10	3,00	2,75	0,01	0,00	7,77
	σ	6,04	0,66	0,11	0,39	0,60	2,25	3,29	2,07	3,07	3,70	6,29	0,66	10,23	12,30
	σ^2	36,42	0,44	0,01	0,15	0,36	5,06	10,85	4,29	9,45	13,67	39,51	0,43	104,73	151,33
B	\bar{X}	22,54	7,54	0,47	1,44	1,52	4,74	5,50	4,41	5,24	2,87	4,41	-	-	-
	\tilde{Y}	23,39	7,51	0,45	1,41	1,44	4,53	4,21	4,05	4,10	2,80	2,70	-	-	-
	σ	6,04	0,66	0,08	0,34	0,60	2,25	3,29	2,07	3,07	1,64	4,46	-	-	-
	σ^2	36,42	0,44	0,01	0,11	0,36	5,06	10,85	4,29	9,45	2,70	19,86	-	-	-
C	\bar{X}	22,54	7,54	0,46	1,42	1,48	4,42	5,13	4,10	4,89	2,68	2,93	-	-	-
	\tilde{Y}	23,39	7,51	0,45	1,40	1,43	4,42	4,14	3,93	3,95	2,80	2,50	-	-	-
	σ	6,04	0,66	0,06	0,32	0,55	1,77	2,71	1,57	2,49	1,31	1,86	-	-	-
	σ^2	36,42	0,44	0,00	0,10	0,30	3,14	7,34	2,46	6,22	1,72	3,47	-	-	-

Nomenclatura: \bar{X} = media, \tilde{Y} = mediana, σ = desviación estándar, σ^2 = varianza, ■ Valor diferente al obtenido en la opción A.

En la fase I no se detectó ningún valor atípico en las variables temperatura y pH, pero sí en el resto de variables y parámetros, aunque en la mayoría fueron VA leves (de ahí que la opción C sea la que presente una mayor variabilidad con respecto a la opción A en los valores de los distintos estadísticos descriptivos). Los VA más destacados se dieron en TURB_{INF}, UV254_{INF} y UV254_{EF}, pero tras analizar que la ocurrencia de estos valores atípicos no se debió a ningún fallo humano ni de medición analítica, se decidió no descartarlos para mantener la representatividad real del sistema experimental. Además, esos valores atípicos no se daban de manera aislada sino que sucedían durante varios días consecutivos por motivos de parada y arranque de

la instalación experimental. Esto hace que la exclusión de los VA extremos apenas varíe la mediana pero sí la media (comparación entre opciones A y B de la Tabla 24), lo que refuerza la decisión de tomar como base de datos final la formada por la opción A (sin exclusión de valores atípicos extremos ni leves).

Tabla 25. Estadísticos descriptivos de los parámetros y variables de la Fase II para las opciones A (sin excluir valores atípicos), B (excluyendo valores atípicos extremos) y C (excluyendo valores atípicos leves y extremos).

	T ^a _{EF}	pH _{EF}	CRL _{EF}	TURB _{INF}	TURB _{EF}	COT _{INF}	COT _{EF}	COD _{INF}	COD _{EF}	UV254 _{INF}	UV254 _{EF}	RC22 _{EF}	THM _{EF}	AHA _{EF}	
A	\bar{X}	24,29	7,19	0,43	1,79	2,11	5,14	4,74	4,57	4,53	6,42	5,45	0,24	177,68	85,04
	\tilde{Y}	24,35	7,37	0,42	1,62	1,96	4,17	4,47	4,10	4,31	6,20	5,20	0,07	95,60	49,20
	σ	3,95	0,87	0,12	0,84	0,71	2,89	1,58	2,32	1,46	2,04	1,78	0,40	219,00	92,15
	σ^2	15,56	0,76	0,02	0,70	0,51	8,33	2,49	5,40	2,12	4,16	3,16	0,16	47959,48	8491,24
B	\bar{X}	24,29	7,19	0,43	1,69	2,02	5,14	4,74	4,57	4,53	6,42	5,43	-	-	-
	\tilde{Y}	24,35	7,37	0,43	1,62	1,96	4,17	4,47	4,10	4,31	6,20	5,20	-	-	-
	σ	3,95	0,87	0,04	0,39	0,51	2,89	1,58	2,32	1,46	2,04	1,76	-	-	-
	σ^2	15,56	0,76	0,00	0,16	0,26	8,33	2,49	5,40	2,12	4,16	3,08	-	-	-
C	\bar{X}	24,29	7,19	0,43	1,65	1,99	4,75	4,64	4,37	4,53	6,35	5,35	-	-	-
	\tilde{Y}	24,35	7,37	0,43	1,60	1,93	4,11	4,46	3,99	4,31	6,20	5,10	-	-	-
	σ	3,95	0,87	0,03	0,36	0,47	2,32	1,42	1,95	1,46	1,93	1,64	-	-	-
	σ^2	15,56	0,76	0,00	0,13	0,22	5,40	2,01	3,79	2,12	3,74	2,70	-	-	-

Nomenclatura: \bar{X} = media, \tilde{Y} = mediana, σ = desviación estándar, σ^2 = varianza, ■ Valor diferente al obtenido en la opción A.

En la fase II tampoco se detectaron valores atípicos en la temperatura y el pH, aunque sí en el resto de variables y parámetros. Como se observa en la Tabla 25 si se comparan las opciones A y B (sin y con exclusión de VA extremos), en el caso de TURB_{INF}, TURB_{EF}, y UV254_{EF} el valor de la mediana permanece inalterado al eliminar los VA extremos aunque no la media, lo que indica que los VA detectados son muy aislados y dispersos, por lo que bajo el criterio de no distorsión de los resultados, se decidió adoptar la opción B como base de datos final. La opción C se descartó, puesto que la eliminación de todos los VA leves (que fueron numerosos en cuantía) provoca una alteración más severa de la realidad experimental, afectando tanto a medias como a medianas, y además no fueron VA producidos por ninguna anomalía o fallo del sistema que obligara a descartarlos.

Al igual que en las dos fases anteriores, el método de depuración de datos no detectó ningún valor atípico en las variables temperatura y pH, lo que en parte corrobora el correcto funcionamiento de las sondas de medida. Sin embargo, en esta fase sí se detectaron algunos VA en los parámetros referentes al CO, tanto extremos como leves (Tabla 26). Al analizar el número de casos detectados como valores atípicos, así como la causalidad de los mismos, se tomó la decisión de que la base de datos final fuera la formada por la opción B (eliminando solamente los VA extremos). Además se tuvo en cuenta que esta base de datos no distorsionaba los resultados con respecto a la opción inicial A (como sí lo hacía en mayor medida la opción

C), y que los valores de las medianas se mantenían prácticamente iguales en la mayoría de parámetros y desviaciones de centésimas en los valores medios (Tabla 26), comprobando la poca representatividad que ejercían esos VA extremos detectados y concluyendo por tanto en su exclusión como mejor opción.

Tabla 26. Estadísticos descriptivos de los parámetros y variables de la Fase III para las opciones A (sin excluir valores atípicos), B (excluyendo valores atípicos extremos) y C (excluyendo valores atípicos leves y extremos).

	T ^a _{EF}	pH _{EF}	CRL _{EF}	TURB _{INF}	TURB _{EF}	COT _{INF}	COT _{EF}	COD _{INF}	COD _{EF}	UV254 _{INF}	UV254 _{EF}	RC22 _{EF}	THM _{EF}	AHA _{EF}	
A	\bar{X}	12,84	8,14	0,41	1,48	1,55	6,38	7,19	6,14	7,02	10,20	10,23	0,06	78,95	81,36
	\tilde{Y}	12,30	8,08	0,41	1,42	1,51	6,31	7,25	6,24	7,22	10,50	9,80	0,01	86,20	50,50
	σ	2,79	0,21	0,03	0,38	0,31	1,70	1,78	1,51	1,61	2,66	3,62	0,12	44,88	68,64
	σ^2	7,77	0,04	0,00	0,14	0,10	2,89	3,18	2,27	2,60	7,09	13,11	0,01	2014,23	4711,51
B	\bar{X}	12,84	8,14	0,42	1,48	1,55	6,42	7,17	6,17	7,00	10,20	9,95	-	-	-
	\tilde{Y}	12,30	8,08	0,41	1,42	1,51	6,31	7,22	6,24	7,16	10,50	9,80	-	-	-
	σ	2,79	0,21	0,02	0,38	0,31	1,66	1,78	1,47	1,61	2,66	2,89	-	-	-
	σ^2	7,77	0,04	0,00	0,14	0,10	2,76	3,17	2,17	2,58	7,09	8,35	-	-	-
C	\bar{X}	12,84	8,14	0,42	1,44	1,55	6,22	7,10	6,09	7,00	10,32	9,80	-	-	-
	\tilde{Y}	12,30	8,07	0,41	1,42	1,51	6,26	7,19	6,20	7,16	10,55	9,70	-	-	-
	σ	2,79	0,21	0,02	0,32	0,31	1,39	1,69	1,33	1,61	2,48	2,34	-	-	-
	σ^2	7,77	0,04	0,00	0,10	0,10	1,92	2,84	1,78	2,58	6,16	5,46	-	-	-

Nomenclatura: \bar{X} = media, \tilde{Y} = mediana, σ = desviación estándar, σ^2 = varianza, ■ Valor diferente al obtenido en la opción A.

4.2.2. Análisis estadístico complementario

En este epígrafe se recogen todos aquellos resultados de los diferentes análisis estadísticos que han sido necesarios para la posterior discusión del estudio comparativo: resumen de los valores medios de los parámetros que definieron la calidad del agua (Tabla 27), coeficientes de correlación de Pearson de la base de datos global y por fases (Tabla 28, Tabla 29, Tabla 30 y Tabla 31) y RDAs de estos sistemas (Figura 43, Figura 44, Figura 45 y Figura 46).

Tabla 27: Resumen de las propiedades físico-químicas y microbiológicas del INF y EF de la RDE del estudio comparativo.

Parámetro	CF+UF	O ₃ +UF	UF
Temperatura _{RDE} (°C)	22,54 ± 6,04 ^a	24,29 ± 3,95 ^b	12,84 ± 2,79 ^c
pH _{RDE}	7,54 ± 0,66 ^a	7,19 ± 0,87 ^b	8,14 ± 0,21 ^c
CRL _{RDE} (mg/L)	0,47 ± 0,11 ^a	0,43 ± 0,04 ^b	0,42 ± 0,02 ^c
Turbidez _{INF} (UNT)	1,46 ± 0,39 ^a	1,69 ± 0,39 ^b	1,48 ± 0,38 ^a
Turbidez _{EF} (UNT)	1,52 ± 0,60 ^a	2,02 ± 0,51 ^b	1,55 ± 0,31 ^a
ΔTurbidez (%)	0,16 ± 0,50 ^{a,b}	0,32 ± 0,54 ^a	0,08 ± 0,38 ^b
COT _{INF} (mg/L)	4,74 ± 2,25 ^a	5,14 ± 2,89 ^a	6,42 ± 1,66 ^b
COT _{EF} (mg/L)	5,50 ± 3,30 ^a	4,74 ± 1,58 ^b	7,17 ± 1,78 ^c
ΔCOT (%)	0,12 ± 1,18 ^a	-0,70 ± 2,85 ^b	0,75 ± 0,85 ^a
COD _{INF} (mg/L)	4,41 ± 2,07 ^a	4,57 ± 2,32 ^a	6,17 ± 1,47 ^b
COD _{EF} (mg/L)	5,24 ± 3,07 ^a	4,53 ± 1,46 ^b	7,00 ± 1,61 ^c
ΔCOD (%)	0,36 ± 1,28 ^a	-0,30 ± 2,09 ^b	0,83 ± 0,85 ^a
UV ₂₅₄ _{INF} (m ⁻¹)	3,56 ± 3,70 ^a	6,42 ± 2,04 ^b	10,20 ± 2,66 ^c
UV ₂₅₄ _{EF} (m ⁻¹)	5,43 ± 6,29 ^a	5,43 ± 1,76 ^a	9,95 ± 2,89 ^b
ΔUV ₂₅₄ (%)	0,39 ± 1,15 ^a	-0,89 ± 1,46 ^b	-0,25 ± 2,24 ^c
SUVA _{INF} (L/mg-m)	0,72 ± 0,33 ^a	1,69 ± 0,77 ^b	1,70 ± 0,46 ^b
SUVA _{EF} (L/mg-m)	0,88 ± 0,60 ^a	1,29 ± 0,50 ^b	1,45 ± 0,39 ^c
ΔSUVA (%)	0,03 ± 0,20 ^a	-0,33 ± 0,53 ^b	-0,25 ± 0,28 ^b
ΣTHM _{EF} (μg/L)	5,28 ± 10,23 ^a	177,68 ± 219,00 ^b	78,95 ± 44,88 ^c
ΣAHA _{EF} (μg/L)	12,46 ± 12,30 ^a	85,04 ± 92,15 ^b	75,22 ± 69,41 ^b
RC ₂₂ _{EF} (ufc/mL)	0,26 ± 0,66 ^a	0,24 ± 0,40 ^a	0,06 ± 0,12 ^b
<i>E. coli</i> _{EF} (ufc/100mL)	0,00 ± 0,00 ^a	0,00 ± 0,00 ^a	0,00 ± 0,00 ^a

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos de cada variable o parámetro por el método SNK con un nivel de significación de 0,05.

Tabla 28. Matriz de coeficientes de correlación de Pearson (r) de todos los parámetros y variables del estudio comparativo global.

	Trat.	T ^a _{EF}	pH _{EF}	CRL _{EF}	TURB _{INF}	TURB _{EF}	COD _{INF}	COD _{EF}	UV _{254INF}	UV _{254EF}	SUVA _{INF}	SUVA _{EF}	RC ₂₂	THM _{EF}	AHA _{EF}	Biop.
Trat.	1	-,472	,283	-,316	,002	,088	,326	,242	,682	,342	,503	,413	-,151	,102	,210	-,374
T ^a _{EF}	-,472	1	-,659	,238	,247	,336	-,395	-,441	-,533	-,487	-,106	-,253	-,280	-,215	-,148	,289
pH _{EF}	,283	-,659	1	-,175	-,315	-,408	,549	,474	,363	,449	-,099	,178	-,095	-,371	-,040	,019
CRL _{EF}	-,316	,238	-,175	1	,049	,046	-,132	-,167	-,317	-,298	-,317	-,331	,097	-,045	-,106	-,140
TURB _{INF}	,002	,247	-,315	,049	1	,423	-,130	-,131	-,098	-,165	,045	-,065	-,016	,174	-,029	,296
TURB _{EF}	,088	,336	-,408	,046	,423	1	-,158	-,269	-,123	-,284	,075	-,081	,256	,277	,164	,651
COD _{INF}	,326	-,395	,549	-,132	-,130	-,158	1	,721	,536	,525	-,220	,024	-,041	-,195	,185	-,279
COD _{EF}	,242	-,441	,474	-,167	-,131	-,269	,721	1	,590	,721	-,024	,166	-,200	-,174	,166	-,178
UV _{254INF}	,682	-,533	,363	-,317	-,098	-,123	,536	,590	1	,895	,615	,656	-,237	,025	,220	-,580
UV _{254EF}	,342	-,487	,449	-,298	-,165	-,284	,525	,721	,895	1	,494	,742	-,215	,017	,224	-,189
SUVA _{INF}	,503	-,106	-,099	-,317	,045	,075	-,220	-,024	,615	,494	1	,828	-,253	,288	,070	-,503
SUVA _{EF}	,413	-,253	,178	-,331	-,065	-,081	,024	,166	,656	,742	,828	1	-,169	,259	,128	-,110
RC ₂₂	-,151	-,280	-,095	,097	-,016	,256	-,041	-,200	-,237	-,215	-,253	-,169	1	-,052	,016	,194
THM _{EF}	,102	-,215	-,371	-,045	,174	,277	-,195	-,174	,025	,017	,288	,259	-,052	1	,369	-,417
AHA _{EF}	,210	-,148	-,040	-,106	-,029	,164	,185	,166	,220	,224	,070	,128	,016	,369	1	-,456
Biop.	-,374	,289	,019	-,140	,296	,651	-,279	-,178	-,580	-,189	-,503	-,110	,194	-,417	-,456	1

■ Correlación significativa en el nivel 0,01 ■ Correlación significativa en el nivel 0,05

Tabla 29. Matriz de coeficientes de correlación de Pearson (r) de todos los parámetros y variables la fase CF+UF del estudio comparativo.

	T ^a _{EF}	pH _{EF}	CRL _{EF}	TURB _{INF}	TURB _{EF}	COD _{INF}	COD _{EF}	UV _{254INF}	UV _{254EF}	SUVA _{INF}	SUVA _{EF}	RC ₂₂	THM _{EF}	AHA _{EF}	Biop.
T ^a _{EF}	1	0,766	0,096	0,186	0,430	-,0225	-,0278	-,0280	-,0401	-,0242	-,0377	0,328	-,0475	-,0400	0,346
pH _{EF}	0,766	1	-,0197	-,0156	-,0391	0,407	0,492	0,377	0,595	0,353	0,534	-,0160	0,318	0,052	0,034
CRL _{EF}	0,096	0,197	1	0,133	0,081	-,0039	-,0115	0,097	-,0219	-,0024	-,0300	0,036	0,223	-,0288	-,0646
TURB _{INF}	0,186	0,156	0,133	1	0,385	-,0400	-,0366	-,0298	-,0318	-,0112	-,0208	0,204	0,001	-,0066	0,984
TURB _{EF}	0,430	0,391	0,081	0,385	1	-,0099	-,0387	-,0024	-,0389	-,0048	-,0296	0,399	-,0173	0,473	0,921
COD _{INF}	-,0225	0,407	-,0039	-,0400	-,0099	1	0,871	0,831	0,836	0,559	0,557	-,0257	0,253	0,115	-,0506
COD _{EF}	0,278	0,492	-,0115	-,0366	-,0387	0,871	1	0,645	0,775	0,391	0,479	-,0205	0,229	-,0065	-,0183
UV _{254INF}	0,280	0,377	0,097	-,0298	-,0024	0,831	0,645	1	0,969	0,849	0,861	-,0198	0,223	0,398	-,0644
UV _{254EF}	0,401	0,595	-,0219	-,0318	-,0389	0,836	0,775	0,969	1	0,792	0,899	-,0191	0,193	0,327	-,0093
SUVA _{INF}	0,242	0,353	-,0024	-,0112	-,0048	0,559	0,391	0,849	0,792	1	0,886	-,0161	0,154	0,281	-,0383
SUVA _{EF}	0,377	0,534	-,0300	-,0208	-,0296	0,557	0,479	0,861	0,899	0,886	1	-,0144	0,095	0,266	0,389
RC ₂₂	0,328	0,160	0,036	0,204	0,399	-,0257	-,0205	-,0198	-,0191	-,0161	-,0144	1	-,0259	0,240	0,997
THM _{EF}	0,475	0,318	0,223	0,001	-,0173	0,253	0,229	0,223	0,193	0,154	0,095	-,0259	1	1,000	-,0596
AHA _{EF}	0,400	0,052	-,0288	-,0066	0,473	0,115	-,0065	0,398	0,327	0,281	0,266	0,240	1,000	1	*
Biop.	0,346	0,034	-,0646	0,984	0,921	-,0506	-,0183	-,0644	-,0093	-,0383	0,389	0,997	-,0596	*	1

■ Correlación significativa en el nivel 0,01 ■ Correlación significativa en el nivel 0,05 * No se puede calcular porque, como mínimo, una de las variables es constante.

Tabla 30. Matriz de coeficientes de correlación de Pearson (r) de todos los parámetros y variables de la fase O₃+UF del estudio comparativo.

	T ^a _{EF}	pH _{EF}	CRL _{EF}	TURB _{INF}	TURB _{EF}	COD _{INF}	COD _{EF}	UV _{254INF}	UV _{254EF}	SUVA _{INF}	SUVA _{EF}	RC ₂₂	THM _{EF}	AHA _{EF}	Biop.
T ^a _{EF}	1	-0,337	0,058	0,150	-0,010	-0,399	-0,508	-0,027	0,052	0,452	0,486	-0,010	0,203	-0,262	-0,338
pH _{EF}	-0,337	1	-0,124	-0,515	-0,378	0,489	0,185	-0,020	-0,007	-0,353	-0,155	0,169	-0,373	-0,024	0,208
CRL _{EF}	0,058	-0,124	1	0,024	0,093	0,114	-0,054	-0,212	-0,184	-0,156	-0,056	0,085	-0,020	0,152	-0,211
TURB _{INF}	0,150	-0,515	0,024	1	0,334	-0,145	-0,035	0,146	0,140	0,190	0,153	-0,212	0,083	-0,019	-0,385
TURB _{EF}	-0,010	-0,378	0,093	0,334	1	-0,165	0,065	-0,081	0,064	0,067	0,013	-0,008	0,184	0,289	-0,240
COD _{INF}	-0,399	0,489	0,114	-0,145	-0,165	1	0,451	0,090	0,006	-0,740	-0,416	0,220	-0,180	0,354	0,272
COD _{EF}	0,508	0,185	-0,054	-0,035	0,065	0,451	1	0,221	0,221	-0,400	-0,557	0,008	-0,205	0,374	0,050
UV _{254INF}	-0,027	-0,020	-0,212	0,146	-0,081	0,090	0,221	1	0,722	0,463	0,422	-0,189	0,189	0,103	0,907
UV _{254EF}	0,052	-0,007	-0,184	0,140	0,064	0,006	0,221	0,722	1	0,406	0,626	-0,086	0,234	0,185	0,543
SUVA _{INF}	0,452	-0,353	-0,156	0,190	0,067	0,740	-0,400	0,463	0,406	1	0,735	-0,366	0,241	-0,316	-0,139
SUVA _{EF}	0,486	-0,155	-0,056	0,153	0,013	-0,416	-0,557	0,422	0,626	0,735	1	-0,124	0,314	-0,168	-0,101
RC ₂₂	-0,010	0,169	0,085	-0,212	-0,008	0,220	0,008	-0,189	-0,086	-0,366	-0,124	1	-0,146	0,146	0,958
THM _{EF}	0,203	-0,373	-0,020	0,083	0,184	-0,180	-0,205	0,189	0,234	0,241	0,314	-0,146	1	0,486	0,504
AHA _{EF}	-0,262	-0,024	0,152	-0,019	0,289	0,354	0,374	0,103	0,185	-0,316	-0,168	0,146	0,486	1	-0,961
Biop.	-0,338	0,208	-0,211	-0,385	-0,240	0,272	0,050	0,907	0,543	-0,139	-0,101	0,958	0,504	-0,961	1

■ Correlación significativa en el nivel 0,01 ■ Correlación significativa en el nivel 0,05

Tabla 31. Matriz de coeficientes de correlación de Pearson (r) de todos los parámetros y variables de la fase UF del estudio comparativo.

	T ^a _{EF}	pH _{EF}	CRL _{EF}	TURB _{INF}	TURB _{EF}	COD _{INF}	COD _{EF}	UV _{254INF}	UV _{254EF}	SUVA _{INF}	SUVA _{EF}	RC ₂₂	THM _{EF}	AHA _{EF}	Biop.
T ^a _{EF}	1	0,512	0,317	0,401	0,343	0,342	0,359	-0,182	-0,258	-0,492	-0,583	0,169	0,031	-0,158	*
pH _{EF}	0,512	1	0,071	0,611	0,403	0,681	0,644	-0,125	-0,155	-0,752	-0,723	0,052	0,216	-0,301	*
CRL _{EF}	0,317	0,071	1	0,082	0,144	0,233	0,265	-0,060	-0,011	-0,298	-0,235	0,057	0,131	0,279	*
TURB _{INF}	0,401	0,611	0,082	1	0,411	0,373	0,409	-0,162	-0,212	-0,505	-0,590	-0,091	0,087	-0,038	*
TURB _{EF}	0,343	0,403	0,144	0,411	1	0,214	0,277	-0,089	-0,131	-0,309	-0,433	0,044	0,085	-0,064	*
COD _{INF}	0,342	0,681	0,233	0,373	0,214	1	0,852	0,421	0,279	-0,472	-0,427	0,110	0,264	-0,093	*
COD _{EF}	0,359	0,644	0,265	0,409	0,277	0,852	1	0,356	0,472	-0,406	-0,374	-0,041	0,408	-0,009	*
UV _{254INF}	-0,182	-0,125	-0,060	-0,162	-0,089	0,421	0,356	1	0,677	0,584	0,415	0,120	0,241	0,133	*
UV _{254EF}	-0,258	-0,155	-0,011	-0,212	-0,131	0,279	0,472	0,677	1	0,418	0,628	-0,042	0,357	0,109	*
SUVA _{INF}	-0,492	-0,752	-0,298	-0,505	-0,309	-0,472	-0,406	0,584	0,418	1	0,797	0,004	-0,021	0,228	*
SUVA _{EF}	-0,583	-0,723	-0,235	-0,590	-0,433	-0,427	-0,374	0,415	0,628	0,797	1	-0,002	-0,012	0,119	*
RC ₂₂	0,169	0,052	0,057	-0,091	0,044	0,110	-0,041	0,120	-0,042	0,004	-0,002	1	-0,140	-0,187	*
THM _{EF}	0,031	0,216	0,131	0,087	0,085	0,264	0,408	0,241	0,357	-0,021	-0,012	-0,140	1	-0,022	*
AHA _{EF}	-0,158	-0,301	0,279	-0,038	-0,064	-0,093	-0,009	0,133	0,109	0,228	0,119	-0,187	-0,022	1	*
Biop.	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*

■ Correlación significativa en el nivel 0,01 ■ Correlación significativa en el nivel 0,05 * No se puede calcular porque, como mínimo, una de las variables es constante.

Para la obtención de la Figura 43 se trataron de manera conjunta todos los datos de variables y parámetros de las tres fases del estudio comparativo con objeto de introducir en el análisis la variable “tratamiento” y poder conocer así su influencia en los resultados obtenidos. Este RDA puso de manifiesto que efectivamente el tratamiento tuvo una gran influencia en el comportamiento del sistema, siendo ésta la variable de mayor peso, siguiendo en este orden: Tratamiento > Temperatura > TURB_{INF} > pH > CRL > Tiempo > COD_{INF} > UV₂₅₄_{INF}; todas ellas con alta significación (p -valor $\leq 0,0420$) a excepción del CRL y el COD_{INF} cuya significación fue más moderada (p -valor = 0,0780 y 0,1000 respectivamente). Los resultados del análisis no hicieron descartar ninguna de las variables ni parámetros del sistema por redundancias, quedando de tal manera explicado bidimensionalmente en un 97,8 %, por lo que se considera que la representatividad de este RDA es muy alta.

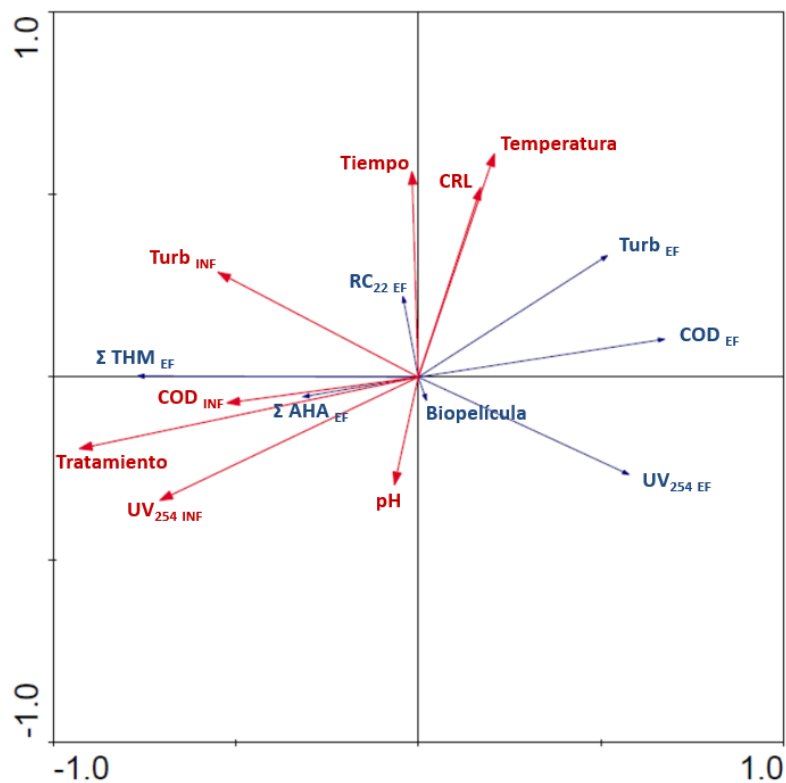


Figura 43. Diagrama bidimensional del análisis de redundancia (RDA) realizado al sistema definido por las tres fases del estudio comparativo en conjunto.

A partir de esta representación se puede conocer qué variable/s (vectores rojos) explican el comportamiento de cada parámetro de salida (vectores azules). Al tratarse en este caso de una base de datos global (fases I, II y III conjuntamente), el interés no se encuentra tanto en el análisis del RDA en su totalidad, sino en la relación del vector “tratamiento” con el resto de parámetros. Así, en una primera lectura de la Figura 43, lo más destacable es que:

- El tipo de tratamiento tuvo una fuerte influencia en la cantidad generada de DBPs ($\alpha_{\text{Trat.}-\text{THMs}} = 12^\circ$ y $\alpha_{\text{Trat.}-\text{AHAs}} = 2^\circ$).
- El tratamiento afectó en gran medida a la turbidez y el contenido en carbono orgánico del agua potable ($\alpha_{\text{Trat.}-\text{TurbEF}} = 159^\circ$ y $\alpha_{\text{Trat.}-\text{CODEF}} = 3^\circ$) y ligeramente a su UV_{254} ($\alpha = 143^\circ$).
- A priori, la biopelícula y el RC_{22} no se vieron marcadas por el tipo de tratamiento empleado en la potabilización ($\alpha_{\text{Trat.}-\text{Biop.}} = 93^\circ$ y $\alpha_{\text{Trat.}-\text{RC}_{22}} = 91^\circ$), aunque ambos parámetros deberán analizarse más detenidamente en sus correspondientes apartados, ya que no puede obviarse el poco peso de éstos en el RDA (nótese la corta longitud de sus vectores) debido al escaso número de datos medidos en uno (la biopelícula) y los numerosos valores nulos en el otro (RC_{22}).

Una vez analizada a grandes rasgos la influencia del tratamiento, los RDA individualizados para cada fase (Figura 44, Figura 45 y Figura 46) serán usados para un análisis más minucioso que explique el comportamiento del sistema dentro de cada tratamiento de potabilización.

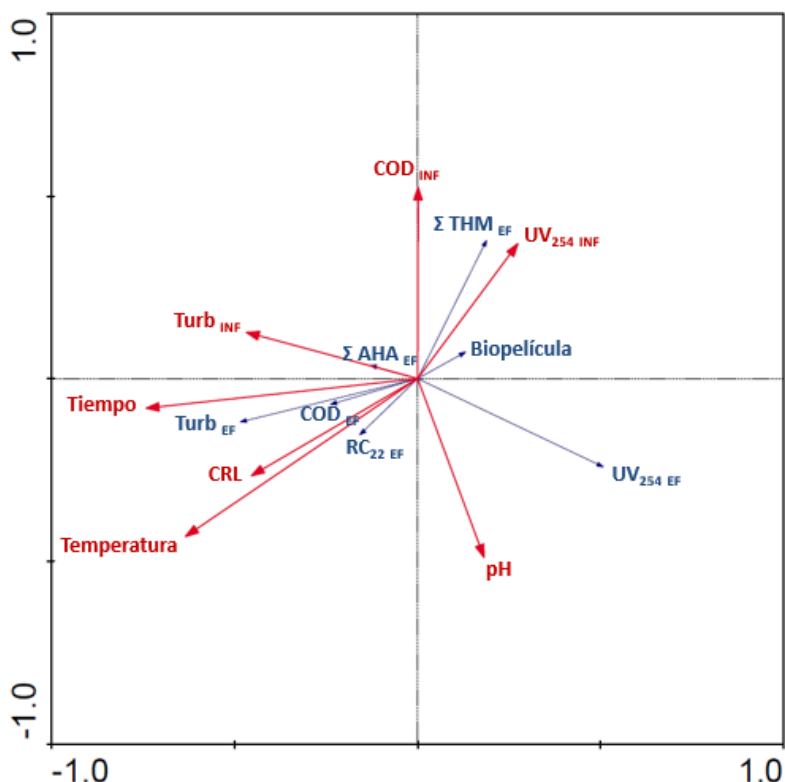


Figura 44. Diagrama bidimensional del análisis de redundancia (RDA) realizado al sistema definido por la fase de CF+UF del estudio comparativo.

En la fase de CF+UF, el RDA (Figura 44) reveló que el orden de influencia de las variables del sistema fue Tiempo > TURB_{INF} > COD_{INF} > UV254_{INF} > Temperatura > pH > CRL, con p-valores entre 0,0020 y 0,2220. No se obtuvieron problemas de redundancias entre variables y el diagrama bidimensional contó con una representatividad del 83,5 % (la más baja de todos los RDA del estudio comparativo, pero no por ello deja de ser elevada). Las relaciones más destacadas en este diagrama fueron:

- La fuerte correlación positiva de la caracterización de la materia orgánica del influente sobre la generación de THMs en el agua potable ($\alpha_{\text{THMs-UV254 INF}} = 10^\circ$ y $\alpha_{\text{THMs-COD INF}} = 27^\circ$).
- La fuerte influencia positiva de la temperatura sobre el RC₂₂ ($\alpha_{\text{Temperatura-RC22}} = 10^\circ$) y algo más débil en el caso del tiempo ($\alpha_{\text{Tiempo-RC22}} = 38^\circ$).
- La turbidez y la concentración de COD del agua potable estuvo fuertemente explicada por la turbidez del agua de entrada a la RDE ($\alpha_{\text{Turb INF-Turb EF}} = 27^\circ$ y $\alpha_{\text{Turb INF-COD EF}} = 30^\circ$).

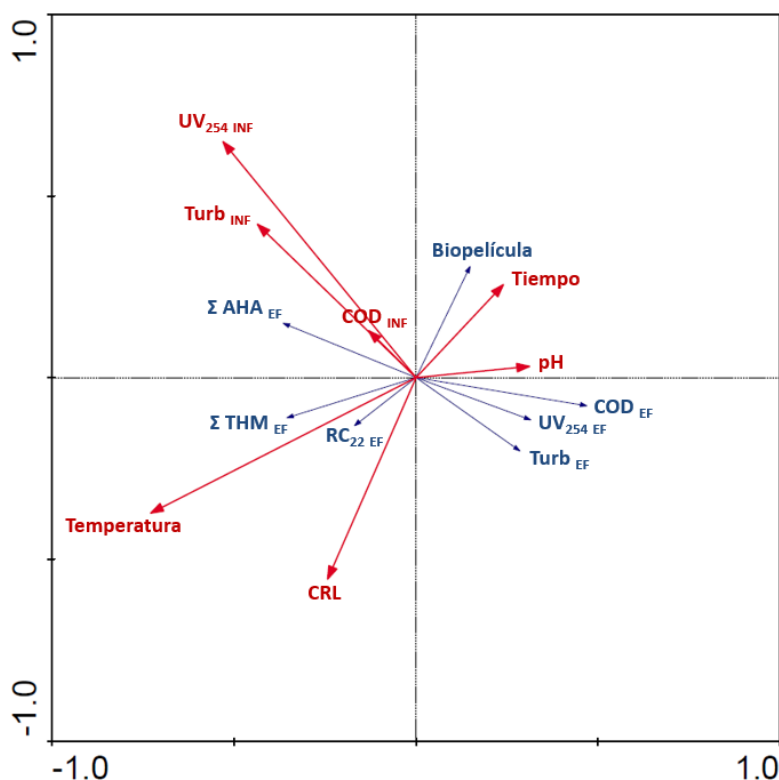


Figura 45. Diagrama bidimensional del análisis de redundancia (RDA) realizado al sistema definido por la fase de O₃+UF del estudio comparativo.

En la fase de O₃+UF, los resultados del RDA mostraron que las variables, por orden decreciente de importancia en el sistema multivariable, nuevamente fueron Tiempo > TURB_{INF} > COD_{INF} > UV254_{INF} >

Temperatura > pH > CRL (al igual que en la fase I), pero con valores de significación algo menores que iban desde 0,0020 hasta 0,9440, y una representatividad del sistema vectorial alta (93,5 %). Las relaciones más destacadas del diagrama (Figura 45) fueron:

- La correlación positiva de la caracterización de la materia orgánica del influente ($Turb_{INF}$, COD_{INF} y $UV_{254_{INF}}$) sobre la generación de AHAs en el agua potable ($\alpha = 23^\circ$, 23° y 30° respectivamente), aunque no guardó esa misma relación en el caso de los THMs.
- Y la fuerte influencia positiva de la temperatura sobre el RC_{22} ($\alpha = 10^\circ$) y del tiempo sobre la biopelícula ($\alpha = 19^\circ$).

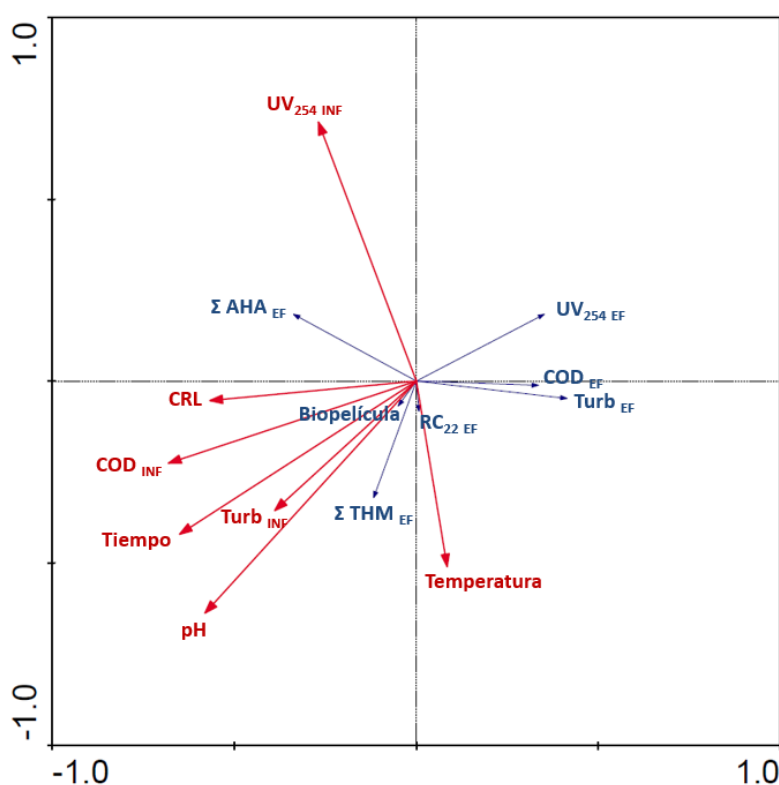


Figura 46. Diagrama bidimensional del análisis de redundancia (RDA) realizado al sistema definido por la fase de UF del estudio comparativo.

En la fase III (UF directa), el diagrama bidimensional contó con una representatividad del 98,3 % y el mismo orden de influencia de las variables del sistema que en las dos fases anteriores ($Tiempo > TURB_{INF} > COD_{INF} > UV_{254_{INF}} > Temperatura > pH > CRL$), aunque con una significación moderada en todas ellas ($0,1200 \leq p\text{-valor} \leq 0,8080$) excepto para el pH que fue alta ($p\text{-valores} = 0,0360$). De la Figura 46 se pueden extraer las relaciones más importantes:

- La concentración de COD en el agua de salida estuvo fuertemente explicada por la concentración de COD en el agua de entrada a la RDE ($\alpha_{\text{COD INF-COD EF}} = 150^\circ$).
- Existió una correlación débil de la caracterización de la materia orgánica del influente sobre la generación de THMs y AHAs en el agua potable, así como con el nivel de CRL y el tiempo.
- Los parámetros microbiológicos (RC₂₂ y biopelícula) no tuvieron gran peso en el gráfico bidimensional por la cantidad de valores nulos detectados, por lo que su comportamiento en función de las variables del sistema deberá ser analizado mediante otros recursos estadísticos y bibliográficos.

4.2.3. Variables de medición continua

Las variables de medición continua, minuto a minuto, fueron las variables externas (temperatura del agua y pH) y la variable controlada (cloro residual libre). Teniendo en cuenta los resultados obtenidos previamente en el estudio evolutivo o fase 0, es de esperar que la estacionalidad vuelva a influir en la temperatura del agua de la RDE en este estudio comparativo, pudiendo afectar a su vez a la calidad microbiológica del agua potable. Por otro lado, también en la fase 0 se vio que el pH se mantuvo relativamente constante, sin grandes desviaciones, dentro de los valores normales para un agua potable pero que sufrió algunas variaciones en el tiempo a consecuencia fundamentalmente del tipo de tratamiento empleado. Esto puede hacer presagiar entonces que también existan ciertas diferencias de pH entre las tres fases del estudio comparativo, ya que es el tratamiento lo que distingue a cada una de ellas. Y respecto al CRL, al ser una variable controlada, es previsible que se mantenga en un nivel bastante constante en torno al valor de consigna fijado como así sucedió en la fase previa, aunque tal vez sufra más variaciones cuando entre en juego otro oxidante como es el ozono.

4.2.3.1. Temperatura del agua

La fase de CF+UF, llevada a cabo desde el mes de marzo hasta agosto incluido, presentó temperaturas del agua que iban desde mínimas de 9,5 °C hasta máximas de 33,7 °C y con una tendencia siempre ascendente (Figura 47-A), tendencia lógica por el paralelismo con la tendencia de la temperatura ambiental propia de las fechas en las que se llevó a cabo esta fase (primavera-verano). Sin embargo la fase de O₃+UF mostró una tendencia cuasi-parabólica (Figura 47-B), siendo ascendente durante las primeras 17 semanas de ensayo correspondientes a los meses de primavera-verano y donde se alcanzaron los 31,7 °C de máxima en el agua, seguida de un periodo descendente correspondiente a los meses de otoño hasta alcanzar los 13,0 °C de

mínima. Este cambio de tendencia vuelve a coincidir con los cambios estacionales del periodo de ensayo. La fase de UF, cuya experimentación se realizó durante los meses más fríos (Tabla 6), estuvo marcada por un comportamiento más constante en la temperatura del agua con una leve subida a finales de este periodo, coincidiendo con el aumento de las temperaturas ambientales (Figura 47-C). Por tanto, observando el comportamiento de la temperatura del agua en estos tres casos, se ve que ésta sufrió una clara influencia por parte de las variaciones estacionales, al igual que ya se advirtió en la fase 0 de este trabajo.

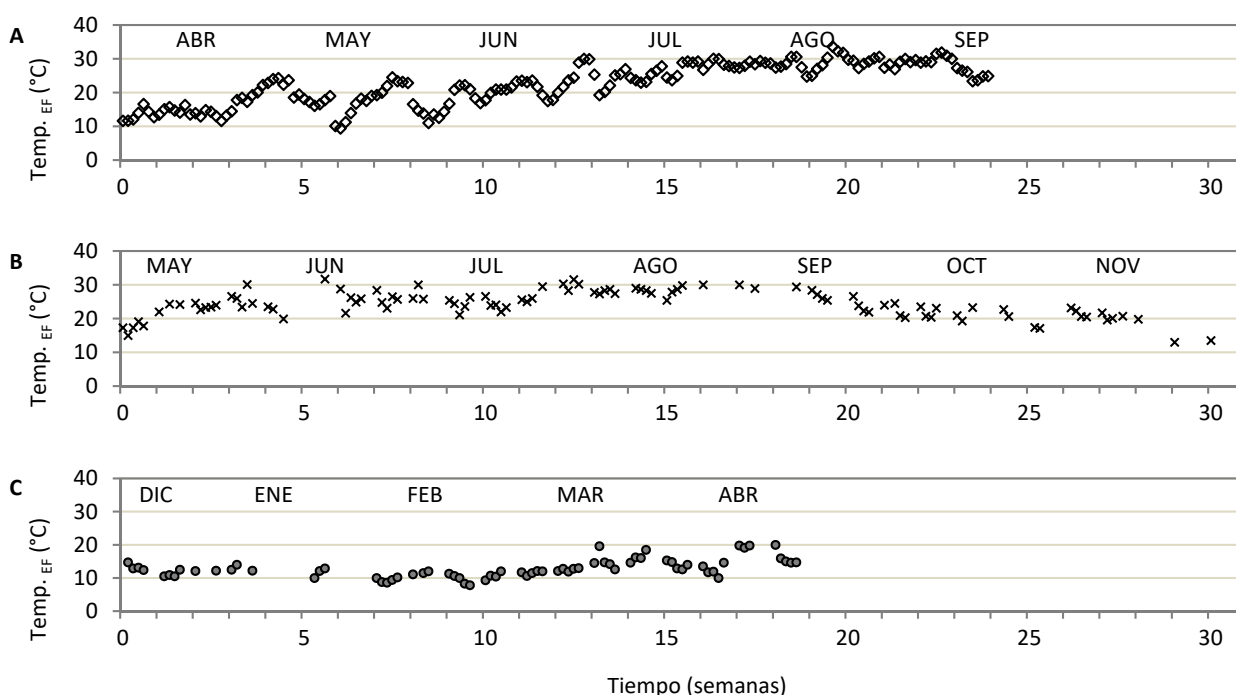


Figura 47. Evolución temporal de la temperatura del agua de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O₃+UF (B) y UF (C).

Aunque el análisis de varianzas recogido en la Tabla 32 muestra que existieron diferencias de temperatura estadísticamente significativas entre las 3 fases comparadas, hay que señalar que estas diferencias no se debieron al tipo de tratamiento de potabilización empleado en cada fase sino a las diferentes épocas del año en las que se desarrolló cada una de ellas. También conviene señalar que dicho ANOVA fue realizado a un nivel de significación de 0,05 por mantener un criterio igualitario en todos los análisis del presente trabajo, pero al realizar el mismo análisis a un nivel de significación mayor ($\alpha = 0,01$), los resultados arrojaron que no existieron diferencias estadísticamente significativas entre las fases CF+UF y O₃+UF. Bajo este criterio más restrictivo (porque reduce la probabilidad de error “falso positivo” de la prueba) se comprueba cómo las dos fases desarrolladas en fechas similares de la época estival presentaron medias similares, mientras que la tercera fase, llevada a cabo durante los meses de invierno, presentó la temperatura

media del agua más baja (13 °C). Esto nuevamente pone de manifiesto cómo la temperatura ambiental jugó un papel fundamental en la temperatura del agua.

Una apreciación importante es que las temperaturas máximas de las fases I y II (34 y 32 °C respectivamente, Tabla 32) son bastante inusuales para el agua de una red de distribución real, pero fueron sobrevenidas por las condiciones de diseño de la instalación experimental (las tuberías que conformaban las RDEs se encontraban a la intemperie y los volúmenes de almacenamiento de agua eran muy inferiores en comparación con los usados a escala real). Además, como se señaló en la fase 0 del estudio, la temperatura ambiental tuvo mucho más impacto sobre la temperatura del agua en los meses más calurosos que en los fríos (Figura 23), es decir, que la diferencia entre la temperatura del agua y la ambiental fue menor cuanto mayor era esta última. Por tanto, era esperable que en las fases I y II, donde se operó en meses de verano, el agua llegara a temperaturas significativamente más altas que en la fase III, que se operó mayoritariamente en invierno. Por otro lado, aunque las fases I y II abarcaron muchos meses iguales en sus periodos de ensayo, estos correspondían a años distintos con condiciones ambientales distintas, lo que explica las diferencias de temperatura del agua entre una fase y otra para el mismo mes, como se aprecia en mayo-junio de la Figura 47-A vs B, y de ahí que el ANOVA revelara diferencias entre estas dos fases a un nivel de significación de 0,05 (Tabla 32).

Tabla 32: Valores medios, máximos y mínimos de la temperatura del agua en la RDE en las tres fases del estudio comparativo.

Fase	Tª media (°C)	Tª máx. (°C)	Tª min. (°C)
I) CF + UF	22,54 ± 6,04 ^a	33,66	9,45
II) O ₃ + UF	24,29 ± 3,95 ^b	31,70	13,00
III) UF	12,84 ± 2,79 ^c	20,00	7,80
Global	21,09 ± 6,50	33,66	7,80

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos por el método Student-Newman-Keuls (SNK) con un nivel de significación de 0,05.

La influencia de la estacionalidad sobre la temperatura del agua es un hecho ya manifestado en otras investigaciones y que puede afectar a diversos parámetros que determinan la calidad de un agua potable, de ahí la importancia de la temperatura del agua y por lo que fue medida continuamente. Un ejemplo de ello son los resultados de Wlodyka-Bergier y Bergier (2013), que revelaron una influencia significativa de las fluctuaciones de la temperatura del agua relacionadas con la estacionalidad, lo cual afectó a la cantidad y tipos de precursores en el agua clorada y al contenido de DBPs formados en el sistema de distribución. También Ristoiu *et al.* (2009) comprobaron una alta variabilidad estacional en las tasas de formación de THMs en los sistemas de distribución de una ciudad de Rumanía; y Roccaro *et al.* (2008) hallaron una notable influencia de la temperatura en la cinética del consumo de cloro y de la generación de DBPs.

La temperatura también está estrechamente relacionada con aspectos microbiológicos del agua como son la formación de biopelícula en los sistemas de distribución (Lund y Ormerod, 1995) o la estructura de las comunidades bacterianas y su actividad microbiana (Calderón *et al.*, 2012), por lo que será una variable importante a tener en cuenta en este estudio en el caso del RC₂₂, *E. coli* y el RBA en la biopelícula.

Además de estos factores, la temperatura del agua también puede repercutir en otros aspectos que, aunque no hayan sido contemplados o medidos en esta investigación, pueden influir directa o indirectamente en la calidad del agua de los sistemas de distribución y en el funcionamiento o mantenimiento de la red, como por ejemplo, la efectividad y degradación del hipoclorito (Vikesland *et al.*, 2001; White, 1999) o la corrosión del material de fabricación de la tubería que conforma la red (McNeill y Edwards, 2002).

Por tanto, si en los trabajos de investigación referenciados se evidenció una influencia de la variabilidad estacional sobre la temperatura del agua y de ésta sobre otros parámetros, cabe esperar que en este trabajo puedan darse efectos similares. Y más si se tiene en cuenta que la instalación experimental no contaba con ningún elemento o sistema que minimizara las fluctuaciones climatológicas, lo que puede provocar que el agua alcance temperaturas más extremas de lo usual en una RDAP (Zhang *et al.*, 2012).

4.2.3.2. pH

Como muestra la Figura 48, en cada una de las fases del estudio comparativo la evolución del pH tuvo un comportamiento distinto y fue debido fundamentalmente al tipo de tratamiento empleado en la potabilización como se explica a continuación.

En la fase de CF+UF (Figura 48-A) el pH comenzó en valores en torno a 8,5 pero a lo largo del tiempo fue descendiendo hasta alcanzar mínimos de 6,51 (Tabla 33), rozando el límite de potabilidad. Este descenso gradual del pH estuvo motivado por el efecto acidificante del coagulante empleado en el tratamiento de esta fase, que no pudo ser retirado por la filtración en su totalidad como ya se probó en resultados previos (Rojas-Serrano *et al.*, 2015c) y que, aunque se aplicó a dosis constante en el tratamiento, pudo ir acumulándose al entrar en la recirculación de la RDE. Según Siéliéchi *et al.* (2008), el pH decrece gradualmente con la adición de Fe (III) en agua, y Willhite *et al.* (2013) enuncia que el HCl producido en la reacción del FeCl₃ con el agua provoca descensos de pH. Por tanto, puede afirmarse que el coagulante fue la causa de tal descenso de pH en el agua potable de la fase I.

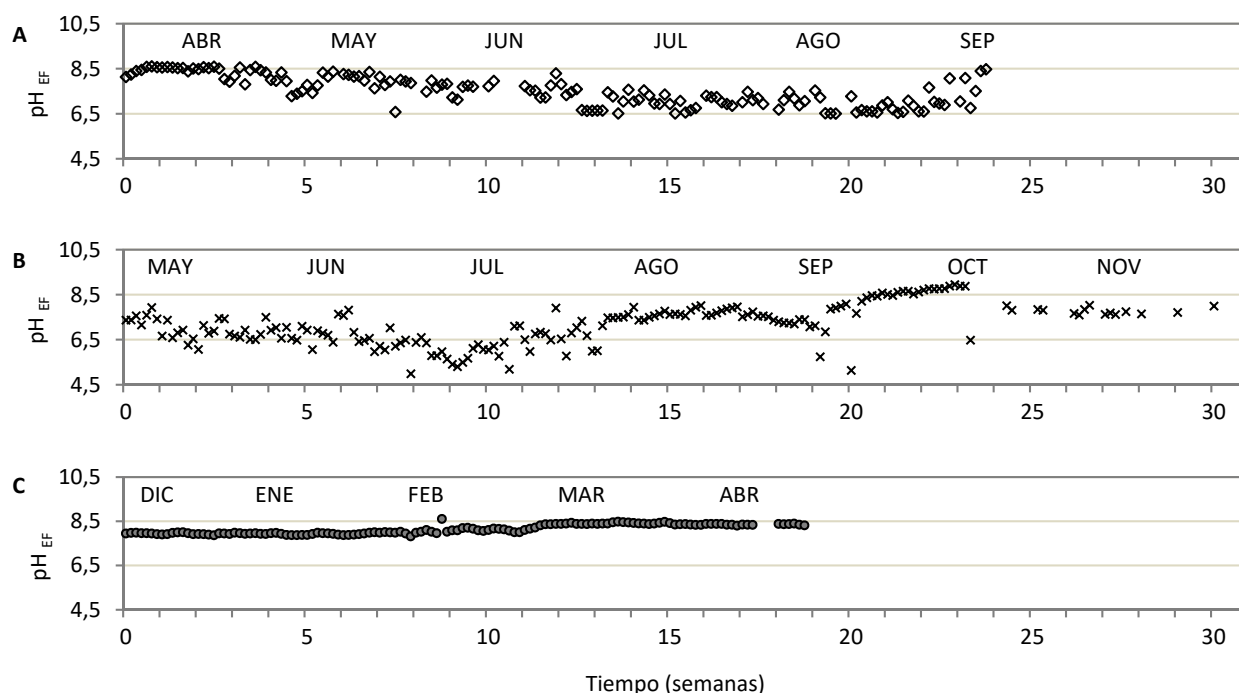


Figura 48. Evolución temporal del pH del agua de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O₃+UF (B) y UF (C).

La fase que presentó un comportamiento más anómalo fue la de O₃+UF. En las primeras 9 semanas del ensayo, el pH del agua de la RDE mostró una tendencia descendente, pasando de valores iniciales en torno a 7,5 hasta valores mínimos de 4,99 (Tabla 33), muy por debajo de lo requerido para ser considerada un agua apta para consumo humano. A partir de la semana 10 del experimento, el pH del agua comenzó a recuperarse paulatinamente ascendiendo de nuevo hasta valores aptos para el consumo rondando las 7,7 unidades de pH (Figura 48-B). Como se indicó en la fase 0 del presente trabajo, la ozonización produjo un agua de menor pH que sin tal pretratamiento, como ya se comprobó en investigaciones previas realizadas en la misma instalación experimental (Rojas-Serrano *et al.*, 2016), por lo que el agua de entrada a la RDE lo hacía con menor pH en esta fase que en el resto. Además, si se tiene en cuenta la presencia de O₃ residual en esta agua y que éste puede romper grandes moléculas orgánicas formando pequeños ácidos orgánicos que reducen el pH (X. Huang *et al.*, 2005a), es normal que la tendencia fuera descendente debido a que la recirculación del agua provoca que el efecto sea acumulativo. Pero en torno a la semana 10 esta tendencia sufrió un cambio, aumentando el pH del agua paulatinamente. Esto pudo deberse a varios factores, cuya influencia sobre el pH se aborda a continuación, o incluso deberse a la concomitancia de ellos.

Por un lado, la RDE se fue ensuciando con el paso del tiempo y empezaron a apreciarse bacterias adheridas a la tubería en torno al mes de junio (aquí de manera muy escasa) hasta que su recuento fue sustancial por el mes de septiembre (Figura 67), momento en el que también el RC₂₂ obtuvo más positivos

(Figura 61). Es sabido que el ozono aumenta considerablemente la biodegradabilidad de la materia en los sistemas de distribución, aumentando el ratio AOC/COD, y que promueve la producción de compuestos promotores del crecimiento microbiano (Escobar y Randall, 2001a; van der Kooij *et al.*, 1989). En base a esto, las bacterias de la biopelícula pudieron actuar como consumidoras de dichos compuestos, causando un aumento de pH según la reacción descrita por Huang *et al.* (2005), coincidiendo en el tiempo el aumento de pH con el aumento del RBA y siendo coherente por tanto ese cambio de tendencia en el pH del agua.

Otro factor que pudo contribuir a ese cambio de pH puede ser la corrosión del material de la tubería sufrida con el tiempo de operación. Cierto es que la mayoría de las investigaciones están hechas sobre tuberías de hierro o cobre, ya que la implementación de materiales plásticos en redes de distribución es más reciente. Son varios los estudios que afirman que el hierro de las tuberías puede producir un aumento del pH como consecuencia de su corrosión siguiendo el llamado mecanismo de Kuch (AWWARF, 1996), pero de la corrosión del polietileno no se conoce tanto aún. No obstante, el estudio de Devilliers *et al.* (2011) puso de manifiesto que se produce una degradación polimérica del polietileno por acción de la cloración, aunque de manera leve, que producía compuestos carbonilos. Esta degradación puede ser mayor con un oxidante más fuerte (Castagnetti *et al.*, 2011). Por tanto, el ozono residual de la fase de O₃+UF (oxidante más fuerte que la cloración) pudo producir una degradación más agresiva del polietileno de la RDE, dando lugar a una migración de compuestos orgánicos procedentes de ese material hacia el agua (Zhang y Liu, 2014), provocando estos el mismo efecto de aumento de pH antes mencionado (X. Huang *et al.*, 2005b). Los experimentos de Huang *et al.* (2005a) revelaron que la ozonización parecía causar un aumento del pH del agua, aunque desconocían las razones. A pesar de que a día de hoy se desconocen los mecanismos de reacción, la hipótesis de la formación de subproductos orgánicos de la corrosión es coherente con el comportamiento de la materia orgánica en la fase II, ya que la tendencia del COD a partir de la semana 10 fue ligeramente en aumento (Figura 52), y más aún la cantidad de depósitos de materia orgánica sobre la superficie de la tubería (micrografías de la Figura 67). Obviamente, este efecto de degradación de la tubería (y aumento de pH) no pudo darse en las primeras semanas de la fase por el corto tiempo de operación.

Tabla 33: Valores medios, máximos y mínimos del pH del agua en la RDE en las tres fases del estudio comparativo.

Fase	pH medio	pH máximo	pH mínimo
I) CF + UF	7,54 ± 0,66 ^a	8,61	6,51
II) O ₃ + UF	7,19 ± 0,87 ^b	8,95	4,99
III) UF	8,14 ± 0,21 ^c	8,61	7,82
Global	7,57 ± 0,77	8,95	4,99

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos por el método Student-Newman-Keuls (SNK) con un nivel de significación de 0,05.

En la fase de UF directa, el pH del agua potable se mantuvo muy constante y estable durante todo el periodo de ensayo (Figura 48-C) con un valor medio de 8,14 unidades y con desviación típica mínima ($\pm 0,21$; Tabla 33). Esta estabilidad se debió a que esta fase no contó con la influencia de factores relacionados con el pretratamiento, como el coagulante o el oxidante, que turbaran el pH como sí sucedió en las otras dos fases.

El ANOVA realizado con los valores de pH halló diferencias estadísticamente significativas entre las tres fases (Tabla 33). Aunque parámetros como el COD o la turbidez puedan parecer los más influyentes en el pH porque presentan los coeficientes de correlación más altos de cada fase (Tabla 29, Tabla 30 y Tabla 31), estos no dejan de ser consecuencia del tratamiento. Así que este motivo, junto a lo anteriormente discutido, permite afirmar que las diferencias de pH entre fases estuvieron motivadas por el tratamiento de potabilización, coincidiendo con lo advertido en el RDA, donde la variable tratamiento fue la de mayor peso del sistema (Figura 43).

Por tener una referencia de los valores de pH obtenidos experimentalmente en este trabajo con algunos medidos en una RDAP real, se prestó atención al estudio realizado por López-Roldán *et al.* (2016), donde se tomaron 191 muestras de agua potable en varias ubicaciones del sistema de suministro del área metropolitana de Barcelona que procedían de plantas que contaban con procesos de tratamiento clásicos (como la CF) pero también con tecnologías de membranas en gran parte del suministro. Bajo estas condiciones de tratamiento, muy similares a nuestra investigación, el pH medio obtenido fue de 7,4 y con valores extremos de 8,0 y 4,7. Si se comparan entonces las cifras de este caso con las aquí obtenidas, donde el agua potable presentó un pH de $7,57 \pm 0,77$ y unos límites de 8,95 y 4,99 (Tabla 33), puede decirse que éstos se encuentran dentro de lo normal para el comportamiento real de un agua potable sometida a este tipo de tratamientos.

El motivo de que se llevara a cabo un control continuo del pH radica en la importancia que éste tiene sobre diversos aspectos que atañen a la potabilidad del agua. Y no sólo nos referimos a los límites exigibles para que un agua sea apta para el consumo humano (6,5-9,5 en RD 140/2003), sino también a aquellos parámetros sobre los que el pH puede influir de manera significativa. Por ejemplo, el pH es un factor que está contemplado en casi todos los modelos de formación de DBPs con una relación positiva (Chowdhury *et al.*, 2009). Valdivia-García *et al.* (2016) demostraron que el pH era el parámetro que más correlación guardaba con los THMs generados en el agua potable de una red de distribución Roccaro *et al.* (2014) que influía en la especiación de los DBPs, y Molnar *et al.* (2012) que influía en la estructura de los precursores de los AHAs. Incluso Von Gunten (2003) decía que la mejor estrategia para minimizar la formación de bromatos (un tipo de DBP) en tratamientos con ozonización era la disminución del pH. También los parámetros microbiológicos

pueden verse afectados por el pH, como la biopelícula o el ratio de mortalidad bacteriana (Mendoza *et al.*, 2008; Piriou *et al.*, 1996), por no mencionar la corrosión de los sistemas de distribución de agua (Ng y Lin, 2016; Sander *et al.*, 1996) que no fue estudiada en este trabajo pero que podría contribuir indirectamente a la turbidez del agua o la formación de biopelícula entre otros. Por tanto, en los apartados correspondientes a los parámetros aquí mencionados, se analizará si efectivamente el pH influyó o no en el comportamiento y la calidad del agua potable obtenida.

4.2.3.3. Cloro residual libre

El nivel de CRL se mantuvo bastante constante y próximo a 0,40 mg/L (Figura 49) como era de esperar, ya que el cloro fue la única variable controlada del sistema mediante un lazo de control con punto de consigna fijado en dicho valor. Como se muestra en la Tabla 34, el nivel de CRL medio obtenido en todo el estudio comparativo fue de $0,44 \pm 0,07$ mg/L, lo que pone de manifiesto el correcto funcionamiento del sistema de post-cloración. Cabe puntualizar que es normal que los valores de CRL quedaran algo por encima de 0,40 mg/L debido al tipo de funcionamiento del lazo de control que, al ser retroalimentado, inyectaba desinfectante en cuanto detectaba que el CRL medido bajaba una centésima del punto de consigna, volviendo a subir el nivel de CRL hasta la próxima detección de error. Además, por el hecho de ser una variable controlada y de valor prefijado, sobra decir que siempre se cumplió con el límite de potabilidad (≤ 1 mg/L; RD 140/2003), exceptuando un día (semana 15 de la Figura 49-A) donde se sobrepasó muy levemente (1,05 mg/L; Tabla 34) como consecuencia de la limpieza química llevada a cabo en la RDE1 (justificación en apartado 4.4.1).

A pesar de esa alta homogeneidad en los valores de CRL que se aprecia tanto gráficamente como en la baja desviación típica (Figura 49 y Tabla 34), es cierto que la primera fase presentó la mayor dispersión y desviación de valores y un nivel de CRL significativamente más alto que las otras dos fases tal y como desvela el ANOVA de la Tabla 34. Para averiguar los motivos de este comportamiento no puede recurrirse a las matrices de Pearson, ya que el CRL fue una variable manipulada para ser constante y por ello las correlaciones con cualquier otro parámetro no proporcionan ninguna información a considerar. Sin embargo, puede buscarse justificación entre las propiedades físicas que se conocen que afectan al cloro y a su eficacia, como son la temperatura, el pH o la turbidez (AWWA, 1991), y averiguar también si ellos a su vez pudieron estar marcados por el tratamiento.

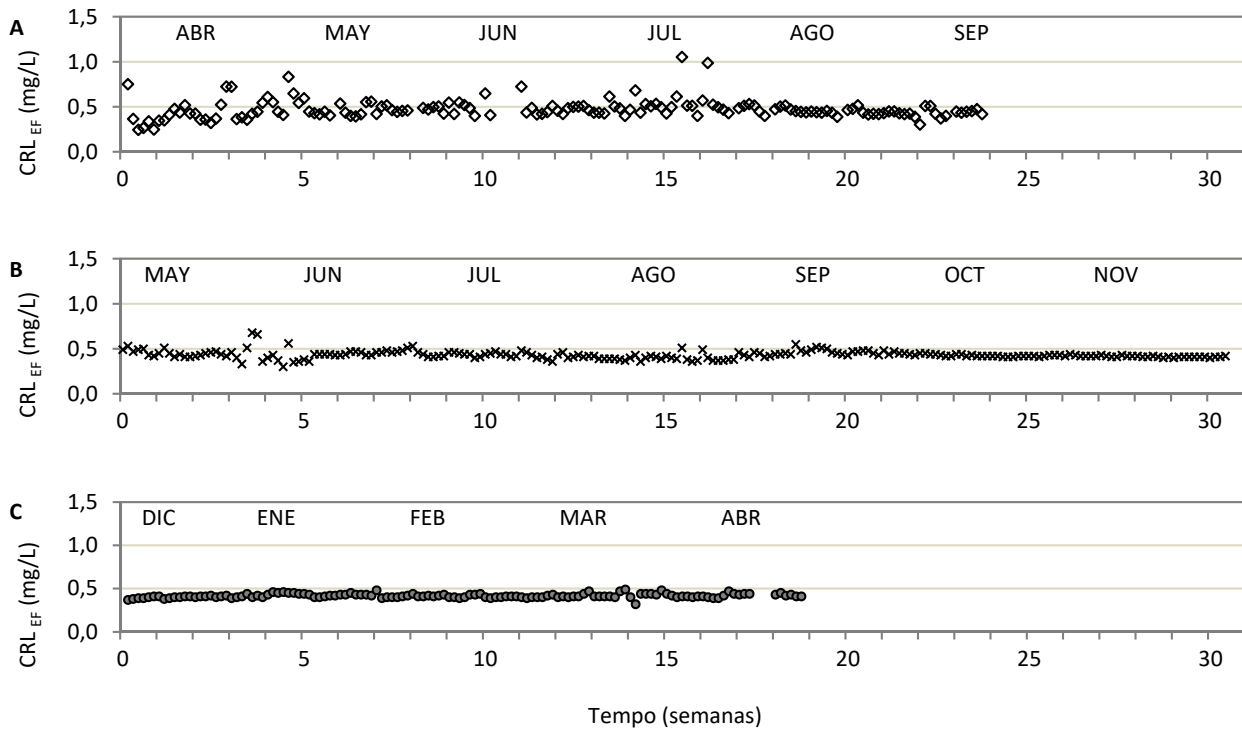


Figura 49. Evolución temporal del CRL en el agua de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O₃+UF (B) y UF (C).

A pesar de esa alta homogeneidad en los valores de CRL que se aprecia tanto gráficamente como en la baja desviación típica (Figura 49 y Tabla 34), es cierto que la primera fase presentó la mayor dispersión y desviación de valores y un nivel de CRL significativamente más alto que las otras dos fases tal y como desvela el ANOVA de la Tabla 34. Para averiguar los motivos de este comportamiento no puede recurrirse a las matrices de Pearson, ya que el CRL fue una variable manipulada para ser constante y por ello las correlaciones con cualquier otro parámetro no proporcionan ninguna información a considerar. Sin embargo, puede buscarse justificación entre las propiedades físicas que se conocen que afectan al cloro y a su eficacia, como son la temperatura, el pH o la turbidez (AWWA, 1991), y averiguar también si ellos a su vez pudieron estar marcados por el tratamiento.

La temperatura queda descartada como motivo de tal diferencia, ya que las fases de CF+UF y O₃+UF presentaron temperaturas homogéneas (según el ANOVA con $\alpha = 0,01$) y sin embargo el CRL fue significativamente distinto entre ellas. Además de la temperatura, el pH es el otro factor del cual depende la disociación del HClO en agua (Brown *et al.*, 2011). Una disminución del pH implica que aumente la proporción de ácido hipocloroso respecto al ion hipoclorito y, como el primero es un desinfectante más eficaz que el segundo, esto supone una mejor desinfección o una menor demanda de desinfectante. Y en nuestro sistema, una menor demanda puede suponer un nivel medio de CRL más bajo al disminuir la frecuencia de inyección del desinfectante. Teniendo esto en cuenta, los valores de pH de esta fase tampoco explicarían que hubieran

provocado el CRL medio más alto del estudio, ya que la fase no se caracterizó por los valores más altos de pH (Tabla 33) que hubieran conducido a valores más altos de CRL. Algo similar ocurrió con la turbidez, que siendo la fase con menor turbidez media (Tabla 35), lo que necesitaría una menor cloración (AWWA, 1991), fue la que registró el valor medio de CRL más alto.

Descartando por tanto la posible influencia de estos tres parámetros físicos sobre el nivel de CRL en el agua, la diferencia de valores medios entre la fase de CF+UF y las otras dos fases puede encontrarse en un parámetro químico: la concentración de materia orgánica, que Brown *et al.* (2011) relacionan con la desintegración del cloro. Esto puede comprobarse si se comparan paralelamente la Figura 52-A (contenido en COD) con la Figura 49-A (nivel de CRL), apreciando en ambas que, en torno a las semanas 4 y 10, los valores de ambos parámetros experimentaron un aumento momentáneo anómalo al comportamiento habitual de la fase CF+UF. Estas fluctuaciones o picos de materia orgánica producidos por los momentos de parada/arranque de la instalación (que no se dieron en las demás fases) obligaron al sistema de gestión de cloro a actuar con mucha más frecuencia para compensar el decaimiento de cloro al reaccionar con la MON y mantener el nivel de CRL fijado en consigna, aumentando así tanto la demanda de desinfectante como el valor puntual de CRL. Estos valores más altos de CRL en determinados momentos es lo que hace que la media en esa fase sea más elevada y de mayor dispersión que en las demás fases.

Li *et al.* (2015) encontraron que la tasa de desintegración del cloro fue mayor en efluentes de coagulación que la de los efluentes de ultrafiltración y ozonización. Una mayor tasa de desintegración de cloro significa, traducido a nuestro sistema de post-cloración, una mayor frecuencia de inyección de desinfectante para mantener el valor de consigna programado, provocando más picos de CRL (valores medios más altos), además de mayor dificultad en su regulación por parte del lazo de control. Por tanto, los resultados de Li *et al.* (2015) son consistentes con los obtenidos en el presente trabajo, donde el CRL fue mayor al usar el pretratamiento de CF que al usar la pre-ozonización o solamente la UF (Tabla 34). Además, estos autores apuntaron que las sustancias húmicas son las principales responsables de la desintegración del cloro en el agua, que recordemos que fueron la composición mayoritaria del agua sintética de la experimentación. Pero como en todas las fases se operó con un agua de similares características, éste no es un factor que se haya tenido en cuenta, más allá de las fluctuaciones que pudieron darse puntualmente y que sí pudieron influir en el decaimiento del cloro.

Tabla 34: Valores medios, máximos y mínimos del CRL del agua en la RDE en las tres fases del estudio comparativo.

	Fase	CRL medio (mg/L)	CRL máximo (mg/L)	CRL mínimo (mg/L)
I)	CF + UF	0,47 ± 0,11 ^a	1,05	0,25
II)	O ₃ + UF	0,43 ± 0,04 ^b	0,68	0,30
III)	UF	0,42 ± 0,02 ^c	0,49	0,32
Global		0,44 ± 0,07	1,05	0,25

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos por el método Student-Newman-Keuls (SNK) con un nivel de significación de 0,05.

La presencia de O₃ residual en el agua de la RDE durante la fase de pre-ozonización pudo influir en el CRL, no tanto en su concentración, que se mantuvo muy constante en 0,43 ± 0,02 mg/L gracias al lazo de control, sino en lo que se refiere a la demanda de desinfectante. Si además del hipoclorito, entra en juego otro oxidante como es el ozono, la competencia entre ellos pudo hacer que la demanda de hipoclorito descendiera y que el CRL tardara más en agotarse al haber otro oxidante actuando sobre la materia. No obstante, aunque el ozono tuviera presencia en la RDE e influyera discretamente en la cloración, no conviene olvidar que el carácter residual que confiere el segundo hace que no sea sustituible por el primero en la desinfección del agua potable. Además, como afirmaron Kim *et al.* (2014), la gran reactividad del O₃ puede afectar a la cinética de desintegración del desinfectante dentro de la RDAP y hacer que la concentración de cloro sea insuficiente en la red para satisfacer la inactivación del crecimiento bacteriano.

El CRL es una variable que puede afectar a la vida microbiana y la disposición de nutrientes para ello (Liu *et al.*, 2002), cuyo caso se estudiará en los apartados del recuento de bacterias y en la biopelícula (4.2.5 y 4.4 respectivamente), y también a la formación de DBPs por el tiempo de residencia del cloro en la red (Rodríguez y Sérodes, 2001). Pero hay que tener en cuenta que, debido a que el CRL fue una variable manipulada (y por ello constante), no podrá emplearse para una comparación entre los tratamientos más allá del cumplimiento de su función como indicador del correcto funcionamiento del proceso de desinfección.

4.2.4. Parámetros de control del proceso

4.2.4.1. Turbidez

Observando conjuntamente los valores de turbidez recogidos en la Tabla 35, puede decirse que el agua sufrió un enturbiamiento generalizado al circular por la red de distribución, entrando el agua a la RDE con una turbidez media de 1,56 ± 0,40 UNT y saliendo a 1,71 ± 0,56 UNT (lo que supone un ensuciamiento global del 9,6%) y con un incremento diario medio de 0,20 UNT en los 300 metros de recorrido que supone la red experimental. Pero además esta pérdida de calidad tuvo lugar en cada una de las fases estudiadas, siendo leve en la fase de UF directa (con un enturbiamiento medio de 0,08 UNT), más moderada en la fase de CF+UF

(0,16 UNT), y más pronunciada en la de O₃+UF (0,32 UNT). Aunque las tres fases mostraron un empeoramiento de la calidad del agua a su paso por la RDE, existieron diferencias estadísticamente significativas entre algunas de ellas, y no sólo cuantitativamente, sino también evolutivamente como se detallará en el análisis de tendencias de la Figura 50 y la Figura 51.

Tabla 35: Valores medios de turbidez del influente, efluente y su incremento en la RDE, y porcentajes de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las fases del estudio comparativo.

Fase	Turbidez (UNT)		Incremento de turbidez $_{EF \text{ vs } INF}$		
	INF	EF	$\bar{X} \pm SD$ (UNT)	Δ (%)	∇ (%)
I) CF + UF	1,46 \pm 0,39 ^a	1,52 \pm 0,60 ^a	0,16 \pm 0,50 ^{a,b}	63,16	36,84
II) O ₃ + UF	1,69 \pm 0,39 ^b	2,02 \pm 0,51 ^b	0,32 \pm 0,54 ^a	76,74	23,26
III) UF	1,48 \pm 0,38 ^a	1,55 \pm 0,31 ^a	0,08 \pm 0,38 ^b	60,00	40,00
Global	1,56 \pm 0,40	1,71 \pm 0,56	0,20 \pm 0,49	67,61	32,39

^{a,b} Subconjuntos homogéneos de cada parámetro por el método Student-Newman-Keuls (SNK) con un nivel de significación de 0,05.

La turbidez del efluente obtenido en las fases CF+UF y UF fueron muy similares (1,51 y 1,55 UNT de media), sin embargo en la fase de O₃+UF fue significativamente mayor, llegando a sobrepasar las 2 UNT (Tabla 35). Estas diferencias vienen dadas fundamentalmente por las diferencias de turbidez del influente, como avala la alta correlación entre ambos parámetros ($r_{Turb_{INF}-Turb_{EF}} = 0,423$; Tabla 28), diferencias motivadas por el tipo de tratamiento de potabilización empleado en cada fase. Esta correlación coincide con lo referido por Blokker y Schaap (2015), que apuntan que la tasa de ensuciamiento en una RDAP está determinada en gran parte por la calidad del agua entrante en la red.

La $Turb_{INF}$ media obtenida siguió el orden CF+UF < UF < O₃+UF. La justificación se encuentra, por un lado, en que el acoplamiento de la CF previa a la UF mejora considerablemente el rendimiento de la membrana y produce un agua de menor turbidez que la tratada únicamente por la membrana (Rojas-Serrano et al., 2015c). Y por otro lado, la aplicación de la pre-ozonización no produce prácticamente ninguna mejora de turbidez con respecto a la UF sola (Rojas-Serrano et al., 2016), incluso pudiendo suceder que la dosis de ozono sea suficiente para fragmentar la materia orgánica (Zhou et al., 2015) y que esto facilitara su paso a través de la membrana, obteniendo un agua tratada de mayor turbidez. Esta teoría concuerda con el cambio de UV_{254} que sufrió el agua desde la entrada a planta (14,08 m⁻¹; Tabla 7) hasta la salida del tratamiento con pre-ozonización (6,42 m⁻¹; Tabla 38), ya que un descenso de aromaticidad indica una transformación de la materia orgánica a estructuras más sencillas y de menor peso molecular (Hua y Reckhow, 2013).

Pero el enturbiamiento en la RDE (ΔTurb) y la evolución en el tiempo también fue diferente en cada fase, de lo que se deduce que la Turb_{INF} no fue la única razón de tales diferencias entre la Turb_{EF} , sino que existieron otros factores que influyeron y que serán analizados a continuación.

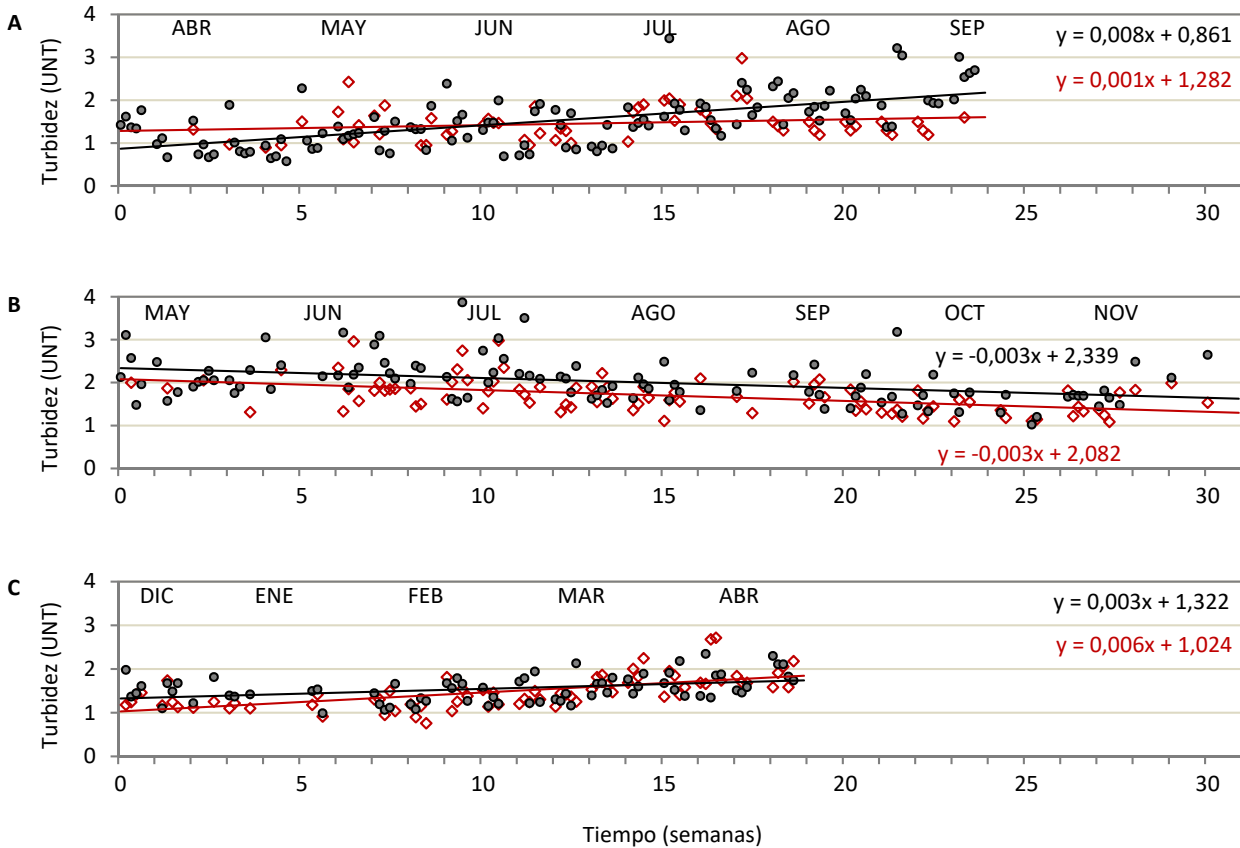


Figura 50. Evolución temporal de la turbidez en el influente (\diamond) y efluente (\bullet) de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O_3 +UF (B) y UF (C).

En la Figura 50 se han plasmado las líneas de tendencia para ambas corrientes (INF y EF) en cada una de las fases, así como sus ecuaciones de ajuste, de tal manera que la pendiente de la ecuación sería un indicador de la calidad de dicha corriente en el tiempo, por lo que se le ha denominado *evolución de la calidad* (EC_{INF} o EC_{EF} , en UNT/semana). No hay que confundir lo que representa esta pendiente de la Figura 50 con la de la Figura 51. En esta última, cada punto de la gráfica representa el incremento o ensuciamiento que sufre el agua dentro de la RDE ($X_{\text{INF}} - X_{\text{EF}}$), por lo que la pendiente de la su ecuación de ajuste representa lo que se ha denominado *evolución del ensuciamiento en la red* (EE_{RDE} , en UNT/semana). Estos dos nuevos conceptos serían aplicables no sólo al caso de la turbidez, sino también al resto de parámetros estudiados en este trabajo.

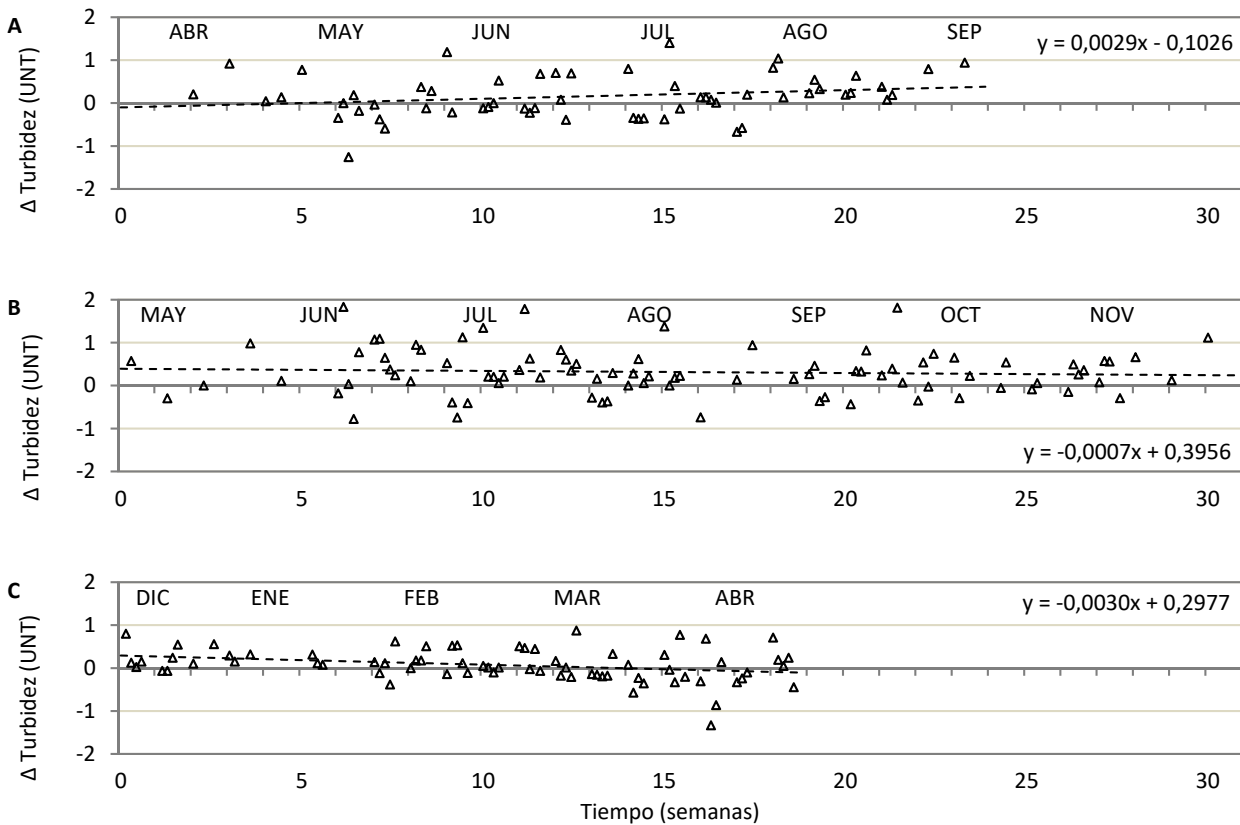


Figura 51. Evolución del incremento de turbidez en la RDE durante las fases de CF+UF (A), O_3 +UF (B) y UF (C).

Respecto al incremento de turbidez del agua por su paso a través de la conducción, los valores de la Tabla 35 mostraron que en todas las fases hubo una pérdida de la calidad del agua, con al menos el 60% de los Δ Turb positivos. Pero si comparamos el comportamiento de la turbidez a lo largo del tiempo en las 3 fases, ésta presentó una tendencia ascendente para las fases de CF+UF y UF (EC_{INF} y EC_{EF} positivas en Figura 50-A y C), mientras que fue descendente en la fase de O_3 +UF (EC_{INF} y EC_{EF} negativas; Figura 50-B). Es decir, en las fases CF+UF y UF, el agua tratada se producía más turbia conforme pasaba el tiempo, lo cual se debía al agotamiento de la membrana (Rojas-Serrano *et al.*, 2015b; Rojas-Serrano *et al.*, 2016), lo que a su vez repercutía en el enturbiamiento del agua final por la correlación señalada anteriormente ($Turb_{INF}$ y $Turb_{EF}$). Y en el caso de la O_3 +UF, la tendencia marcada en la Figura 50-B muestra que con el tiempo el agua se producía ligeramente menos turbia, aunque con fluctuaciones (EC_{INF} negativa). Esto pudo ser consecuencia del atascamiento progresivo de la membrana, de tal modo que la MO de mayor tamaño ocluyera los poros y pasara aquella materia más fragmentada por el ozono (Galapate *et al.*, 2001), dando una medida de turbidez menor.

En el caso de la CF+UF, el Δ Turb medio fue de 0,16 UNT, valor intermedio entre las otras dos fases (Tabla 35) y con una evolución en el tiempo poco marcada según se aprecia en la EE_{RDE} de la Figura 51. En

esta fase la EC_{EF} fue mayor que la del influente (0,007 vs. 0,001 UNT/semana), lo que indica que el agua final fue más turbia no solamente por el empeoramiento de la calidad del influente, sino que también debió entrar en juego algún otro factor. Aunque las membranas de UF limitan fuertemente el crecimiento de depósitos sueltos en una red de distribución (Liu *et al.*, 2013a), el factor “hierro” influyó considerablemente en el enturbiamiento. Este hierro residual procedente del pretratamiento con coagulante, pasó a la RDE como sucedió en ensayos anteriores (Rojas-Serrano *et al.*, 2015c), el cual contribuye a la acumulación de depósitos en la superficie de la tubería (Zhang *et al.*, 2016), ensuciando la red y, consecuentemente, el agua por liberación o arrastre de estos depósitos hacia la masa de agua. Estos depósitos de materia fueron cada vez más evidentes a lo largo de esta fase como demuestran las micrografías de la Figura 67-A, lo que facilitó el desarrollo de biopelícula, la cual, al desprenderse, contribuyó al enturbiamiento del agua y en gran medida, como apunta el altísimo coeficiente de correlación ($r_{Biop.-TurbEF} = 0,921$; Tabla 29). Y otro factor que también pudo repercutir en ese aumento de la turbidez fue la temperatura ($r_{Tª.-TurbEF} = 0,430$; $\alpha=19^\circ$ en Figura 44). Tanto es así que si se compara la evolución de la turbidez con la de la temperatura en esta fase (Figura 50-A y Figura 47-A), ambas gráficas evolucionan al alza con el transcurso del tiempo de forma paralela. Álvarez-Arroyo *et al.* (2015) también evidenciaron una fuerte correlación positiva entre temperatura y turbidez en condiciones de operación muy similares pero, al igual que sucedió en el presente trabajo, no fue tanto de manera directa causa-efecto (temperatura-turbidez), sino de forma indirecta relacionada con la formación de biopelícula y depósitos de materia orgánica desencadenados por las altas temperaturas y el tiempo.

La fase O_3+UF presentó un comportamiento radicalmente distinto al resto de fases. Por un lado, fue la fase que produjo un agua potable significativamente más turbia que el resto, con un valor medio de 2,02 UNT frente a 1,52 y 1,55 UNT de las fases $CF+UF$ y UF respectivamente (Tabla 35). Como se ha referido con anterioridad, esta diferencia cuantitativa en $Turb_{EF}$ fue consecuencia de su correlación con $Turb_{INF}$ ($r=0,423$; Tabla 30), relación que también postularon Blokker y Schaap (2015). Pero también el $\Delta Turb$ medio producido fue el más alto (0,32 UNT; Tabla 35), y con más frecuencia, con el 77% de los incrementos positivos que se representan en la Figura 51. Entonces esto indica que los altos valores de $Turb_{EF}$ se debieron en gran medida a la turbidez del agua tratada y, en menor medida, a la acción del O_3 residual en la RDE, que pudo contribuir al desprendimiento de los depósitos acumulados en las paredes de la tubería (Videla *et al.*, 1995), incrementando así la turbidez en la RDE. También cabe la posibilidad de que el ozono residual corroyese parte del material plástico de la tubería e incrementase así la turbidez del agua, pero ni la corrosión fue un parámetro medido en esta experimentación, ni la comunidad científica tiene aún conocimiento de que esta hipótesis se dé en materiales plásticos, aunque sí en materiales más tradicionales de la construcción de RDAP (Montgomery, 2010; Wei *et al.*, 2004).

En la fase de UF el Δ Turb medio fue el más bajo de los 3 periodos (0,08 UNT) y sin fluctuaciones evidentes en dirección a ninguna tendencia evolutiva clara (Figura 51-C), pero la tendencia de los valores netos de turbidez sí fueron ligeramente ascendente (Figura 50-C) como en la fase de CF+UF pero con EC_{INF} y ED_{EF} más parecidas entre sí. La EC_{INF} fue mayor en la UF que en la CF+UF (0,006 frente a 0,001 UNT/semana), lo cual era esperable porque la implantación de un pretratamiento de CF ayuda a un menor agotamiento de la membrana, produciendo así un agua de menor turbidez (Rojas-Serrano et al., 2015c). Sin embargo, la EC_{EF} fue considerablemente menor en la UF que en la CF+UF (0,003 frente a 0,007 UNT/semana). Esta paradoja sobre la evolución de la turbidez del agua fue debida principalmente a la diferencia del ensuciamiento producido en el interior de la RDE entre ambas fases, ya que durante la CF+UF se dio un desarrollo de biopelícula y una acumulación de depósitos evidente y, sin embargo, en la fase de UF las micrografías desvelan que estos dos componentes no se dieron (Figura 67-C, donde apenas se aprecia suciedad en las paredes de la tubería ni biopelícula alguna). Y esta diferencia de ensuciamiento de la red radica a su vez en otra cuestión. A pesar de que la UF directa obtuvo valores significativamente más altos en COD_{INF} (Tabla 37), lo que pone de manifiesto la ineficiencia de las membranas de ultrafiltración en retención de MOD (Rojas et al., 2010; Rojas et al., 2008), esta materia disuelta no contribuye a la turbidez del agua, a no ser que se depositara sobre la superficie de la tubería por alguna causa concreta y después se desprendiera hacia el agua. Pero en la fase de UF, a diferencia de la CF+UF, no hubo presencia de hierro en la RDE que promoviera el enturbiamiento del agua potable como se ha referenciado anteriormente. Por otro lado, cabría plantearse la influencia de la temperatura en esta fase, pero la UF fue llevada a cabo en los meses más fríos y se alcanzaron rangos de temperatura significativamente más bajos que en el resto de fases. Y aunque la tendencia de estos dos parámetros (temperatura y turbidez) fue ascendente en el tiempo (Figura 47-C y Figura 50-C), los análisis de Pearson y RDA confirman que no hubo correlación apreciable entre ellos ($r_{T^{\circ}-TurbEF} = 0,343$ en Tabla 31; $\alpha=75^{\circ}$ en Figura 46).

Mirando únicamente las pendientes de las ecuaciones de ajuste de la Figura 51, cabría pensar que existe cierta diferencia entre las fases, sobre todo entre la CF+UF y la UF, que son las de EE_{RDE} más lejanos y con signos opuestos. Pero en ambos casos el valor absoluto de este término es tan poco significativo que no puede considerarse una diferencia como tal en la tendencia, y menos teniendo en cuenta las desviaciones tan grandes que presenta esta variable con respecto a la media. Por tanto, puede decirse que, en el tiempo de operación ensayado, no hubo una tendencia clara del ensuciamiento en la RDE con ninguno de los tratamientos de potabilización estudiados.

Recapitulando todo lo anteriormente expuesto, puede afirmarse que el tratamiento tuvo una notable influencia en la turbidez del agua potable (afirmación apoyada por la fuerte correlación mostrada en el RDA,

$\alpha_{\text{Trat.-TurbEF}} = 159^\circ$; Figura 43), manifestada en primer lugar sobre la turbidez del agua tratada (Turb_{INF}) y, en segundo lugar, por el resto de factores dependientes del tipo de tratamiento que condicionaron la Turb_{EF} posteriormente (como el hierro o el ozono residual). No obstante, otros factores externos al tratamiento, como la temperatura ($\alpha_{\text{T}^\circ\text{-TurbEF}} = 37^\circ$), también tuvieron influencia en algunos casos por relación vinculada con parámetros microbiológicos como la biopelícula.

Por último, sólo cabe decir que a pesar de los distintos valores y tendencias que la turbidez presentó en cada fase, en ningún momento se superaron las 5 UNT que establece el RD 140/2003 para un agua potable en la red de distribución, aunque sí se sobrepasó constantemente el límite de 1 UNT que se exige en la salida de la planta de tratamiento. Es decir, la instalación experimental no fue capaz de conseguir un agua tratada con una turbidez igual o inferior a 1 UNT mediante el tratamiento de UF, ni incluso con pretratamientos, pero posteriormente la turbidez sí se mantuvo dentro de la normativa a su paso por la red, sin que esto último quiera decir que sea extrapolable a una RDAP real, puesto que la longitud de la RDE no es comparable con una a escala real.

4.2.4.2. *Materia orgánica natural*

Debido a los problemas de retención en materia orgánica disuelta por parte de las membranas de UF (Rojas *et al.*, 2008), es fundamental cuantificar y caracterizar su presencia tras el tratamiento y en la red de distribución, ya que la calidad del agua potable podría verse muy comprometida por razones que se irán exponiendo en los siguientes apartados. Para ello volverán a analizarse los mismos parámetros que en el estudio evolutivo (COT, COD, la UV_{254} e índice SUVA), realizando una comparación entre los resultados obtenidos con los distintos tratamientos de potabilización.

A la vista de los resultados de la fase 0, previsiblemente la gran mayoría de la MON se encuentre de forma disuelta en el agua ($\text{COT} \approx \text{COD}$) y el contenido en COD tras el tratamiento sea elevado, sobre todo cuando la UF no cuente con ningún pretratamiento. Además, la concentración iría en aumento tras su paso por la RDE, incremento que quizás podría ser más pronunciado en la fase de pre-ozonización, pero esto no puede asegurarse ya que en el estudio evolutivo este tratamiento se ensayó en último lugar sobre la misma RDE y esto podría haber influido en los resultados obtenidos. Y respecto a la absorbancia de la MO, no se cree que sufra grandes modificaciones a lo largo de la RDE, ya que la variación global en la fase 0 fue menor al 7%. Pero sí podrán existir ciertas diferencias motivadas tanto por factores dependientes del tipo de tratamiento, como la capacidad de la coagulación-floculación en eliminación de la fracción más hidrófoba o el poder oxidante del ozono, que provocarían descensos de UV_{254} ; como por otras variables externas (temperatura, pH...) que puedan afectar directa o indirectamente al contenido y aromatización de la MO.

4.2.4.2.1. Carbono orgánico total y disuelto

Los resultados obtenidos durante el estudio comparativo mostraron que la concentración de COT y COD fue igual en el 62 y 69% de las muestras de influente y efluente respectivamente, y en aquellas donde los valores no fueron idénticos, las diferencias eran despreciables (0,40 y 0,22 mg/L de media) y sin significancia estadística (Tabla 36). Esta similitud ente COT y COD, que también se dio en el 68% de los casos de la fase 0, era de esperar por la baja efectividad de las membranas de ultrafiltración en retención de materia orgánica disuelta (Rojas *et al.*, 2008; Rojas-Serrano *et al.*, 2015a). Por este motivo, en el desarrollo de este apartado solamente se mostrarán los resultados referentes al COD, ya que es el parámetro más controvertido en aguas tratadas con este tipo de membranas y también el empleado en el cálculo del índice SUVA.

Tabla 36: Valores medios de carbono orgánico total y disuelto del influente y efluente de la RDE durante la fase de estudio comparativo.

	INF	EF
COT (mg/L)	5,44 ± 2,46 ^a	5,65 ± 2,60 ^b
COD (mg/L)	5,04 ± 2,15 ^a	5,43 ± 2,45 ^b

^{a,b} Subconjuntos homogéneos por el método Student-Newman-Keuls (SNK) con un nivel de significación de 0,05.

Observando la Figura 53, cuyos puntos representan el incremento de COD entre la entrada y la salida de la RDE, puede verse que la mayoría de ellos se sitúan por encima del eje de abscisas (entre un 54 y 85% según la fase en cuestión; Tabla 37) y que los decrementos son menos numerosos y menos cuantitativos. Por tanto, puede decirse a grandes rasgos que el agua sufrió una pérdida de calidad en este parámetro de forma generalizada a su paso por la red de distribución en todos los casos, entrando en ella con un contenido medio de 5,04 ± 2,15 mgCOD/L y saliendo con 5,43 ± 2,45 mgCOD/L (Tabla 37), lo que supone una pérdida de calidad general del 7,7%.

Tabla 37: Valores medios de COD del influente, efluente y su incremento en la RDE, y porcentajes de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las fases del estudio comparativo.

Fase	COD (mg/L)		Incremento de COD _{EF vs INF}		
	INF	EF	$\bar{x} \pm SD$ (mg/L)	Δ (%)	∇ (%)
I) CF + UF	4,41 ± 2,07 ^a	5,24 ± 3,07 ^a	0,36 ± 1,28 ^a	60,66	39,34
II) O ₃ + UF	4,57 ± 2,32 ^a	4,53 ± 1,46 ^b	-0,30 ± 2,09 ^b	54,02	45,98
III) UF	6,17 ± 1,47 ^b	7,00 ± 1,61 ^c	0,83 ± 0,85 ^a	84,51	15,49
Global	5,04 ± 2,15	5,43 ± 2,45	0,25 ± 1,62	65,75	34,25

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos de cada parámetro por el método Student-Newman-Keuls (SNK) con un nivel de significación de 0,05.

Comparando los valores de COD_{INF} entre fases, el ANOVA revela que la UF presentó valores significativamente más altos que en el resto de fases, siguiendo el orden: UF > O₃+UF > CF+UF (Tabla 37). Si

se tiene en cuenta que el agua bruta entraba a planta con un contenido en COD de aproximadamente 6,54 mg/L (Tabla 7), las eliminaciones medias de este parámetro por parte del tratamiento representaron un 6%, 30% y 33% (UF, O₃+UF y CF+UF respectivamente). Con estos valores se aprecia la gran diferencia que hay entre la baja eliminación de COD que consiguió la membrana sola (6%) respecto de la que se consiguió cuando se añadió un pretratamiento (30% y 33%), lo que pone de manifiesto que el empleo de pretratamientos mejora notablemente la eliminación de MOD cuando se potabiliza con membranas de UF, hecho que también fue probado por Rojas-Serrano *et al.* (2016) obteniendo porcentajes de eliminación en órdenes similares ($\eta_{UF}=16\% < \eta_{O_3+UF}=29\% < \eta_{CF+UF}=42\%$).

Pero si ahora se presta atención al COD_{EF}, el orden antes mencionado para el influente se vio alterado, quedando intercambiadas las fases que contaron con pretratamiento, tal que así: UF > CF+UF > O₃+UF (orden coincidente con el parámetro Δ COD). Además, en este caso el ANOVA detectó diferencias significativas entre los valores medios de todas las fases. Estos cambios demuestran que, aunque la calidad del agua de salida de una RDAP suele estar condicionada por la calidad del agua a su entrada, también afecta la acumulación de materia en la red y su posible resuspensión, como también sostienen Blokker y Schaap (2015). Tanto es así que, a pesar de que las fases con pretratamiento (CF+UF y O₃+UF) produjeron un agua sin diferencias estadísticamente significativas en COD_{INF}, el Δ COD ocurrido en la RDE sí que fue significativamente distinto, presentando incluso valores medios con signo opuesto aunque muy bajos (0,36 y -0,30 mgCOD/L; Tabla 37).

¿Por qué existieron tales diferencias en el efluente? El motivo se encuentra fundamentalmente en dos aspectos: la calidad del influente, que fue el parámetro de mayor correlación con el contenido en COD del agua potable ($r_{COD_{EF}-COD_{INF}} = 0,721$; Tabla 28); y los efectos que tuvo el tipo de tratamiento de potabilización sobre lo concerniente al ensuciamiento en la RDE, existiendo una fuerte correlación de la variable “tratamiento” sobre el COD_{EF} según el análisis de redundancias ($\alpha=177^\circ$; Figura 43). Lógicamente también pudieron influir otras variables externas que repercutieran en el ensuciamiento de la red, pero todo ello se discutirá a continuación más en profundidad.

Durante la fase de CF+UF se obtuvieron valores de COD con una amplia dispersión en torno a las semanas 4 y 10 como se muestra en la Figura 52-A debido a las pruebas de puesta a punto del tratamiento y algunos problemas técnicos de parada/arranque de la instalación experimental, llegando a alcanzar valores puntuales de hasta 15 y 10 mgCOD/L en esos momentos. Por este motivo no pueden tenerse muy en cuenta las líneas de tendencia mostradas en dicha figura, ya que estos valores anormalmente altos al inicio del periodo dan como resultado pendientes negativas poco fiables. La coagulación-floculación produce la aglutinación de la materia en partículas de mayor tamaño, ayudando a que la membrana de UF retenga y

elimine más cantidad de materia que antes estaba disuelta (Rojas *et al.*, 2011). Esto explica que los ΔCOD en la red no fueran cuantitativamente elevados (0,36 mg/L de media) como se observa en la Figura 53-A, aunque el ratio de incrementos/decrementos fuese positivo, indicando que sí hubo cierta pérdida de calidad del agua a su paso por la RDE. La tendencia evolutiva no fue muy destacable, con una EE_{RDE} positiva pero muy leve (0,0047 mg/L-semana). Así mismo, si se observa el comportamiento de ambas corrientes en la Figura 52-A, el movimiento paralelo de los marcadores rojos y negros pone de manifiesto la alta correlación existente entre $\text{COD}_{\text{INF}}-\text{COD}_{\text{EF}}$ ($r=0,871$; Tabla 29). Todo esto se traduce en que la calidad del agua potable en esta fase dependió en gran medida de la calidad del agua producida por el tratamiento, y que la pérdida de calidad con el paso del tiempo, que no fue muy acentuada, se debió al ensuciamiento propio de la red. Dicho ensuciamiento, evidenciado en forma de biopelícula y depósitos sobre la superficie de la RDE1 (véase apartado 4.4.1), confirió un aumento de materia orgánica disuelta al agua por su resuspensión al circular el flujo de agua por la red, aunque más en forma de turbidez (Figura 50-A). Esto se apoya en lo declarado por Chien *et al.* (2009), que identifica la biopelícula como causa del aumento de COT y COA en la red.

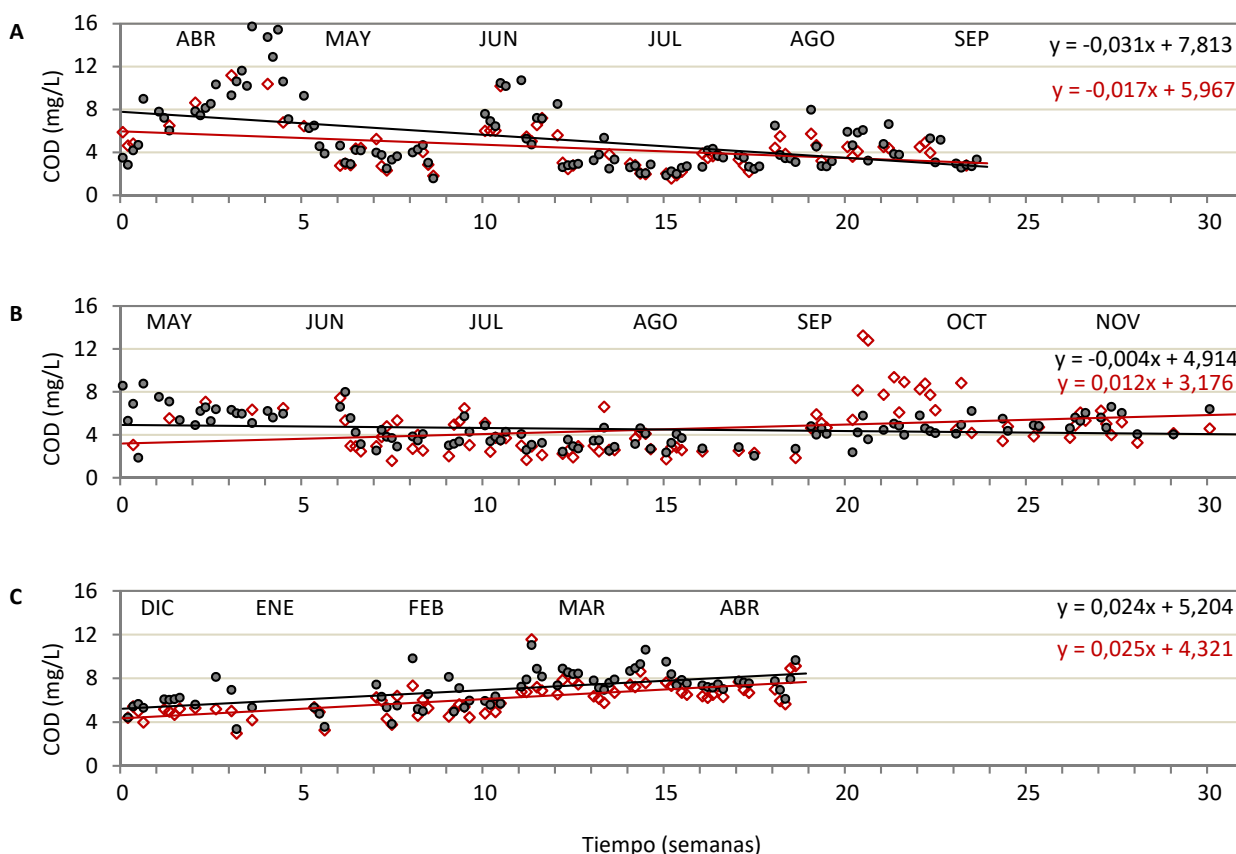


Figura 52. Evolución temporal del COD en el influente (◇) y efluente (●) de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O₃+UF (B) y UF (C).

La fase de O₃+UF fue la única fase cuyo COD_{INF} fue mayor que su COD_{EF}, lo que a priori hace pensar que el comportamiento más habitual del agua tras su paso por la RDE fue el de disminución del contenido en COD, o lo que es lo mismo, el de mejora de la calidad del agua. En este sentido hay que señalar que dicha mejora no fue muy cuantitativa, entrando a red con un COD de $4,57 \pm 2,32$ mg/L y saliendo de ella con $4,53 \pm 1,46$ mg/L, lo que supuso un Δ COD medio de $-0,30$ mg/L, valor que se salía del subconjunto homogéneo formado por las otras dos fases (Tabla 37). Este pretratamiento de ozonización produjo un agua tratada de contenido en COD similar al producido por el pretratamiento de CF, y sin embargo el COD_{EF} fue significativamente diferente según revelaba el ANOVA, lo que significa que el comportamiento de este parámetro dentro de la RDE fue diferente. De hecho, la correlación entre COD_{INF}-COD_{EF} también fue más baja en esta fase de O₃+UF que en la fase de CF+UF (0,451 vs. 0,871), lo que apoya que esta vez lo sucedido en el interior de la red jugó un papel más importante. Si se observa la Figura 52-B, no existió una tendencia lineal marcada en ningún sentido, sino que más bien se aprecia una tendencia cambiante en “V”, siendo descendente en la primera parte del ensayo y ascendente en la segunda. Además, en la primera mitad los marcadores rojos (INF) están por debajo de los negros (EF) y en la segunda mitad se invierten, lo que lógicamente provoca que las líneas de ajuste se entrecrucen. Esto se aprecia mejor en la Figura 53-B, donde en esa primera mitad la mayoría de marcadores (que aquí representan Δ COD) están sobre el eje de abscisas y en la siguiente mitad están bajo él, generando una proporción de Δ/∇ más equilibrada (Tabla 37). Es decir, todos estos datos indican que en un principio la propensión habitual durante la fase de O₃+UF fue la de aumentar el contenido en COD del agua en su transcurso por la RDE y después, con el tiempo, fue cambiado hacia lo contrario (descenso de COD en la red).

¿A qué se debió tal comportamiento durante la fase de O₃+UF? Partimos del hecho de que existió O₃ residual en la RDE como se ha venido argumentando en el estudio de diversos parámetros. En la primera parte del periodo el Δ COD en la red pudo deberse al efecto “fragmentador” que tiene el ozono sobre la MO (Galapate *et al.*, 2001), transformándola de mayor a menor tamaño, haciéndola más disuelta (\uparrow COD). Esta hipótesis es coherente con lo que muestran las micrografías de la Figura 67-B, con depósitos de MO poco numerosos y muy disgregados en estos primeros meses; coherente también con la Figura 55-B, donde la mayoría de los marcadores (Δ UV₂₅₄) fueran negativos, lo que implica que la MO pasó de mayor a menor UV₂₅₄ en la red, lo cual sucede por acción del O₃ al convertir la fracción hidrófoba en hidrófila (de $>$ a $<$ UV₂₅₄) como señalaron Swietlik *et al.* (2004). En la segunda parte del periodo, el número de depósitos de materia sobre la superficie de la RDE fue mayor (Figura 55-B), desprendiéndose una parte por el O₃ residual presente en la RDE (Videla *et al.*, 1995) y/o haciéndola más biodegradable para las bacterias (van der Kooij *et al.*, 1989), lo que confería más COD al agua. Además, también es posible que con el tiempo y el fuerte poder oxidante del

O₃, se produjera la degradación polimérica del polietileno (Devilliers *et al.*, 2011), aportando subproductos orgánicos de corrosión al agua (Zhang y Liu, 2014).

Para terminar con el análisis de esta fase y la influencia del tratamiento sobre el contenido en COD del agua, es conveniente apuntar que el comportamiento en la fase 0 donde se ensayó con este mismo tratamiento no fue el mismo, puesto que el aumento de COD en la RDE se dio en el 100% de los casos y con un ensuciamiento medio del casi 90% (Respecto a la evolución temporal no se aprecia una tendencia muy clara en el contenido de COD pero según la información de la Figura 29 sí que puede afirmarse que el agua sufrió un empeoramiento de la calidad conforme pasó el tiempo ya que en las dos etapas iniciales este parámetro aumentaba en la red a razón de un 12,6 % de media mientras que en la última etapa lo hizo a una razón media del 90 % (Tabla 18). **El análisis de Pearson muestra una correlación positiva alta entre el COD de entrada y de salida a la red (71%, Tabla 12), pero esto se cumple con carácter global en esta fase y no en el caso particular de cada subetapa, ya que como se observa en la Tabla 18 a menor CODINF no siempre se obtuvo menor CODEF por etapa. Sin embargo, ese ensuciamiento progresivo en la RDE sí podría explicarse de manera coherente por el propio paso del tiempo y por la influencia del tipo de tratamiento de potabilización como apoya el análisis de redundancias (Figura 21), obteniendo un agua de peor calidad cuanto más tiempo de experimento había transcurrido y sobre todo con el tratamiento de pre-ozonización (Figura 29).**

Haciendo distinción entre estas etapas, la UF y CF+UF fueron similares como ratifica el estudio estadístico de varianzas que indica que ambas etapas forman un subgrupo homogéneo en cuanto al contenido en COD del agua tanto en el influente como en el efluente. Centrándonos en los valores de influente de la Tabla 18, se pone de manifiesto que la asociación de CF+UF fue más efectiva en eliminación de COD que la asociación de O₃+UF con respecto a la UF sin pretratamiento, como también obtuvieron Rojas-Serrano *et al.* (2016) en su comparación de estos mismos tratamientos. Por otro lado, los incrementos de este parámetro producidos en la red de distribución no fueron muy elevados y tampoco presentaron diferencias estadísticamente significativas entre ambas etapas (Tabla 18).

Tabla 18). Con ello se quiere aclarar cómo en el estudio evolutivo influyeron otros factores en el comportamiento de COD (como tiempo, depósitos de materia, temperatura, biopelícula, etc.) y que no todo era achacable al tipo de tratamiento de potabilización empleado.

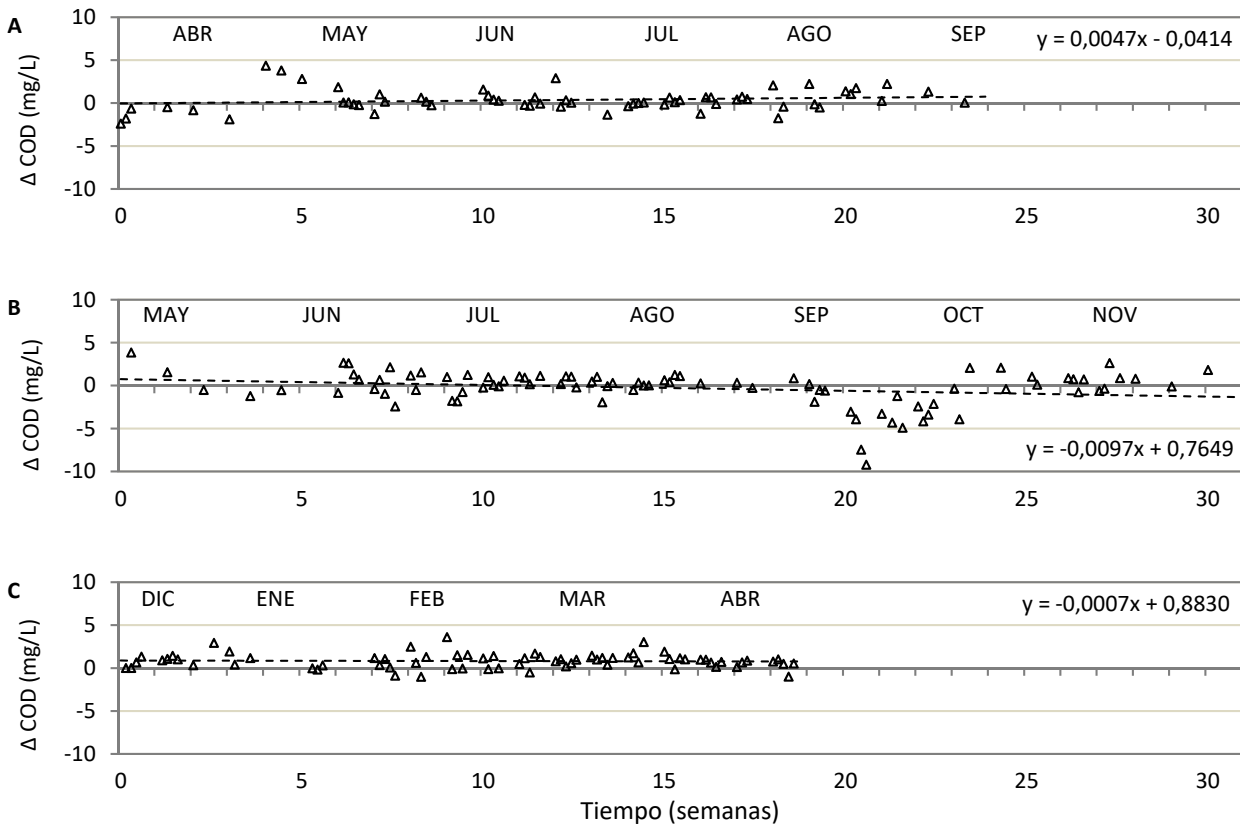


Figura 53. Evolución del incremento de COD en la RDE durante las fases de CF+UF (A), O₃+UF (B) y UF (C).

El COD en la fase de UF directa tuvo un comportamiento más estable, con menos fluctuaciones en todos sus datos. El COD_{INF} fue significativamente mayor que en el resto de fases por la ineficiencia de la membrana de UF a la retención de MOD (Rojas *et al.*, 2008; Rojas-Serrano *et al.*, 2015a). El contenido en COD aumentaba a lo largo de la RDE pero de una forma constante como así se observa en la Figura 53-C, donde los puntos representados (ΔCOD) no muestran fluctuaciones destacables, y siguen una tendencia muy constante en torno a la línea de ajuste, cuya pendiente es prácticamente horizontal (EE_{RDE} = -0,0007 mg/L-semana). Este pequeño y constante ΔCOD (0,83 mg/L; Tabla 37) se debió a que no existió ningún otro factor que alterase la materia orgánica en la red (cosa que sí sucedió en otras fases), por lo que la calidad del agua potable dependió básicamente de la calidad del agua tras el tratamiento, como demuestra el alto coeficiente de correlación entre ambos parámetros ($r_{\text{CODINF-CODEF}}=0,852$; Tabla 31). Además, según Lavonen *et al.* (2013), la cloración de la MON es selectiva hacia los compuestos con más dobles enlaces y más número de átomos de oxígeno por carbono (o sea, más aromáticos), por lo que si el agua producida por la UF fue la de mayor carácter aromático con diferencia del resto de las fases, pudo ser que la cloración en este caso no reaccionara tanto con toda la materia, dejando más cantidad de COD en el agua. Debe notarse que el ΔCOD medio de la fase de UF fue el más alto de todas las fases, pero en realidad, comparando las gráficas de la Figura 53, se

descubre que no fue la fase de incrementos absolutos más grandes sino que las demás tuvieron dichos incrementos más contrarrestados entre positivos y negativos. Respecto a la evolución en el tiempo, la Figura 52 muestra claramente que la tendencia de COD_{INF} y COD_{EF} fue ascendente y prácticamente en paralelo como evidencia la similitud de sus pendientes de ajuste (0,024 y 0,025 mg/L-semana). Esto indica que la calidad del agua potable empeoró a razón de la calidad del agua tratada (razón constante) pero con una tendencia evolutiva en aumento de COD como consecuencia del agotamiento de la vida útil de la membrana de UF (Rojas-Serrano *et al.*, 2015b).

Sintetizando todos estos resultados se puede decir que la calidad del agua en referencia al COD dependió del tratamiento de potabilización. Mientras que la CF+UF y la UF tuvieron una tendencia leve al empeoramiento de la calidad dentro la RDE y evolutivamente, la O_3 +UF presentó un comportamiento cambiante tanto en la evolución de la calidad de las corrientes, con tendencia de mejora al principio y de empeoramiento al final, como dentro de la propia red, con periodos donde el agua aumentaba en COD y otros periodos donde disminuía.

Independientemente del comportamiento y las tendencias, los valores de COD obtenidos en el agua final oscilaron en su mayoría entre 4 y 8 mg/L aproximadamente, lo que puede considerarse un agua de calidad media-baja, incluso no sería potable si se atiende a lo señalado en el documento publicado por el Ministerio de Sanidad y Consumo consensuado con las Comunidades Autónomas en marzo de 2005, que estipula un valor de referencia de 7,0 mgCOT/L para calificar un agua de “no apta” para el consumo humano, valor que fue sobrepasado en multitud de ocasiones en las 3 fases del estudio comparativo.

4.2.4.2.2. Absorbancia ultravioleta a 254 nm

Como ya se ha comentado con anterioridad, la UV_{254} es un parámetro usado habitualmente como indicador del carácter aromático e hidrófilo/hidrófobo de la materia orgánica del agua (Chin *et al.*, 1994; Metsämuuronen *et al.*, 2013), e incluso propuesto como herramienta para medir el crecimiento bacteriano (Ikonen *et al.*, 2013). Pero también debe partirse de la premisa de que una modificación en la medida de UV_{254} no siempre debe atribuirse única y exclusivamente a una alteración de la aromaticidad de la materia orgánica, sino también de la cantidad de ésta. Es un hecho probado que existe bastante correlación entre los parámetros COD y UV_{254} en aguas (Huang *et al.*, 2016^a; Chow *et al.*, 2009), por lo que aguas con más cantidad de COD, generalmente presentan más UV_{254} . De hecho, en este trabajo los coeficientes de correlación de Pearson entre estos dos parámetros fueron considerables en todas las fases ($r_{UV_{254}-COD}$ entre 0,525 y 0,721 según la corriente; Tabla 28). Es decir: imaginando dos muestras de agua cuya MON tuviera idéntico carácter aromático (misma composición química o molecular) pero una con más concentración de materia que la otra

(entiéndase COD), la primera proporcionaría una medida de mayor absorbancia que la segunda, ya que la materia es la que se encarga de “atrapar” más luz incidente durante el proceso de medida.

A priori, una filtración por membrana no modifica la composición química de la materia orgánica del agua, solamente es una separación física. Pero al retener una parte (la de mayor tamaño) y dejar pasar la más disuelta, es lógico que la medida de UV₂₅₄ del agua tratada sea menor que la del agua bruta. Este hecho queda reflejado si se comparan los valores de UV₂₅₄ y COD del agua bruta (14,08 m⁻¹ y 6,54 mgCOD/L; Tabla 7) con los del agua tratada únicamente mediante UF (10,20 m⁻¹ y 6,17 mgCOD/L; Tabla 38 y Tabla 37), siendo estos últimos los más bajos para ambos parámetros. Cosa distinta es que se use algún otro pretratamiento, como es el caso de las fases I y II, donde la aromaticidad de la MON del agua sí puede sufrir alteraciones por el efecto de agentes externos añadidos (como el coagulante o el ozono). Y posteriormente, en el trascurso por la red de distribución, también pueden producirse ciertas modificaciones de absorbancia como se comentará a continuación.

Tabla 38: Valores medios de UV₂₅₄ del influente, efluente y su incremento en la RDE, y porcentajes de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las fases del estudio comparativo.

Fase	UV ₂₅₄ (m ⁻¹)		Incremento de UV ₂₅₄ EF vs INF		
	INF	EF	$\bar{X} \pm SD$ (m ⁻¹)	Δ (%)	∇ (%)
I) CF + UF	3,56 ± 3,70 ^a	5,43 ± 6,29 ^a	0,39 ± 1,15 ^a	70,91	29,09
II) O ₃ + UF	6,42 ± 2,04 ^b	5,43 ± 1,76 ^a	-0,89 ± 1,46 ^b	29,07	70,93
III) UF	10,20 ± 2,66 ^c	9,95 ± 2,89 ^b	-0,25 ± 2,24 ^c	40,58	59,42
Global	6,86 ± 3,79	6,54 ± 4,76	-0,34 ± 1,42	43,81	56,19

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos de cada parámetro por el método Student-Newman-Keuls (SNK) con un nivel de significación de 0,05.

Comenzando por el agua tratada (INF), la influencia del tratamiento fue evidente y significativa, ya que el ANOVA reveló diferencias de UV₂₅₄ entre las tres fases ensayadas. Comparando la UV₂₅₄ del agua bruta (14,08 m⁻¹; Tabla 7) con la obtenida en cada fase (Tabla 38), los rendimientos en eliminación de UV₂₅₄ de cada tratamiento fueron: $\eta_{UF}=28\% < \eta_{O_3+UF}=54\% < \eta_{CF+UF}=75\%$. Nótese que siguen el mismo orden que se obtuvo para la eliminación de COD, lo que pone de manifiesto nuevamente la relación entre ambos parámetros. Los resultados son congruentes con lo referenciado en bibliografía (Rojas-Serrano *et al.*, 2016; Wittmer *et al.*, 2015, Hyung *et al.*, 2000).

La UF directa fue la que menos eliminación de UV₂₅₄ dio, con una media de 10,20 ± 2,15 m⁻¹, debido únicamente a la eliminación de materia orgánica (reducción del 6% de COD y 11% de COT) y no a ninguna modificación química de ella como se ha explicado antes.

El tratamiento de O₃+UF fue el siguiente que más redujo los valores de UV₂₅₄ con una media de 6,42 ± 2,04 m⁻¹ (Tabla 38), es decir, un 37% más efectivo que la UF directa. Esto concuerda con los resultados de Hyung *et al.* (2000), donde pasaron de una reducción del 35% con la UF, al 64% con la combinación de O₃+UF. El descenso de la UV₂₅₄ en esta fase se debió en parte a la reducción en la cantidad de MON por la combinación de ambos tratamientos, hecho que se manifestó en una eliminación del 29 y 30% del COT y COD respecto al agua bruta. Y por otra parte pudo deberse también al efecto de la pre-ozonización sobre la MON, que la transforma de alto peso molecular/hidrófoba a bajo peso molecular/hidrófila (Galapate *et al.*, 2001; Swietlik *et al.*, 2004; Zhou *et al.*, 2015), siendo esta última fracción de la materia la que tiene una menor absorbancia.

Y el influente que presentó el valor medio de UV₂₅₄ más bajo de todas las fases fue el obtenido mediante CF+UF, coincidiendo con el estudio de Rojas-Serrano *et al.* (2016), permeado que presentó una UV₂₅₄ media de 3,56 ± 3,70 m⁻¹ (Tabla 38), es decir, un 65% más efectiva que la UF sola. Nuevamente, esta reducción de la UV₂₅₄ con respecto al agua bruta estuvo motivada por la conjugación de dos factores: i) la reducción en la cantidad de MON al combinar los tratamientos CF y UF, como así demuestran los valores de COT y COD de esta fase (disminución del 34% y 33% con respecto al agua bruta); y ii) la reducción del carácter aromático de dicha materia, puesto que el tratamiento de CF favorece la eliminación de la materia hidrófoba/aromática en mayor proporción que la hidrófila (Matilainen *et al.*, 2002; Parsons *et al.*, 2007; Tapia *et al.*, 2011), es decir, que elimina más materia aromática que no aromática, de ahí la bajada de UV₂₅₄.

Al igual que sucedió en el resto de parámetros, y como aseguraban Blokker y Schaap (2015), la calidad del agua de salida de la RDE estuvo en parte condicionada por la calidad del agua de entrada a ella, lo que no descarta que otros factores influyeran también. Esta relación viene apoyada por el alto coeficiente de correlación de Pearson que presentaron las absorbancias de entrada y salida ($r_{UV_{INF}-UV_{EF}} = 0,895$; Tabla 28). Pero mientras en el INF las fases se ordenaron de mayor a menor UV₂₅₄ tal que UF > O₃+UF > CF+UF (y con diferencias estadísticamente significativas entre todas ellas), en el caso del efluente el orden fue UF > CF+UF > O₃+UF (aunque sin diferencias significativas entre las dos últimas). Además, mientras la tendencia más habitual en el resto de parámetros fue la de perder calidad al paso por la RDE (aumento del valor paramétrico), en el caso de la UV₂₅₄ fue al contrario como demuestran los valores de ΔUV_{254} . Mientras que en la fase de CF+UF el ΔUV_{254} medio fue positivo (0,39 m⁻¹), en las fases de O₃+UF y UF fueron negativos (-0,89 y -0,25 m⁻¹ respectivamente), encontrándose diferencias estadísticamente significativas entre las tres fases para este parámetro (ΔUV_{254} ; Tabla 38).

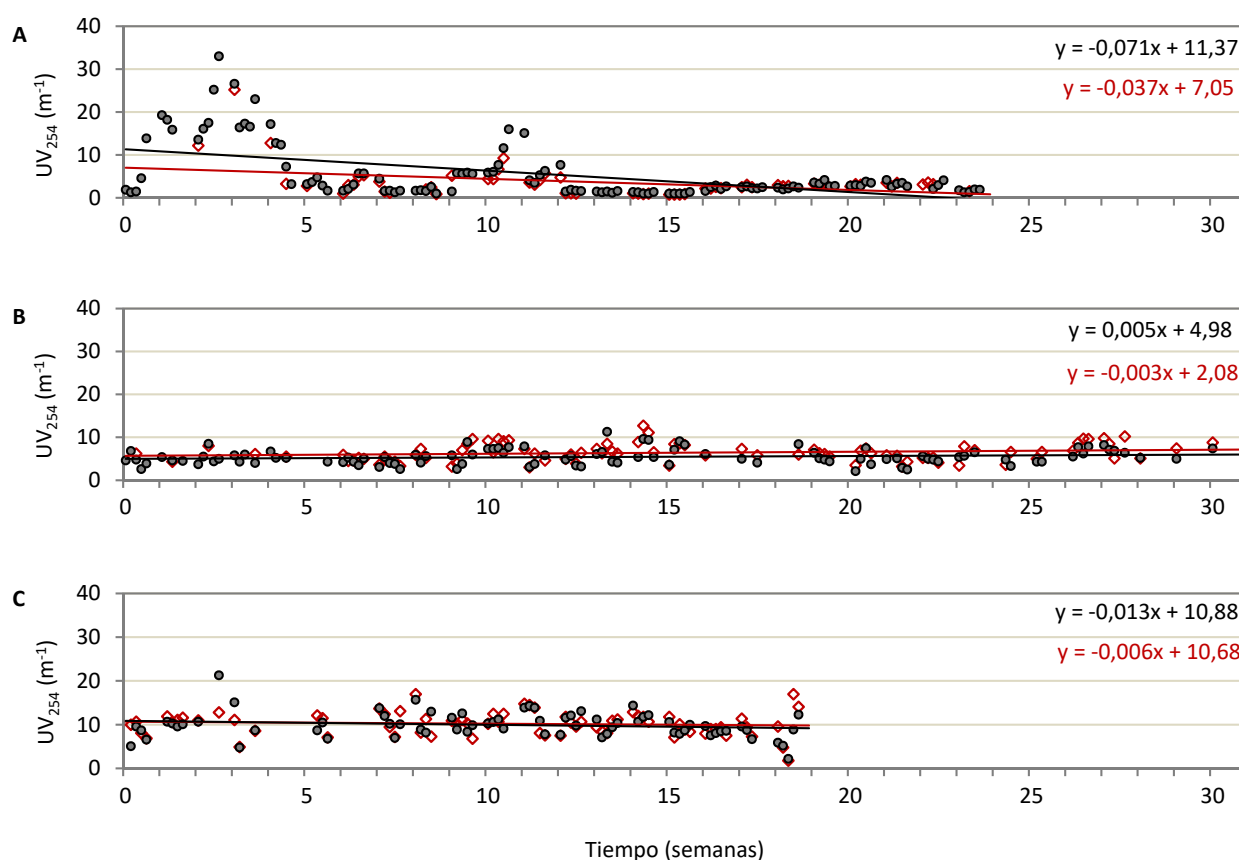


Figura 54. Evolución temporal de la UV_{254} en el influente (\diamond) y efluente (\bullet) de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O_3 +UF (B) y UF (C).

Este cambio de comportamiento puede encontrar su justificación en la combinación de los dos factores mencionados anteriormente que intervienen en la medida de la UV_{254} (cantidad de MON y aromaticidad de la misma) y en cuál de ellos se dé en mayor grado. Como se observa en la Figura 55-A, el porcentaje de incrementos frente a decrementos en la fase de CF+UF fue bastante apreciables, con un ratio de 71% a 29% (Tabla 38). Esto quiere decir que, durante esta fase, la tendencia más común fue la de aumentar en la medida de UV_{254} , lo que estuvo motivado principalmente por el aumento de COD en la red (véase apartado 4.2.4.2.1) porque, aunque la CF rebaja de UV_{254} por eliminación de la fracción más hidrófoba de la materia (Matilainen *et al.*, 2002; Tapia *et al.*, 2011), pasado el efecto del coagulante y el tratamiento, ya en la red no provoca cambios en la aromaticidad de la MON. Otro factor que influyó en el hecho de que esta fuera la única fase que experimentara un aumento de UV_{254} en la RDE fue la biopelícula aquí desarrollada (véase apartado 4.4), ya que un aumento de UV_{254} es reflejo del crecimiento bacteriano en RDAP como apuntaron Ikonen *et al.* (2013).

Sin embargo, en la fase O_3+UF la tendencia más habitual fue la del descenso de UV_{254} , con un 71% de incrementos frente a un 29% de decrementos que se visualizan en la Figura 55-B. En esta fase la variación en contenido en COD no fue casi apreciable (de 4,57 a 4,53 mgCOD/L de media; Tabla 37), por lo que la explicación se encuentra en el efecto del ozono que sí llegó a la RDE. Este O_3 residual oxidó la fracción hidrófoba de la MON, de mayor UV_{254} , a hidrófila, de menor UV_{254} (Swietlik *et al.*, 2004), provocando esa bajada. Los resultados coinciden con numerosas investigaciones donde señalan el efecto del ozono como promotor del descenso de UV_{254} por transformar la MON de alto peso molecular/hidrófoba en materia de bajo peso molecular/hidrófila (Galapate *et al.*, 2001; Swietlik *et al.*, 2004; Hua y Reckhow, 2013; Zhou *et al.*, 2015), y según detallaban Huang *et al.* (2005), el O_3 conduce a compuestos alifáticos de menor peso molecular, los cuáles son menos sensibles a ser detectados por UV que los compuestos aromáticos o fenólicos. Por otro lado, los resultados también concuerdan con lo apuntado por Tan *et al.* (1991), cuyo estudio concluía que el ozono produce pequeñas reducciones de COD pero mayores en absorbancia UV, como fue el caso de esta fase.

Finalmente, el agua de la fase de UF fue la que menos cambios de UV_{254} sufrió en su circulación por la RDE, con un porcentajes de incrementos y decrementos equilibrados (41% vs. 59%; Tabla 38) y cuantitativamente más pequeños que en el resto de fases (nótese marcadores de la Figura 55-C más cercanos al eje de abscisas). Este comportamiento más homogéneo y constante se debe a que esta fase no contó con ningún factor “añadido” que pudiera alterar el carácter aromático de la MON (como el ozono residual), más allá del efecto de la cloración que, si bien puede alterar la estructura de la MON mediante reacciones de oxidación y disminuir con ello la UV_{254} (Ivancev-Tumbas *et al.*, 1999), fue un factor que todas las fases tuvieron en común (con CRL controlado y constante) y que pudo verse contrarrestado con el aumento de COD de esta fase (de 6,17 a 7,00 mg/L de media; Tabla 37). Los motivos expuestos se reafirman con el análisis de Pearson, cuyos coeficientes de correlación para UV_{EF} más altos y significativos se dieron con UV_{INF} y COD_{EF} (0,677 y 0,472 respectivamente; Tabla 31).

Con respecto al comportamiento de la UV_{254} a lo largo del tiempo, la evolución de la calidad tanto del permeado (influyente) como del agua clorada (efluente) presentaron una absorbancia ultravioleta prácticamente constante durante los meses de experimentación como así delatan las pendientes de las distintas ecuaciones de ajuste de la Figura 54, todas muy próximas a cero (EC_{INF} y $EC_{EF} \approx 0$). Tan sólo existe una pendiente aparentemente más elevada en la fase de CF+UF (Figura 54-A) pero en realidad ello sucede porque al inicio del periodo se dieron valores anormalmente alto por causas ajenas a la investigación (véase apartado 4.2.4.2.1), y de ahí que la línea descienda ligeramente hacia el periodo final de ensayo. Pero obviando esas primeras semanas más anómalas, los marcadores de la gráfica se mantuvieron muy constantes

y sin apenas dispersión respecto de la línea horizontal. Lo mismo ocurre con el parámetro ΔUV_{254} , donde la tendencia temporal es prácticamente constante e independiente de la fase de estudio de la que se trate (Figura 55), lo que indica que la evolución del ensuciamiento dentro de la RDE (EE_{RDE}) también se mantuvo sin alteraciones con el transcurso del tiempo. Todo ello hace pronosticar que la UV_{254} no sea un parámetro que afecte a la calidad del agua de una red de distribución con el paso del tiempo, como también indicaron Huang *et al.* (2016) en el caso de una red real.

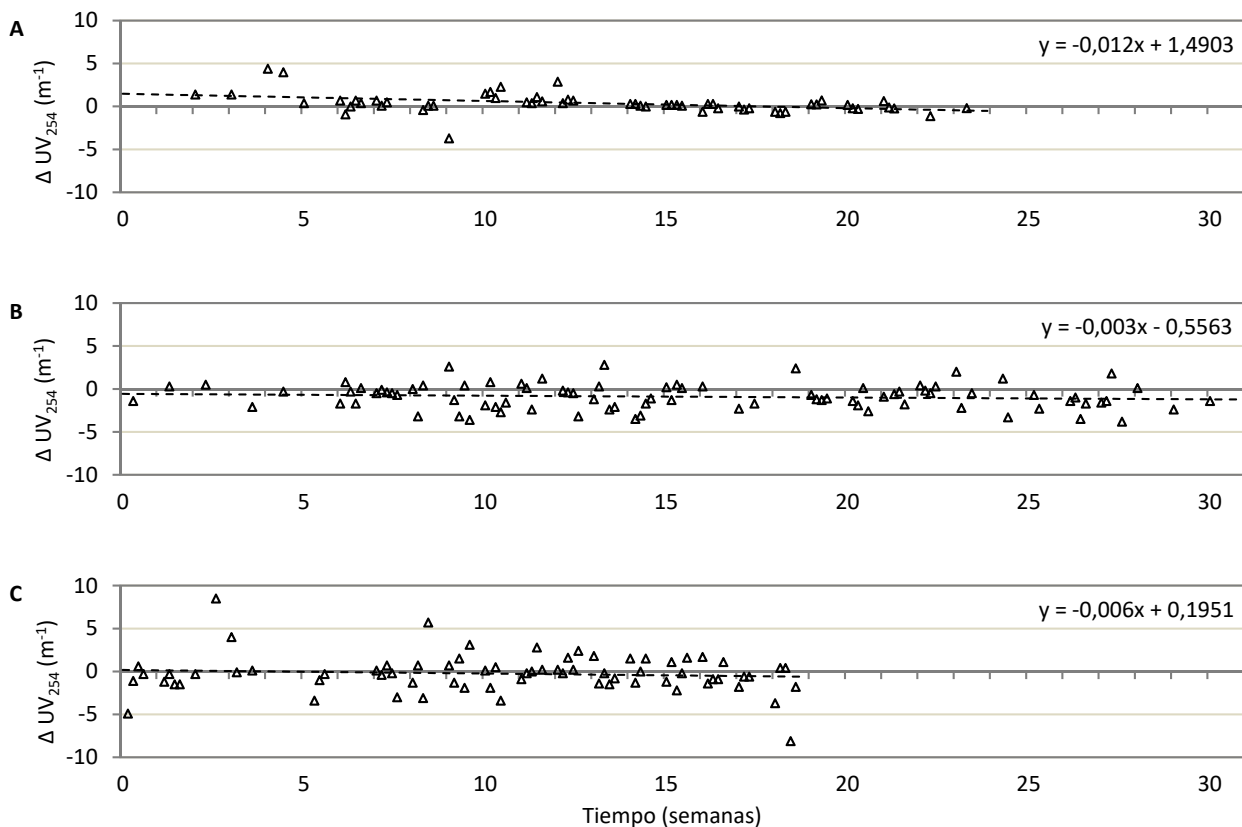


Figura 55. Evolución del incremento de la UV_{254} en la RDE durante las fases de CF+UF (A), O_3 +UF (B) y UF (C).

A la vista de todo lo expuesto en este apartado, puede decirse que el tratamiento tuvo influencia en la medida de UV_{254} del agua, primero de forma directa sobre la calidad del agua permeada, pero también indirectamente porque el tratamiento fue responsable de algunos comportamientos que se produjeron en la RDE como, por ejemplo, la disminución de UV_{254} por efecto del O_3 residual o el aumento de ella por efecto de la biopelícula y el recrecimiento bacteriano de la CF (que se debió a su vez al hierro residual procedente del pretratamiento, y a la temperatura).

Por último, respecto a valores estándares sobre UV_{254} , la legislación no recoge ningún límite ni referencia para tal parámetro. Y si se consultan bases bibliográficas, éstas reflejan una amplia variedad de

valores en torno a los que se mueve la absorbancia UV del agua en RDAPs reales, yendo desde los $0,2 \text{ m}^{-1}$ hasta valores de 10 m^{-1} considerados altos por los propios autores (Ikonen *et al.*, 2013; Chow *et al.*, 2009; Bai *et al.*, 2006; Kumari y Gupta, 2015), y dependiendo de muchos aspectos como la procedencia del agua, sus propiedades físico-químicas, el tipo de tratamiento de potabilización empleado, las condiciones y características del sistema de distribución, etc. Por tanto, según estas referencias citadas, puede decirse que el agua potable producida en el estudio comparativo presentó unos valores de UV_{254} medio-altos ($6,54 \pm 4,76 \text{ m}^{-1}$; Tabla 38), lo cual guarda relación con el parámetro COD (relación ya referenciada por la comunidad científica y por este trabajo), que determinó una calidad media-baja ($5,43 \pm 2,45 \text{ mg/L}$; Tabla 37).

4.2.4.2.3. Índice SUVA

Como se verá a lo largo de este apartado, puesto que el índice SUVA es una relación matemática entre UV_{254} y COD, su comportamiento y tendencia estuvo fuertemente marcado por el comportamiento de estos dos parámetros, siendo más similar a uno o a otro en función de cuál de ellos presentara más correlación con SUVA. Es importante destacar que, por su ecuación de cálculo, puede ocurrir que dos muestras de agua presenten un mismo valor de SUVA, aunque sus valores de UV_{254} y COD sean distintos. Es decir, aguas con distinta concentración de materia orgánica y de distinta composición o aromaticidad pueden resultar con medidas de SUVA idénticas. Es por ello por lo que su valor debe tratarse e interpretarse con cautela.

El índice SUVA no está contemplado en la normativa de aguas de consumo humano como un indicador de calidad, pero James K. Edzwald, junto con otros colaboradores, propusieron unos valores guía tras numerosos estudios y análisis de aguas (Edzwald y Van Benschoten, 1990; Edzwald *et al.*, 1985), que hoy en día son de uso habitual por la comunidad científica. En resumen, estos valores guía son (Edzwald y Tobiason, 1999):

- $SUVA < 2 \text{ L/mg-m}$: la MON se caracteriza por material mayoritariamente no-húmico, baja hidrofobicidad y bajo peso molecular.
- $SUVA$ entre 2 y 4 L/mg-m : la MON se caracteriza por una mezcla de sustancias húmicas y no-húmicas, mezcla de MON hidrófila e hidrófoba, y diversidad de pesos moleculares.
- $SUVA \geq 4 \text{ L/mg-m}$: indican que la MON está compuesta en su mayoría por sustancias húmicas, de alta hidrofobicidad y de alto peso molecular. La eliminación de COD mediante coagulantes de aluminio suele ser buena ($> 50 \%$) y algo mejor para coagulantes de hierro.

Edzwald y Tobiason (1999) también señalan la eliminación de COD mediante coagulantes de aluminio, que oscilan para esos tres intervalos definidos entre <25%, 25-50% y >50% respectivamente (algo mayor para coagulantes de hierro).

Entonces, bajos estos criterios y observando la Tabla 39, donde se refleja que el agua entró en la RDE con un SUVA de $1,44 \pm 0,72$ L/mg-m y salió de ella con $1,17 \pm 0,57$ L/mg-m, puede decirse que los valores de este índice siempre fueron bajos (<2 L/mg-m), por lo que su MON fue de bajo carácter húmico, aromaticidad e hidrofobicidad, y bajo peso molecular. Esta caracterización no sorprende si se tiene en cuenta que el agua bruta de alimentación a planta también presentó un SUVA bajo ($2,17 \pm 0,87$ L/mg-m, Tabla 7). Además, como viene sucediendo en todos los parámetros analizados, la calidad del efluente estuvo muy condicionada por la calidad del influente, y en este caso no fue distinto, ya que el análisis de Pearson reflejó una fuerte correlación entre $SUVA_{INF}$ y $SUVA_{EF}$ de 0,828 en el estudio comparativo en global (Tabla 28).

Tabla 39: Valores medios de SUVA del influente, efluente y su incremento en la RDE, y porcentajes de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las fases del estudio comparativo.

Fase	SUVA (L/mg-m)		Incremento de SUVA $_{EF \text{ vs } INF}$		
	INF	EF	$\bar{X} \pm SD$ (L/mg-m)	Δ (%)	∇ (%)
I) CF + UF	$0,72 \pm 0,33$ ^a	$0,88 \pm 0,60$ ^a	$0,03 \pm 0,20$ ^a	55,36	44,64
II) O ₃ + UF	$1,69 \pm 0,77$ ^b	$1,29 \pm 0,50$ ^b	$-0,33 \pm 0,53$ ^b	26,44	73,56
III) UF	$1,70 \pm 0,46$ ^b	$1,46 \pm 0,39$ ^c	$-0,25 \pm 0,28$ ^b	16,90	83,10
Global	$1,44 \pm 0,72$	$1,17 \pm 0,57$	$-0,21 \pm 0,41$	30,84	69,16

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos de cada parámetro por el método Student-Newman-Keuls (SNK) con un nivel de significación de 0,05.

Pero aparte de esta observación inicial más superficial, es oportuno analizar en detalle los valores y el comportamiento de esta variable en cada una de las fases ya que el ANOVA reveló que todas las fases obtuvieron valores de SUVA significativamente diferentes en el agua potable ($SUVA_{EF}$, Tabla 39).

Conviene señalar previamente que la UV_{254} tuvo mucha mayor influencia en el SUVA que la que tuvo el COD, hecho que se cumplió en todas las fases experimentales y en ambas corrientes (INF y EF), como puede verse en todos sus coeficientes de correlación. Por ejemplo, la ratio entre los $r_{SUVA-UV_{254}}$ y $r_{SUVA-COD}$ del agua potable fueron de 0,899/0,479 en la fase de CF+UF (Tabla 29); de 0,626/-0,557 en la fase de O₃+UF (Tabla 30); y de 0,628/-0,374 en la fase de UF (Tabla 31). Esto lo que indica es que el comportamiento de SUVA siempre estuvo más explicado por el comportamiento de UV_{254} que por el de COD.

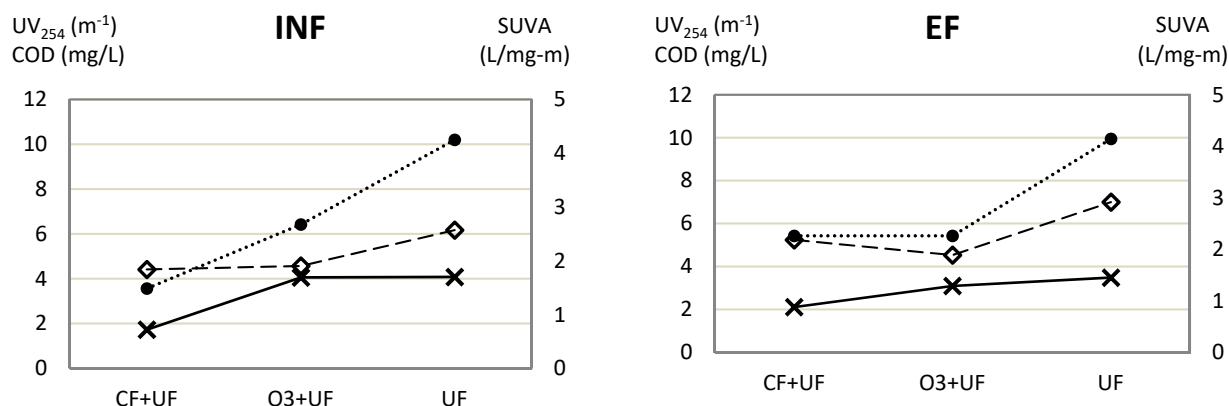


Figura 56. Evolución media de los parámetros de la materia orgánica UV_{254} (●), COD (◇) y SUVA (×) del influente (INF) y efluente (EF) de la RDE durante las fases del estudio comparativo.

En el caso de la fase de CF+UF, el agua presentó un índice SUVA medio de $0,72 \pm 0,33$ L/mg-m a la entrada de la RDE y de $0,88 \pm 0,60$ L/mg-m a la salida de ésta, siendo la única fase donde el SUVA aumentó a su paso por la red (Tabla 39). Observando la Figura 57-A, la superposición de los puntos que representan los valores de SUVA de influente y efluente hacen ver que las diferencias entre ambas corrientes es mínima (Δ SUVA medio de $0,03$ L/mg-m), así como el equilibrio entre los porcentajes de incrementos y decrementos que sufrió esta variable (55% vs 45%, Tabla 39). Esta variación del índice SUVA encuentra su explicación en la variación de los parámetros UV_{254} y COD en esta fase y sus proporciones (los cuales estuvieron influenciados por el tipo de tratamiento): mientras que la UV_{254} aumentó en un 53%, el COD también lo hizo pero en menor proporción (un 19%), por lo que el resultado global es un incremento de SUVA del 22% (

Tabla 40). Respecto al comportamiento del SUVA a lo largo del tiempo en la fase de CF+UF, obviando las fluctuaciones iniciales producidas puntualmente por motivos técnicos, la evolución de este parámetro a lo largo del tiempo de ensayo fue bastante constante como muestran las pendientes de los ajustes lineales de la Figura 57-A y Figura 58-A ($EC_{INF} = -0,002$; $EC_{EF} = -0,005$ y $EE_{RDE} = -0,0023$ L/mg-m-semana). Además, si se observa la comparación evolutiva de los 3 parámetros de caracterización de la MON en la Figura 59, se ve que el comportamiento evolutivo de SUVA siguió el mismo patrón que el de UV_{254} ya que, como se recaló al principio de este apartado, éste parámetro tuvo mayor peso en SUVA de la que tuvo COD (ratio de $r_{SUVA-UV_{254}} / r_{SUVA-COD} = 0,849/0,559$ para influente y $0,899/0,479$ para efluente; Tabla 29).

Tabla 40: Valores medios de los parámetros de caracterización de la MON del agua bruta (AB), influente (INF) y efluente (EF) de la RDE, incremento medio en la RDE (ΔX), porcentaje de eliminación por tratamiento ($\% E_T$), porcentaje de aumento por su paso a través de la RDE ($\% A_{RDE}$) y la interrelación de éste en el cálculo de SUVA para cada una de las fases del estudio comparativo.

	AB	INF	EF	ΔX	$\% E_T$	$\% A_{RDE}$	Interrelación $\% A_{RDE}$ UV / COD / SUVA
Etapa CF+UF							
UV ₂₅₄ (m ⁻¹)	14,08 ± 6,26	3,56 ± 3,70	5,43 ± 6,29	0,39 ± 1,15	74,72	52,53	⇒ $\frac{\Delta 53 \%}{\Delta 19 \%} \cong \Delta 22 \%$
COD (mg/L)	6,54 ± 2,15	4,41 ± 2,07	5,24 ± 3,07	0,36 ± 1,28	32,57	18,82	
SUVA (L/mg-m)	2,17 ± 0,87	0,72 ± 0,33	0,88 ± 0,60	0,03 ± 0,20	66,82	22,22	
Etapa O₃+UF							
UV ₂₅₄ (m ⁻¹)	14,08 ± 6,26	6,42 ± 2,04	5,43 ± 1,76	-0,89 ± 1,46	54,40	-15,42	⇒ $\frac{\nabla 15 \%}{\nabla 1 \%} \cong \nabla 24 \%$
COD (mg/L)	6,54 ± 2,15	4,57 ± 2,32	4,53 ± 1,46	-0,30 ± 2,09	30,12	-0,88	
SUVA (L/mg-m)	2,17 ± 0,87	1,69 ± 0,77	1,29 ± 0,50	-0,33 ± 0,53	22,12	-23,67	
Etapa UF							
UV ₂₅₄ (m ⁻¹)	14,08 ± 6,26	10,20 ± 2,66	9,95 ± 2,89	-0,25 ± 2,24	27,56	-2,45	⇒ $\frac{\nabla 2 \%}{\Delta 13 \%} \cong \nabla 15 \%$
COD (mg/L)	6,54 ± 2,15	6,17 ± 1,47	7,00 ± 1,61	0,83 ± 0,85	5,66	13,45	
SUVA (L/mg-m)	2,17 ± 0,87	1,70 ± 0,46	1,45 ± 0,39	-0,25 ± 0,28	21,66	-14,71	

Las fases de O₃+UF y UF presentaron valores significativamente más altos de SUVA_{INF} y SUVA_{EF} que la fase de CF+UF según el análisis de varianzas de la Tabla 39. También ambas fases presentaron un Δ SUVA medio negativo y con bastante más proporción de decrementos que de incrementos, mientras que en la fase CF+UF el Δ SUVA había sido positivo. Esta homogeneidad en los valores de SUVA_{INF} y Δ SUVA entre las fases O₃+UF y UF no se debió realmente a una homogeneidad del contenido ni el carácter de la MON del agua ya que, como reflejaron todos los ANOVA de la Tabla 38 y la Tabla 37, los valores de UV₂₅₄ y COT no guardaron homogeneidad ninguna en influente, efluente, ni incremento. ¿Entonces por qué esa similitud en el SUVA de estas dos fases? Pues porque la variación de UV₂₅₄ y COT resultó en una razón más o menos similar. Esto puede verse analizando la relación entre los valores de $\% A_{RDE}$ de la

Tabla 40: en la fase de O₃+UF, UV₂₅₄ y COD disminuyeron a su paso por la RDE, pero el primero en mayor proporción que el segundo (15% vs. 1%), dando como resultado una disminución media de SUVA del 24%; sin embargo, en la fase de UF, la UV₂₅₄ y el COD tuvieron comportamientos enfrentados, disminuyendo uno en la RDE (2%) mientras que el otro aumentaba (13%), cuyo resultado era una disminución media de SUVA del 15%. Así que en general, ambas fases disminuyeron su SUVA al circular el agua por la RDE pero por motivos distintos.

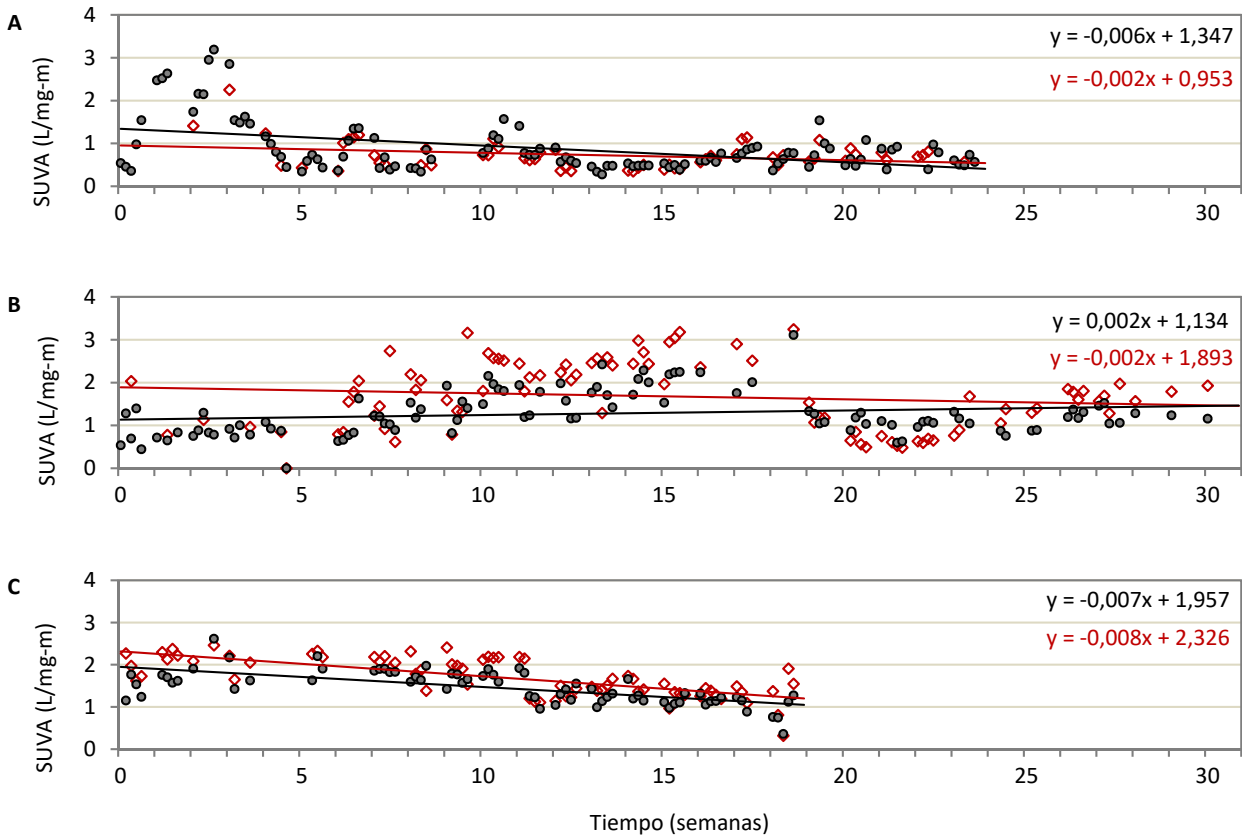


Figura 57. Evolución temporal de SUVA en el influente (◊) y efluente (●) de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O₃+UF (B) y UF (C).

Es por ello también que, a pesar de la homogeneidad estadística en los valores de las fases O₃+UF y UF, el comportamiento evolutivo no fue tan similar en ambas como puede verse al comparar la Figura 57-B y C: en la fase de O₃+UF el SUVA tuvo un comportamiento más fluctuante en ambas corrientes, similar al que presentaron la UV₂₅₄ y el COD en esta misma fase (véase comparativa de los 3 parámetros en la Figura 59); sin embargo, en la fase de UF se advirtió cierta tendencia descendente del SUVA con el tiempo, resultado nuevamente de la combinación del comportamiento de las variables que participan en su cálculo (tendencia casi constante de UV₂₅₄ y tendencia ascendente de COD; Figura 59).

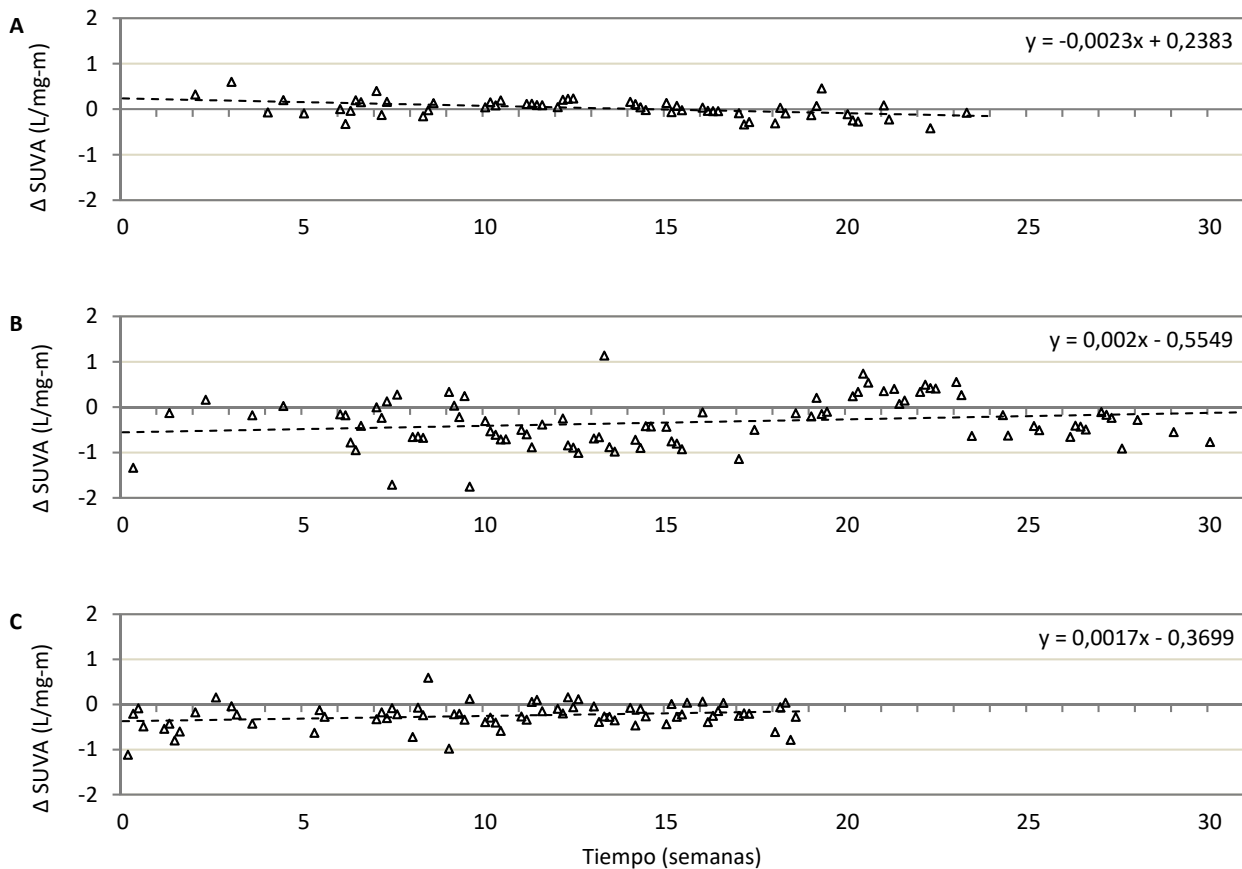


Figura 58. Evolución del incremento de SUVA en la RDE durante las fases de CF+UF (A), O_3 +UF (B) y UF (C).

Si se presta atención al comportamiento de Δ SUVA, es cierto que hubo diferencias cuantitativas entre la fase CF+UF y las otras dos fases (Tabla 39), pero no fueron tan evidentes en su evolución en el tiempo. Si se comparan las pendientes de las rectas de ajuste de la Figura 58, se observa que en la fase de CF+UF su signo es negativo, mientras que en las otras dos fases las pendientes son positivas, pero en todos los casos son cuantitativamente despreciables (EE_{RDE} de -0,0023; 0,002 y 0,0019 para CF+UF, O_3 +UF y UF respectivamente). Es decir, en las tres fases la evolución del ensuciamiento en la RDE fue prácticamente constante, por lo que los resultados no hacen presagiar cambios importantes en lo que respecta al índice SUVA del agua en la red, aunque se debe ser cautos en este aspecto porque según Weishaar *et al.* (2003), muestras con SUVA similares presentan una reactividad con el cloro y otros desinfectantes distinta por la heterogeneidad del COD (unos compuestos reaccionan con el desinfectante y otros son inertes a él).

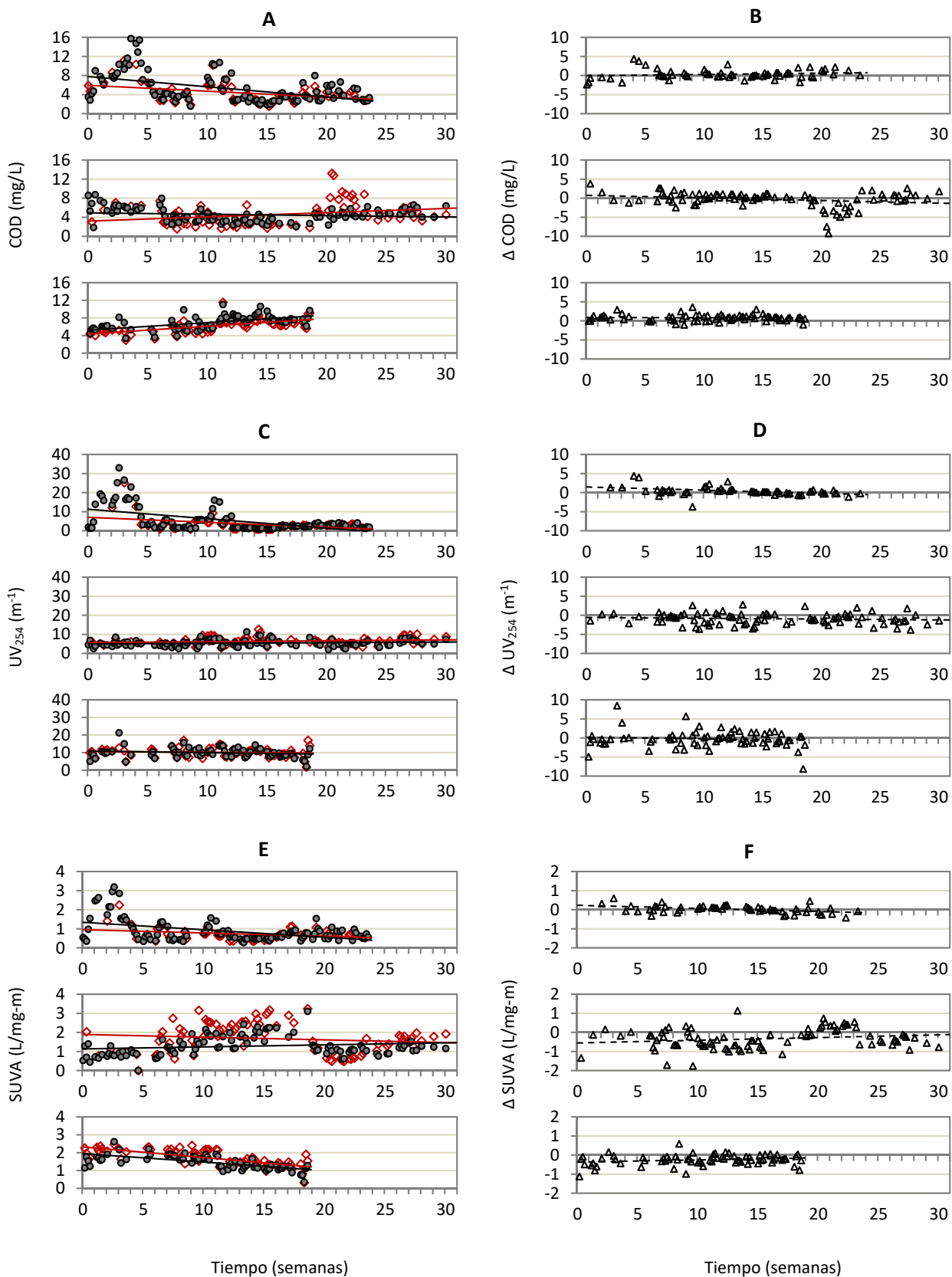


Figura 59. Comparativa de los parámetros de caracterización de MON del influente (◇), efluente (●) e incremento entre ellos (Δ) en la RDE durante las fases de estudio comparativo.

Para terminar y como una manera de reunir toda la información de caracterización de MON del agua potable, se ha elaborado la Figura 60 donde se representan los tres parámetros que definen la materia orgánica (COD, UV_{254} y SUVA) según el tratamiento de potabilización que fue usado en cada fase. Esta figura reafirma que el agua obtenida tras la cloración en la RDE fue fundamentalmente hidrófila, de baja aromaticidad y bajo peso molecular puesto que prácticamente la totalidad de los puntos representados quedan por debajo de la línea $SUVA = 2$ L/mg-m. Además, la totalidad de los puntos se encontraron por debajo de la línea $SUVA 4$ L/mg-m, lo que significa que la MON de esas muestras localizadas en el área entre $SUVA 2$ y 4 estaba compuesta por una mezcla de materia hidrófoba e hidrófila (Edzwald y Tobiason, 1999). Al mismo tiempo, en esta figura se puede observar qué propiedades presentó la MON según el tratamiento en función de dónde se encuentre la nube de puntos correspondiente a cada uno de ellos, desplazándose por el plano cartesiano de izquierda a derecha (COD, *eje X*) y de abajo a arriba (UV_{254} , *eje Y*) en este orden: CF+UF, O_3 +UF y UF.

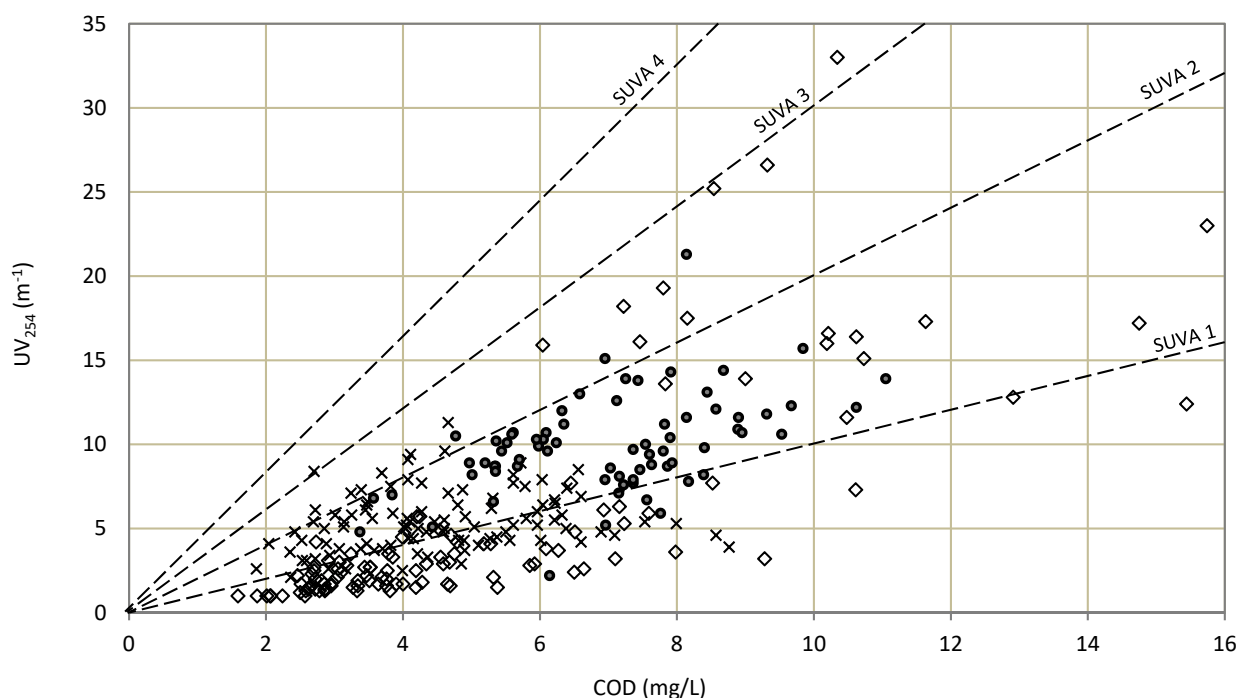


Figura 60. Caracterización de la MON del agua de la RDE en función de la UV_{254} y el COD en las distintas fases del estudio comparativo: CF+UF (◇), O_3 +UF (×), UF (●).

Al igual que en la fase 0, el RDA no pudo cuantificar la influencia del tratamiento sobre el $SUVA_{EF}$ por redundancias lógicas con $UV_{254,EF}$ y COD_{EF} , pero sí que el análisis global confirmó que el tipo de tratamiento

tuvo repercusión en estos dos parámetros ($\alpha_{\text{Trat.-UV}_{254}} = 143^\circ$ y $\alpha_{\text{Trat.-COD}} = 177^\circ$; Tabla 28), por lo que se estudia a continuación.

En función del tratamiento de potabilización, como también se observó en los valores de la Tabla 40 y la Figura 56, el agua obtenida en la fase de CF+UF fue la que en su mayoría presentó una MON de menor SUVA, exceptuando algunas muestras puntuales que se dispersan bastante en el diagrama por fallos técnicos que se produjeron en la instalación experimental. El motivo de que el SUVA fuera menor en esta fase es porque la coagulación-floculación fue el método que más redujo la UV_{254} por su eficacia en la eliminación de la fracción más hidrófoba de la MON (Tapia *et al.*, 2011), a pesar de que el contenido en COD fue relativamente alto. Aunque el sistema de CF+UF es más efectivo a la hora de reducir el COD y la UV_{254} que el de O_3 +UF (Rojas-Serrano *et al.*, 2016), ese mayor contenido en COD no se debió al tipo de tratamiento en sí sino a la formación de biopelícula (influenciada a su vez por la estacionalidad) y aparición de depósitos de suciedad en la tubería, que hizo que la calidad del agua decayese en la RDE durante esta fase de CF+UF.

La fase de UF fue en la que se obtuvo un agua en la red de distribución de mayor SUVA puesto que tanto UV_{254} como COD alcanzaron los valores más altos de las tres fases (nótese en la Figura 60 como la nube de puntos correspondiente a esta fase está en una región de SUVA más alta). Esto se debió a que al usar la UF como único tratamiento de potabilización, el rendimiento de la membrana en eliminación de MOD no fue tan alto como en el resto de fases con pretratamiento y por ello el contenido en COD fue mayor, lo que repercutió también en una mayor medida de UV_{254} por la relación mostrada anteriormente entre estos parámetros.

La fase de O_3 +UF presentó un índice SUVA intermedio entre las otras dos fases puesto que la UV_{254} fue también intermedia entre ellas y el contenido en COD se movió en un rango similar al de la fase de CF+UF (puede apreciarse fácilmente por la ubicación de la nube de puntos en la Figura 60). El resultado fue consecuencia directa de la presencia de ozono residual en la RDE, que produjo un desplazamiento de la fracción más hidrófoba hacia la hidrófila, dando una menor UV_{254} puesto que esta fracción es de menor carácter aromático y menos reactiva frente a la cloración (Galapate *et al.*, 2001). El descenso medio de SUVA producido en esta fase fue de 0,33 L/mg-m que, aunque fue bastante menor, coincide con el comportamiento manifestado en la investigación de Wert y Rosario-Ortiz (2011), donde el SUVA descendió de 1,79 a 0,79 L/mg-m al instalar el tratamiento de pre-ozonización.

Por último, el SUVA no es un parámetro estandarizado en la normativa, pero es ampliamente utilizado en la bibliografía científica por su estrecha relación con la formación de DBPs relación (Hua *et al.*, 2015; Kitis *et al.*, 2002; Croué *et al.*, 2000; Reckhow *et al.*, 1990), a pesar de que este índice conserve ciertos

inconvenientes interpretativos como que, a igualdad de SUVA, absorbancia UV y COD puedan ser distintos (lo que conllevaría reacciones distintas y subproductos distintos), y que no proporcione información sobre la reactividad del COD según sus características (Weishaar *et al.*, 2003). De hecho, en el presente trabajo no hubo ninguna correlación cuantitativamente considerable entre el índice $SUVA_{EF}$ y la concentración de THMs o AHAs (el mayor coeficiente de todos fue $r_{SUVA-THM}=0,314$ en la fase de O_3+UF ; Tabla 30). Esos resultados apoyarían la baja correlación encontrada por Weishaar *et al.* (2003) entre SUVA y DBPs.

4.2.5. Parámetros microbiológicos

La “estabilidad microbiana” de un agua, entendida como los cambios en la calidad de esta, es el resultado de diversos factores, así como de las complejas interacciones entre ellos, como son el acceso/limitación de nutrientes disponibles, la respuesta a las condiciones ambientales tales como temperatura del agua, el tipo y concentración de desinfectante residual, la presencia de sustancias inhibitoras del crecimiento bacteriano, bacterias adheridas a las paredes de la tubería (o biopelícula), deposición de partículas sobre la misma, y la resuspensión de sedimentos o biopelícula (Prest *et al.*, 2016).

En los dos siguientes apartados se mostrarán los resultados de los dos parámetros indicadores de la calidad microbiológica del agua seleccionados (RC_{22} y *E. coli*), así como la influencia de estos factores sobre ellos. Al igual que sucedió en la fase 0 de este trabajo, se espera que sus recuentos sean nulos en su mayoría (para RC_{22}) o en su totalidad (para *E. coli*) en todas las fases experimentales, ya que el empleo de membranas de UF, excelente método de desinfección física capaz de eliminar más del 99,5% de las células bacterianas (Gómez *et al.*, 2006; Prest *et al.*, 2016), fue el punto en común de las 3 fases. No obstante, la presencia de cierto número de bacterias en el agua de la RDE es absolutamente posible y lógico porque la zona de post-tratamiento no guardaba condiciones de esterilidad y la desinfección química se fijó en concentraciones muy moderadas.

4.2.5.1. Recuento de colonias a 22 °C

Atendiendo primeramente a los resultados de este parámetro recogidos en la Tabla 41, se puede afirmar con rotundidad que el agua obtenida en la RDE presentó una calidad tal que podía considerarse apta para consumo humano en todas las fases experimentales a este respecto. Según normativa (RD 140/2003), el límite a la salida de la ETAP está fijado en 100 ufc/mL y, aunque no hay un valor concreto para el caso de la red de distribución, sí que el Ministerio de Sanidad y Consumo consensuó en el año 2005 un valor límite de 10000 ufc/mL para considerar un agua apta para el consumo humano. Tomando estas cifras como valores orientativos y teniendo en cuenta que el valor más alto contabilizado para RC_{22} en todo el estudio

comparativo fue de 5,40 ufc/mL (Tabla 41), puede asegurarse que el agua de la red disfrutó de una calidad excelente en todo momento, cumpliendo sobradamente con esos márgenes establecidos.

Tabla 41: Valores medios, máximos y mínimos del RC₂₂ del agua en la RDE en las tres fases del estudio comparativo.

Fase	RC ₂₂ medio (ufc/mL)	RC ₂₂ máximo (ufc/mL)	RC ₂₂ mínimo (ufc/mL)
I) CF + UF	0,26 ± 0,66 ^a	5,40	n.d.
II) O ₃ + UF	0,24 ± 0,40 ^a	1,85	n.d.
III) UF	0,06 ± 0,12 ^b	0,56	n.d.
Global	0,20 ± 0,49	5,40	n.d.

^{a,b} Subconjuntos homogéneos por el método Student-Newman-Keuls (SNK) con un nivel de significación de 0,05; n.d.: no detectado.

Uno de los factores que sin duda contribuyó a la buena calidad microbiológica del efluente fue el uso de la membrana de ultrafiltración como tratamiento, la cual actúa como una barrera física de alta eficiencia en retención de bacterias (Prest *et al.*, 2016; Gómez *et al.*, 2006; Rojas-Serrano *et al.*, 2015a). Esto hizo que la presencia de bacterias tras la zona de permeado, donde lógicamente no se daban condiciones de esterilidad, se redujera al mínimo. Y esta reducción en el número de bacterias también se trasladó posteriormente a la RDE. Es por ello que las 3 fases presentaron valores sumamente bajos, ya que las 3 contaban con una membrana de UF como último paso del tratamiento antes de la post-cloración. Otro de los factores que suele ser muy influyente en la calidad microbiológica del agua es el tipo de desinfectante, la dosis y su concentración residual en la red de distribución (Mi *et al.*, 2015; Chiao *et al.*, 2014), ya que la concentración de desinfectante se correlaciona inversamente con la tasa de supervivencia celular (Gillespie *et al.*, 2014). Pero en este trabajo no fue un componente diferenciador entre las fases, usando la cloración con NaClO a un nivel regulado de CRL \approx 0,4 mgCRL/L, por lo que el análisis estadístico no mostró correlación alguna entre RC₂₂ y CRL (Tabla 28). Los resultados de Ikonen *et al.* (2013) indicaron que la UV₂₅₄ es una buena herramienta para medir el recuento bacteriano, pero en este caso no fue así ya que los análisis estadísticos no encontraron relación alguna entre UV₂₅₄ y RC₂₂ en ninguna de las fases de estudio, como tampoco se aprecia al comparar ambas gráficas visualmente (Figura 54 y Figura 61).

Aunque el RC₂₂ tuvo valores insignificantes en comparación con los valores de referencia o legislativos anteriormente mencionados, el ANOVA detectó diferencias estadísticamente significativas entre la fase de UF y las demás (Tabla 41). En la evolución temporal que se muestra en la Figura 61 se puede apreciar claramente que el comportamiento fue distinto: mientras que la fase de UF mantuvo un RC₂₂ prácticamente nulo siempre, las fases de CF+UF y O₃+UF comenzaron con recuentos nulos en su mayoría y a medida que avanzaba el tiempo fueron positivos y en aumento. A continuación, se analizan estas diferencias de comportamiento en el RC₂₂ para cada fase, así como las causas que pudieron intervenir.

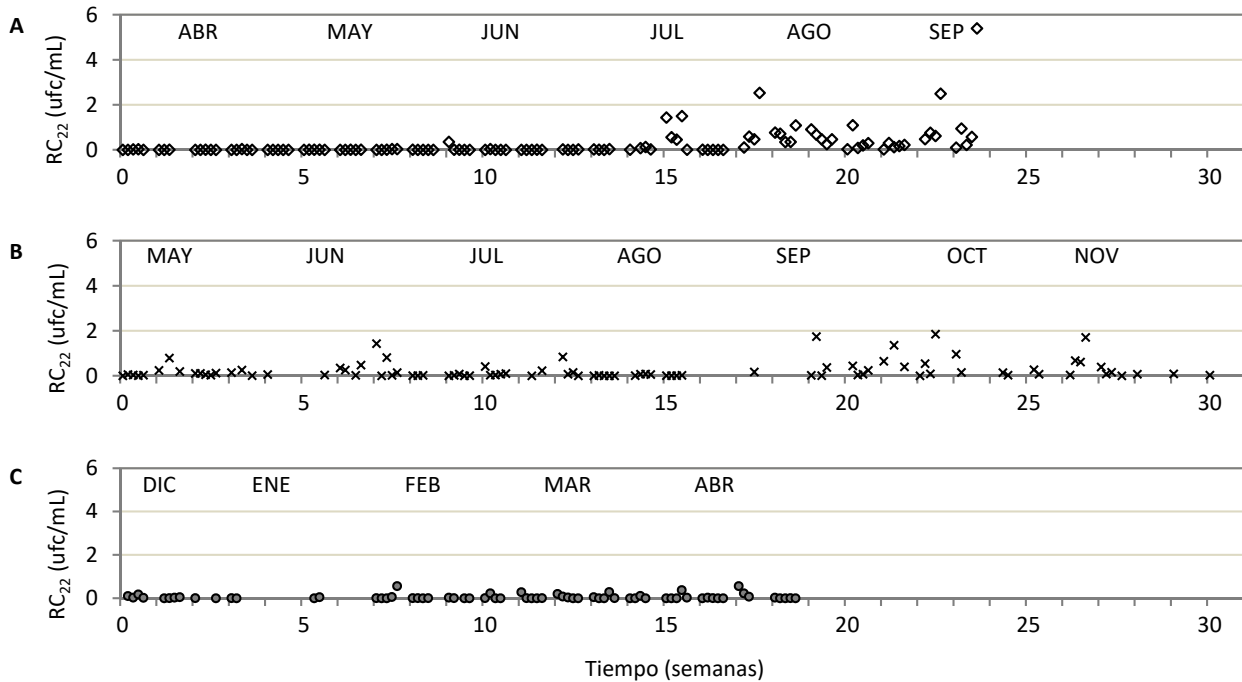


Figura 61. Evolución temporal del RC_{22} en el agua de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O_3 +UF (B) y UF (C).

En la fase de CF+UF, el RC_{22} se mantuvo nulo y constante durante las 15 primeras semanas del ensayo y a partir de ahí hubo un ligero aumento, coincidiendo con la entrada de las altas temperaturas de los meses de verano (Figura 61-A). La temperatura ambiental tuvo una repercusión directa sobre la temperatura del agua (véase Figura 23), y fue precisamente esta variable la que tuvo una mayor influencia sobre el RC_{22} como corrobora el RDA de esta fase ($\alpha_{\text{Temperat.}-RC_{22}}=10^\circ$; Figura 44), lo que apoya la teoría de que las altas temperaturas favorecen el recrecimiento bacteriano (Prest *et al.*, 2016). Como señalaron Lund y Ormerod (1995), la temperatura suele estar estrechamente relacionada con la biopelícula en las RDAP, biopelícula que fue desarrollada durante esta fase hasta alcanzar su madurez completa en los meses de verano (véase apartado 4.4). Y estas bacterias adheridas a la superficie de la tubería, por arrastre y resuspensión hacia la masa de agua circulante, pudieron revertir en el incremento del número de bacterias planctónicas (Álvarez-Arroyo *et al.*, 2015), como así lo prueba el alto coeficiente de correlación entre estos parámetros ($r_{RC_{22}-Biopel.}=0,997$; Tabla 29). Por último, otro factor que señala el análisis de Pearson que pudo repercutir en el RC_{22} , aunque con menos fuerza, fue la turbidez del agua ($r_{RC_{22}-TurbEF}=0,399$; Tabla 29). Ikonen *et al.* (2013) encontraron que el recuento de partículas (relacionado a su vez con la turbidez) funcionaba como indicador de recuentos bacterianos. Esto se debe a que las partículas suspendidas en el agua ofrecen protección y nutrientes a las bacterias, y que el crecimiento bacteriano también se da en depósitos sueltos como defendía Liu *et al.* (2013b). En nuestro caso, si se observa la evolución al alza que presentó la $Turb_{EF}$ (Figura 50-A), parámetro relacionado directamente con las partículas, y se compara con la evolución del RC_{22} de esta fase

(Figura 61-A), podría confirmarse esa correlación mostrada en el análisis estadístico del primer parámetro sobre el segundo.

El RC_{22} no siguió un patrón tan claro en la fase de O_3+UF (Figura 61-B). Los recuentos fueron en su mayoría nulos pero los que fueron positivos no se reagruparon en torno a los meses de mayor temperatura como sucedió en la fase anterior. Tanto es así que el análisis de Pearson no halló esta vez correlación alguna con la temperatura, pero sí de forma muy considerable con la biopelícula ($r_{RC_{22}-Biopel.}=0,958$; Tabla 30). Esto apoyaría la tesis de Liu *et al.* (2013b), quienes demostraron que las biopelículas contribuyen al empeoramiento de la calidad microbiológica del agua durante su distribución, y el RC_{22} es uno de esos aspectos. Aunque en esta fase la biopelícula tardó en comenzar su formación (véase apartado 4.4), sí que el número de bacterias adheridas a la RDE fue aumentando en las últimas semanas del experimento (Figura 69), coincidiendo esto con el aumento de RC_{22} en el tiempo como se aprecia en los meses finales de la Figura 61-B. Además de la influencia de la biopelícula en el RC_{22} , otros factores pudieron haber afectado, aunque con menos fuerza. Por ejemplo, según Córdoba *et al.* (2010), las bacterias pueden resultar heridas por alteraciones de pH. Y precisamente esta fase fue la que sufrió más alteraciones e irregularidades a este respecto, con cambios de tendencia en el tiempo y llegando a alcanzar valores de pH por debajo de los límites establecidos de potabilidad. Pero comparando la evolución del RC_{22} con el pH (Figura 61-B vs. Figura 48-B), no se ve un paralelismo claro, además de que el análisis de Pearson cifra esta correlación de muy baja ($r_{RC_{22}-pH}=0,169$; Tabla 30). Un aspecto que tal vez fue clave en el comportamiento del RC_{22} en esta fase fue el de ozono residual presente en la RDE. El O_3 tiene una potente capacidad de oxidación y de desinfección (Kowbel *et al.*, 1986), ya que las reacciones directas de ozono son responsables de la inactivación de microorganismos (Benner *et al.*, 2008). Aunque la ozonización aumenta la proporción de COA y promueve la producción de compuestos promotores del crecimiento (Escobar y Randall, 2001a; van der Kooij *et al.*, 1989), y más cuando se combinan cloración y ozonización (Escobar y Randall, 2001b), su presencia en la RDE pudo ser tal que actuara como biocida, lo cual explicaría el escaso número de RC_{22} en el agua potable durante esta fase. El aumento de RC_{22} hacia los meses finales de operación, aunque con valores prácticamente despreciables, pudo deberse a la descomposición del O_3 por el aumento de pH del agua (Kowbel *et al.*, 1986) que coincidió en ese periodo (Figura 48-B vs. Figura 61-B), mermando así sus propiedades biocidas. Según Kim *et al.* (2014), la gran reactividad del ozono puede hacer que la concentración de cloro sea insuficiente para satisfacer la inactivación del recrecimiento bacteriano en una RDAP, pero en este caso el sistema de post-cloración funcionaba “a demanda”, por lo que esta hipótesis no se contempla como causa del aumento de RC_{22} al final del periodo.

La fase de UF fue la fase con mayor número de recuentos nulos, prácticamente todos, de ahí que la media de RC₂₂ fuera la más baja con diferencia, con una media de $0,06 \pm 0,12$ ufc/mL, frente a las 0,26 y 0,24 ufc/mL de las fases I y II respectivamente. Además, en esta fase de UF no se dio ningún repunte destacado ni tendencia al alza como en los casos anteriores (Figura 61-C vs. A-B). El motivo de porqué sucedió esto no puede apoyarse en los coeficientes de correlación recogidos en la Tabla 31, ya que todos los coeficientes relacionados con RC₂₂ en esta fase son sumamente bajos debido a que la gran mayoría de datos fueron “cero”. Pero por la literatura científica se conoce la enorme capacidad de la UF en retención de bacterias (Prest *et al.*, 2016) y el importante papel que la cloración tiene en la reducción del recuento bacteriano (Homonnay *et al.*, 2014), siendo ambos los factores más importantes para la obtención de estos resultados que muestran la enorme calidad que presentó el agua potable durante toda esta fase. Cabe puntualizar que esta fase no se llevó a cabo durante los meses más calurosos, lo que tal vez favoreció en parte que el RC₂₂ no fuese algo más notable.

Una idea no contemplada en este trabajo fue el tiempo de residencia del agua en el interior de la RDAP, el cual era mucho menor en la RDE que en una RDAP real. Pero Kerneis *et al.* (1995) señaló que estos tiempos pueden influir en la estabilidad microbiológica del agua en partes del sistema de distribución como depósitos o reservorios, pero no en el agua circulante por tuberías.

En general, este estudio demostró la virtud de la tecnología de membranas de UF con respecto a la calidad microbiana del agua, con independencia de si se utilizó pretratamiento o no. Pero fuera por factores externos (temperatura o pH) o relacionados indirectamente con el tratamiento (presencia de O₃ residual en la red o turbidez), el aumento de RC₂₂ mostrado tras 6 o 7 meses de operación (aunque fuera leve), advierte sobre los inconvenientes que puede provocar el uso de la UF como único método de desinfección para mantener la estabilidad microbiana del agua, por lo que sería aconsejable siempre aplicar una desinfección química que aporte el carácter residual en la RDAP de la que carece una desinfección física.

4.2.5.2. Recuento de *Escherichia coli*

Otro de los indicadores de calidad en aguas potables y que además figura con prioridad crítica en la lista prioritaria de bacterias resistentes a antibióticos realizada recientemente por la (OMS, 2017), es *E. coli.*, usado habitualmente como indicador de contaminación fecal. Hay que decir que todos y cada uno de los recuentos que se llevaron a cabo durante las tres fases del estudio comparativo resultaron nulos, es decir, hubo ausencia total de este coliforme fecal. Por tanto, teniendo en cuenta que la legislación establece un límite para esta bacteria de 0 ufc/100mL (RD 140/2003), puede afirmarse que el agua obtenida durante todo

el estudio evolutivo tuvo la consideración de apta para consumo humano en lo que respecta a este parámetro.

Puesto que todos los valores de *E. coli* fueron “cero” matemáticamente hablando, este parámetro no pudo introducirse en los análisis estadísticos (Pearson y RDA), por lo que tampoco se pudo conocer ni cuantificar ninguna correlación con el resto de variables y parámetros del sistema.

Pero recurriendo a la bibliografía pueden encontrarse algunas razones que expliquen los resultados de este estudio. Uno de los elementos a los que se puede atribuir esta calidad microbiológica del agua y que fue común a las tres fases es la membrana de ultrafiltración, cuya alta eficacia en eliminación de *E.coli* quedó acreditada por Molelekwa *et al.* (2014) en su investigación sobre el tratamiento de aguas subterráneas en áreas rurales y empobrecidas de Sudáfrica. No obstante, por el diseño de la instalación experimental y como apuntan Gómez *et al.* (2006), cabe la posibilidad de que pudieran aparecer este tipo de microorganismos tras la desinfección física como la RDE, de ahí la necesidad de una desinfección química que posea ese carácter residual a lo largo de toda la red de distribución.

Según Gillespie *et al.* (2014), concentraciones de CRL por debajo de 0,5 mg/L se asocian con una mayor tasa de células intactas de *E. coli*. (tasa que se reduce en el caso de la cloraminación). A pesar de que la concentración de CRL que se obtuvo durante todo el estudio comparativo es menor que dicha referencia ($0,44 \pm 0,07$ mg/L; Tabla 34), la ausencia de este coliforme fue total.

La temperatura es otro factor que influye en la presencia y abundancia de *E. coli*, como demuestran los resultados de Córdoba *et al.* (2010), donde el porcentaje de coliformes lesionados osciló entre el 70% y el 100% en función de la estacionalidad (más recuentos positivos en verano y negativos en invierno). Además, observaron correlaciones significativas entre los coliformes y la distancia desde el punto de tratamiento inicial debido a la reducción del nivel de cloro libre a lo largo de la RDAP, lo que resultaba en rebrote bacteriano. En nuestro caso, este último factor no se tuvo en consideración puesto que la longitud de la RDE no era comparable con las distancias de las redes reales.

También destacar que, a pesar de que la biopelícula reduce la eficiencia de la desinfección y proporciona un entorno ideal para que los patógenos sobrevivan y persistan en las RDAPs (Borges y Simões, 2015) y que *E.coli* se haga metabólicamente más activa en ellas que libre (Williams y Braun-Howland, 2003), el recuento de ésta fue constantemente nulo en la fase de CF+UF, a pesar de que en ella se originó una biopelícula evidente y plenamente madura a finales del ensayo.

4.3. GENERACIÓN DE SUBPRODUCTOS DE DESINFECCIÓN EN LA RED DE DISTRIBUCIÓN: EFECTO DEL TRATAMIENTO

De los principales DBPs que pueden formarse en la cloración del agua, en esta investigación se analizaron los trihalometanos (4 especies) y los ácidos haloacéticos (9 especies). La Tabla 42 recoge los resultados de ambos subproductos en cada una de las fases de estudio, expresados como la sumatoria de todas las especies detectadas en el conjunto de THMs y AHAs.

Tabla 42: Valores medios, máximos y mínimos de Σ THMs y Σ AHAs del agua en la RDE en las tres fases del estudio comparativo.

Fase	Concentración media ($\mu\text{g/L}$)	Concentración máxima ($\mu\text{g/L}$)	Concentración mínima ($\mu\text{g/L}$)
Σ THMs			
I) CF + UF	5,28 \pm 10,23	a 47,80	n.d.
II) O ₃ + UF	177,68 \pm 219,00	b 1254,60	n.d.
III) UF	78,95 \pm 44,88	c 201,80	n.d.
Global	108,83 \pm 165,61	1254,60	n.d.
Σ AHAs			
I) CF + UF	12,46 \pm 12,30	a 34,10	1,55
II) O ₃ + UF	85,04 \pm 92,15	b 464,00	3,04
III) UF	81,36 \pm 68,64	b 244,00	12,00
Global	73,67 \pm 80,01	464,00	1,55

^{a,b,c} Subconjuntos homogéneos de cada parámetro por el método Student-Newman-Keuls (SNK) con un nivel de significación de 0,05
n.d.: no detectado.

En el caso de los THMs, la única especie presente en las muestras de agua de la RDE fue el cloroformo (CHCl_3), lógico por otro lado si se tiene en cuenta que el agua de partida carecía de bromuro. Esto también sucede en muchos otros casos encontrados en bibliografía, tanto en estudios a escala piloto (Zhang *et al.*, 2010; Teksoy *et al.*, 2008) como en aguas reales (Roccaro *et al.*, 2008; Sérodes *et al.*, 2003; Williams *et al.*, 1997), donde el cloroformo es el único THM encontrado o al menos el mayoritario respecto al resto de especies.

En cambio, en el caso de los AHAs sí que se detectaron las 9 especies existentes, aunque no en todas las muestras ni en todas las fases ensayadas como muestra la Figura 62. En ésta se ve cómo el ácido dicloroacético (DCAA) fue el que tuvo una presencia claramente mayoritaria frente al resto de especies en todas las fases, con una proporción que oscilaba entre el 78% en la fase de UF y el 93% en las fases que contaron con tratamiento combinado (CF+UF y O₃+UF).

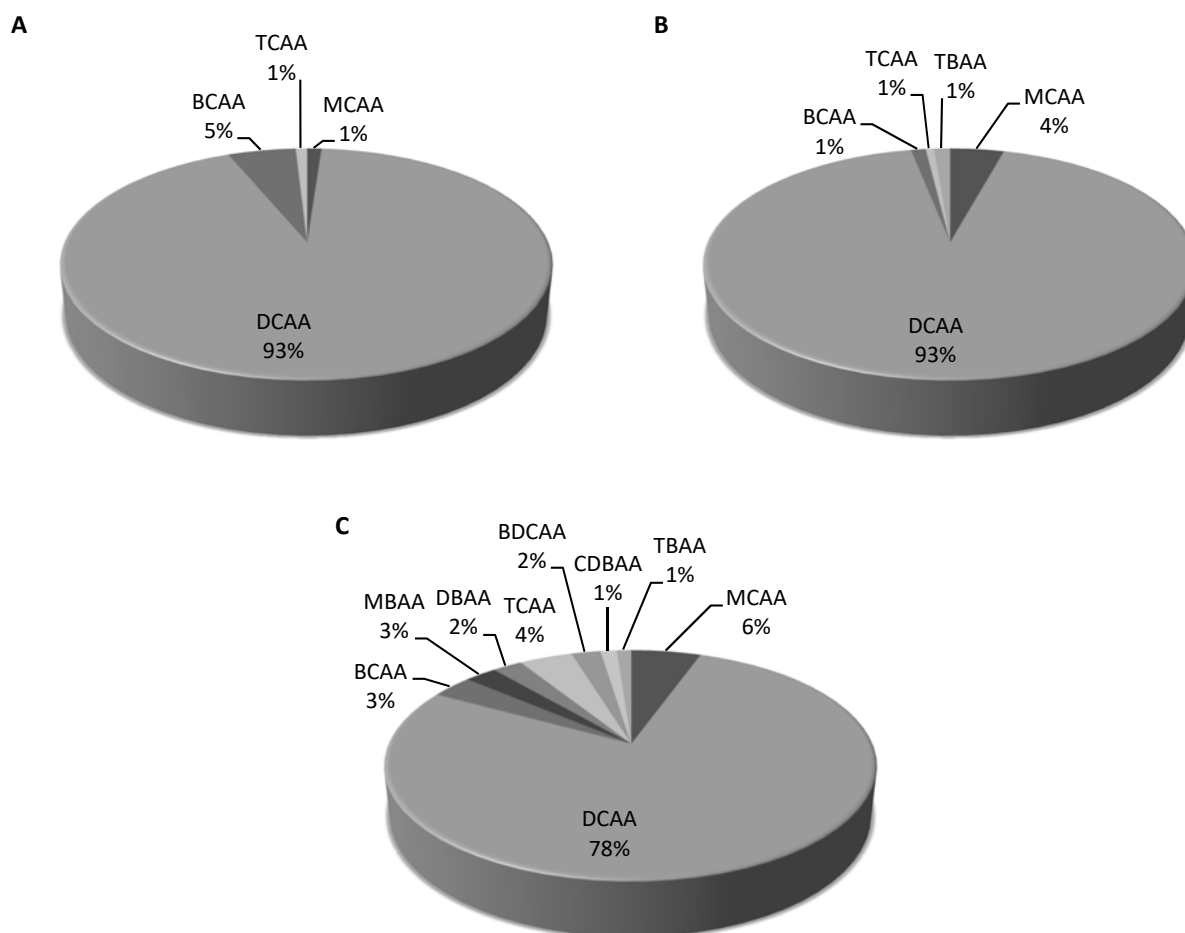


Figura 62. Porcentajes medios de las distintas especies de AHAs presentes en el agua de la RDE para la fase de CF+UF (A), O₃+UF (B) y UF (C).

La proporción media de cada uno de los AHAs de manera globalizada en todo el estudio (sin discriminación por fases) fue la siguiente en orden decreciente: DCAA (86,82%) > MCAA (4,19%) > BCAA (2,75%) > TCAA (2,02%) > TBAA (1,01%) > MBAA (0,94%) > DBAA (0,90%) > BDCAA (0,87%) > CDBAA (0,49%). Debido a la escasez o ausencia de bromuro en el agua de alimentación, los DBPs clorados fueron los compuestos con mayor prevalencia en el agua potable producida como publican otros autores en trabajos a escala real (Sérodes *et al.*, 2003; Williams *et al.*, 1997).

Según el análisis de varianzas realizado, las tres fases del estudio presentaron diferencias estadísticamente significativas entre sí en referencia a los niveles de THMs presentes en el agua de la RDE, que en este caso es equivalente a decir en cloroformo (Tabla 42). En la Figura 63-A se puede observar como la fase de CF+UF fue en la que menos cantidad de cloroformo se generó, con una concentración media de $5,28 \pm 10,23 \mu\text{g/L}$ y máximo de $47,80 \mu\text{g/L}$ (Tabla 42), debido a que este tratamiento promueve una mayor

eliminación de materia hidrófoba y húmica, precursora de su formación (Croue *et al.*, 1993; Ivancev-Tumbas *et al.*, 1999). Como el ratio de cloroformo en agua desciende con descensos de pH (Ivancev-Tumbas *et al.*, 1999), tal vez este podría ser otro factor que influyera en parte a esta baja presencia de THMs, ya que el coagulante hizo que el agua se acidificara levemente aunque la correlación con este parámetro fue muy moderada ($r_{\text{THMs-pH}}=0,318$; Tabla 29).

Sin embargo, en las fases de UF directa y O_3 +UF se obtuvieron valores significativamente más altos, con valores medios de $78,95 \pm 44,88$ y $177,68 \pm 219,00 \mu\text{gCHCl}_3/\text{L}$ respectivamente (Tabla 42). Si se observa la Figura 63-B y C puede verse que en multitud de ocasiones las muestras de agua sobrepasaron el límite legal para aguas de consumo fijado en $100 \mu\text{g/L}$ para la suma total de THMs, llegando incluso a alcanzar picos de 202 y $1255 \mu\text{gCHCl}_3/\text{L}$ en las fases de ozonización y UF directa, es decir, el doble y hasta 12 veces el límite marcado.

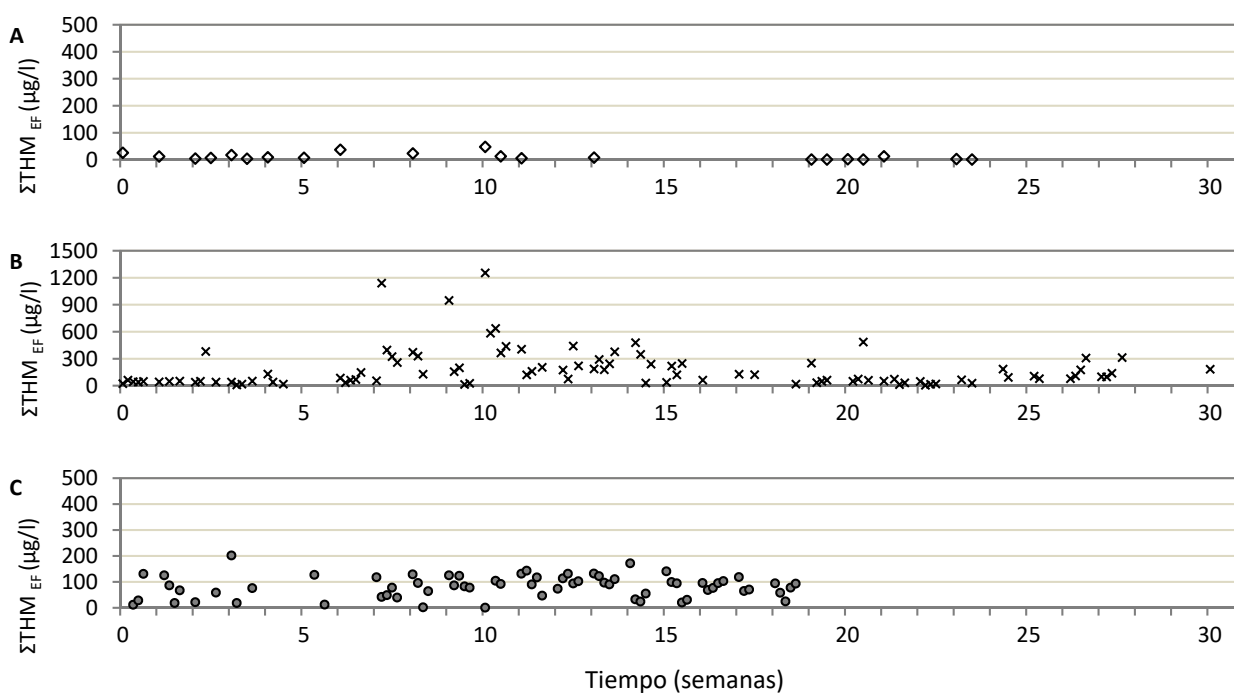


Figura 63. Evolución de la concentración total de THMs del agua de la RDE en la fase de CF+UF (\diamond), O_3 +UF (\times) y UF (\bullet).

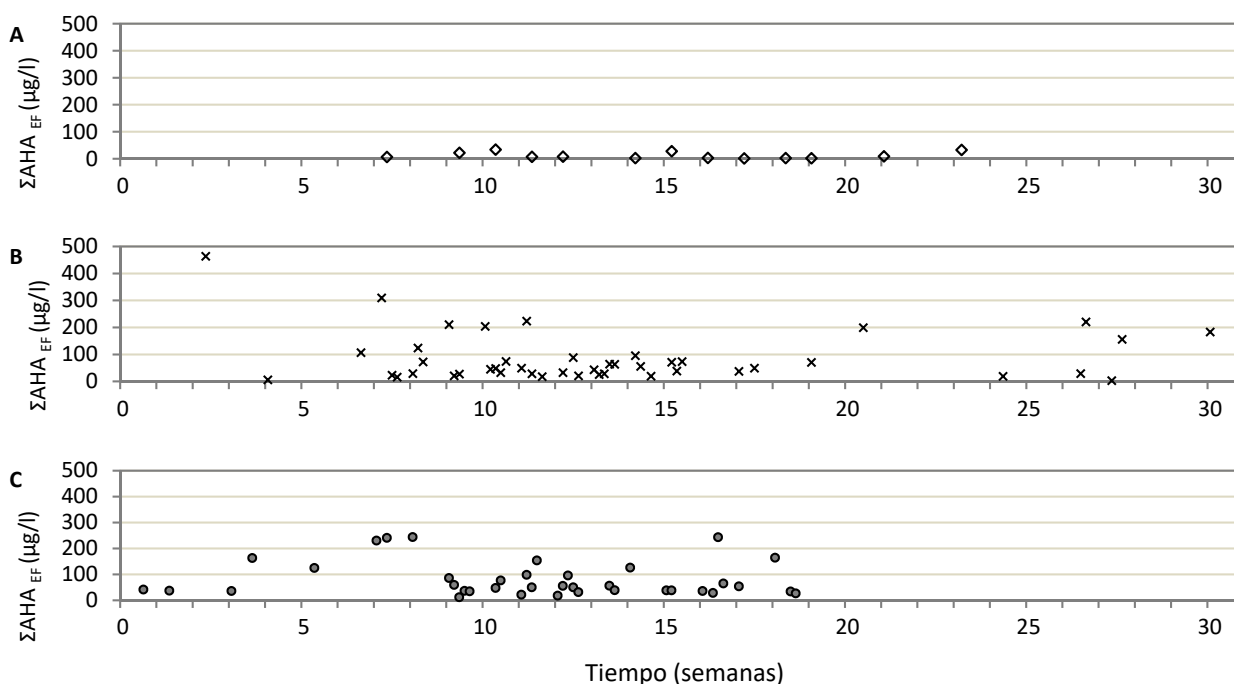


Figura 64. Evolución de la concentración total de AHAs del agua de la RDE en la fase de CF+UF (◇), O₃+UF (x) y UF (●).

A pesar de que generalmente la pre-ozonización disminuye la formación de THMs y AHAs porque los compuestos parcialmente oxidados por la ozonización son menos reactivos al cloro de la desinfección (Karnik, 2005), diversas investigaciones desvelan que la naturaleza de la materia orgánica (aromaticidad, fracción hidrófoba e hidrófila, grupos funcionales, etc.) juegan un papel fundamental en el potencial de formación de DBPs cuando se emplea el tratamiento de ozonización (Galapate *et al.*, 2001; Kitis *et al.*, 2002; Swietlik *et al.*, 2004). De hecho, en aguas con bajo contenido húmico o bajo SUVA la concentración de algunas especies de DBPs puede aumentar con motivo de la poca efectividad del O₃ destruyendo determinados precursores de THMs y AHAs (Hua y Reckhow, 2007; Hua y Reckhow, 2013; Zhou *et al.*, 2015), que podría justificar lo aquí ocurrido ya que el agua producida tuvo un SUVA bastante bajo en la fase de O₃+UF ($1,29 \pm 0,50$ L/mg-m; Tabla 27).

Por otro lado, los altos niveles de DBPs obtenidos en la etapa de UF estuvieron motivados por la baja eliminación de MON que presentan las membranas de UF y su correlación con el potencial de formación de estos subproductos (de la Rubia *et al.*, 2008).

En el caso de los AHAs, su comportamiento a lo largo de cada una de las fases se ha representado en la Figura 64 y los valores medios y máximos alcanzados se encuentran detallados en la Tabla 42. Estos subproductos marcharon paralelamente a los THMs, al igual que puntualizaron Sérodes *et al.* (2003) y Valdivia-García *et al.* (2016). Este paralelismo no se dio estrictamente en valores, pero sí que las fases

siguieron el mismo orden de mayor a menor concentración de DBPs ($O_3+UF > UF > CF+UF$), si bien es cierto que la correlación entre ambos grupos de DBPs dependió mucho de la fase en cuestión ($r_{CF+UF}=1,000$; $r_{O_3+UF}=0,486$; $r_{UF}=-0,022$).

Cabe señalar que actualmente la normativa española no recoge un límite en la concentración de AHAs en agua potable pero si se consideran los valores de referencia establecidos por la Organización Mundial de la Salud (20, 50 y 200 $\mu\text{g/L}$ para el MCAA, DCAA y TCAA respectivamente), hay que decir que el agua presentó una calidad muy baja en las fases de UF y O_3+UF (Tabla 43) con el riesgo para la salud que estos subproductos pueden conllevar. En cambio, cuando el agua fue tratada con el pretratamiento de CF, la calidad del agua con respecto a los AHAs fue buena y podría decirse que apta para consumo humano.

Tabla 43: Valores medios, máximos y mínimos de ΣTHMs y ΣAHAs en el agua de la RDE en las tres fases del estudio comparativo.

AHAs	CF+UF		O_3+UF		UF	
	\bar{x} ($\mu\text{g/L}$)	Máx ($\mu\text{g/L}$)	\bar{x} ($\mu\text{g/L}$)	Máx ($\mu\text{g/L}$)	\bar{x} ($\mu\text{g/L}$)	Máx ($\mu\text{g/L}$)
MCAA	4,14	4,14	19,90	74,40	13,45	44,70
DCAA	11,51	33,40	76,51	387,00	50,45	195,00
BCAA	0,70	0,98	0,77	1,75	4,52	31,80
MBAA	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	20,37	46,40
DBAA	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	14,32	31,80
TCAA	0,91	1,31	0,70	1,06	5,26	29,40
BDCAA	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	18,64	34,80
CDBAA	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	13,94	52,70
TBAA	n.d.	n.d.	18,40	18,40	37,35	48,70
Σ AHAs	12,45	34,04	85,02	463,83	75,22	244,35

n.d.: no detectado

Según Gopal *et al.* (2007), los procesos de membrana presentan muy baja eliminación de DBPs y sus precursores, motivo por el cual tendría explicación la baja calidad que presentó el agua de la RDE con respecto a esta variable. Pero hay que destacar que, aunque las concentraciones de estos DBPs fueron bastantes altas para garantizar la salubridad necesaria y la potabilidad, el hecho de usar la coagulación-floculación como pretratamiento permitió mejorar significativamente este aspecto hasta el punto de ser el único tratamiento de los aquí ensayados que consiguió un agua apta para el consumo humano.

El RDA realizado al sistema (Figura 43) confirma una fuerte correlación del tipo de tratamiento de potabilización sobre la cantidad de DBPs en el agua ($\alpha_{\text{Trat-THMs}}=12^{\circ}$; $\alpha_{\text{Trat-AHAs}}=3^{\circ}$), entendiéndose esta variable como el origen de las diferencias entre fases. Los coeficientes de Pearson demuestran que otros factores operacionales que podrían haber influido en la formación de DBPs, como el CRL, el pH o la temperatura,

realmente no lo hicieron. Y respecto a la caracterización de la MON (UV_{254} y COD) y su correlación con los DBPs obtenidos dependió mucho de cada fase, pero generalmente fue poco o nada explicativa.

A pesar de que el SUVA es un parámetro bastante usado por la comunidad científica como herramienta para la predicción de DBPs por su relación con el potencial de formación de estos (Hua *et al.*, 2015; Kitis *et al.*, 2002; Croué *et al.*, 2000; Reckhow *et al.*, 1990), el análisis de Pearson del estudio global muestra que en esta investigación no tuvieron apenas correlación ($r_{\text{SUVA-THMs}}=0,259$ y $r_{\text{SUVA-AHAs}}=0,128$; Tabla 28). Un estudio de Hua *et al.* (2015) confirmó que la correlación entre el SUVA y los THMs clorados no fue muy significativa, aunque este índice sí era un buen indicador de la formación de DBPs de la cloración desconocidos. Según indica Ates *et al.* (2007), en aguas con bajo SUVA (<2 L/mg-m) no suele mantenerse esta correspondencia, lo que justificaría la baja correlación en este trabajo, ya que el agua potable siempre presentó valores de SUVA inferiores a 2 L/mg-m. Pese a esto, si se observa la Figura 65, donde se representa los valores medios de THMs, AHAs y SUVA del agua clorada para cada una de las fases, es cierto que cuanto menor fue SUVA, menor concentración de estos DBPs hubo en el agua, a excepción de la fase de O_3+UF , cuyo comportamiento no se rigió por esta relación. Es decir, el parámetro SUVA puede considerarse un indicador relativo en todos los casos de este estudio excepto cuando interviene el ozono, que afecta al comportamiento normal esperado.

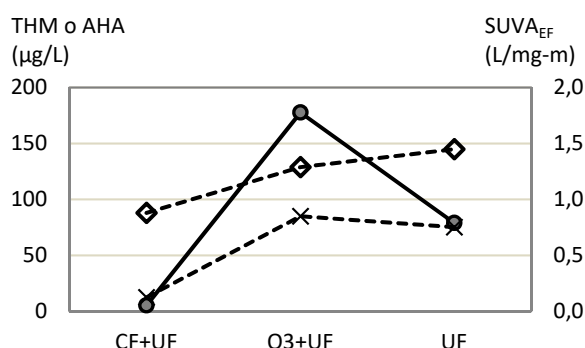


Figura 65. Concentración de Σ THMs (◇) y Σ AHAs (×) vs SUVA (●) del agua de la RDE durante las fases del estudio comparativo.

En la Figura 66 se muestra la concentración de DBPs (directamente proporcional al tamaño de burbuja) de cada fase o tratamiento en función de la relación UV_{254} y COD. En ella puede verse que la gran mayoría de muestras (o burbujas) se encuentran en el área bajo la línea denominada "SUVA 2" y con concentraciones de THMs y AHAs elevadas en muchos casos, pero sobre todo en los THMs de la fase de O_3+UF (burbujas azules) y los AHAs de la fase de UF (burbujas moradas). Por tanto, esto prueba que el índice SUVA no es de total utilidad en la predicción de formación de DBPs en esta investigación.

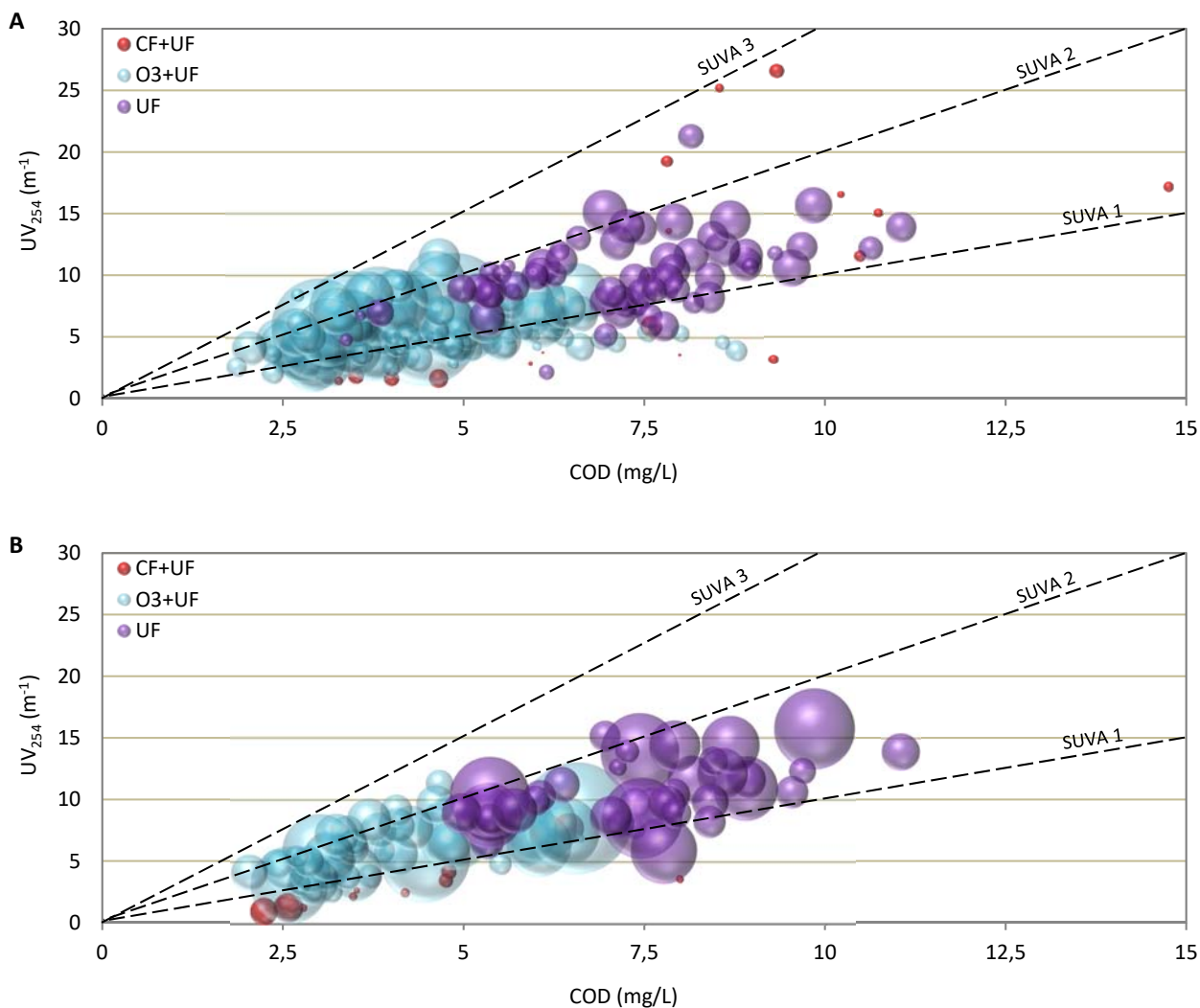


Figura 66. Gráfico de burbujas de la concentración de Σ THMs (A) y Σ AHAs (B) en relación a la UV₂₅₄, el COD y el SUVA del agua de la RDE en las distintas fases del estudio comparativo.

Como ya se ha analizado y discutido anteriormente, en esta representación queda de manifiesto que el tratamiento de CF+UF fue el que mantuvo más control sobre la formación de DBPs puesto que tanto en número como en diámetro de burbuja esta fase fue la que tuvo menos presencia (Figura 66). En contraposición se encuentran las fases UF y O₃+UF. Esta última reagrupa sus burbujas en un rango de COD inferior, lo que indicaría un menor contenido del agua en materia orgánica y por tanto haría pensar que la probabilidad de generación de DBPs es menor. Sin embargo es la fase que más altas concentraciones de THMs y AHAs produjo a pesar de que la literatura científica habla de que el uso de ozono reduce la formación de THMs en aguas cloradas por el efecto que tiene el O₃ sobre la especiación de los DBPs (Gallard y Von Gunten, 2002; Wert y Rosario-Ortiz, 2011). Tal vez este comportamiento pueda atribuirse a la combinación

del ozono y el cloro, que según Zhou *et al.* (2015), aumenta la formación de DBPs en comparación con la cloración sin ozonización.

4.4. ANÁLISIS DE LA INFLUENCIA DEL TRATAMIENTO EN EL ENSUCIAMIENTO DE LA RED DE DISTRIBUCIÓN: EVALUACIÓN DE LA BIOPELÍCULA

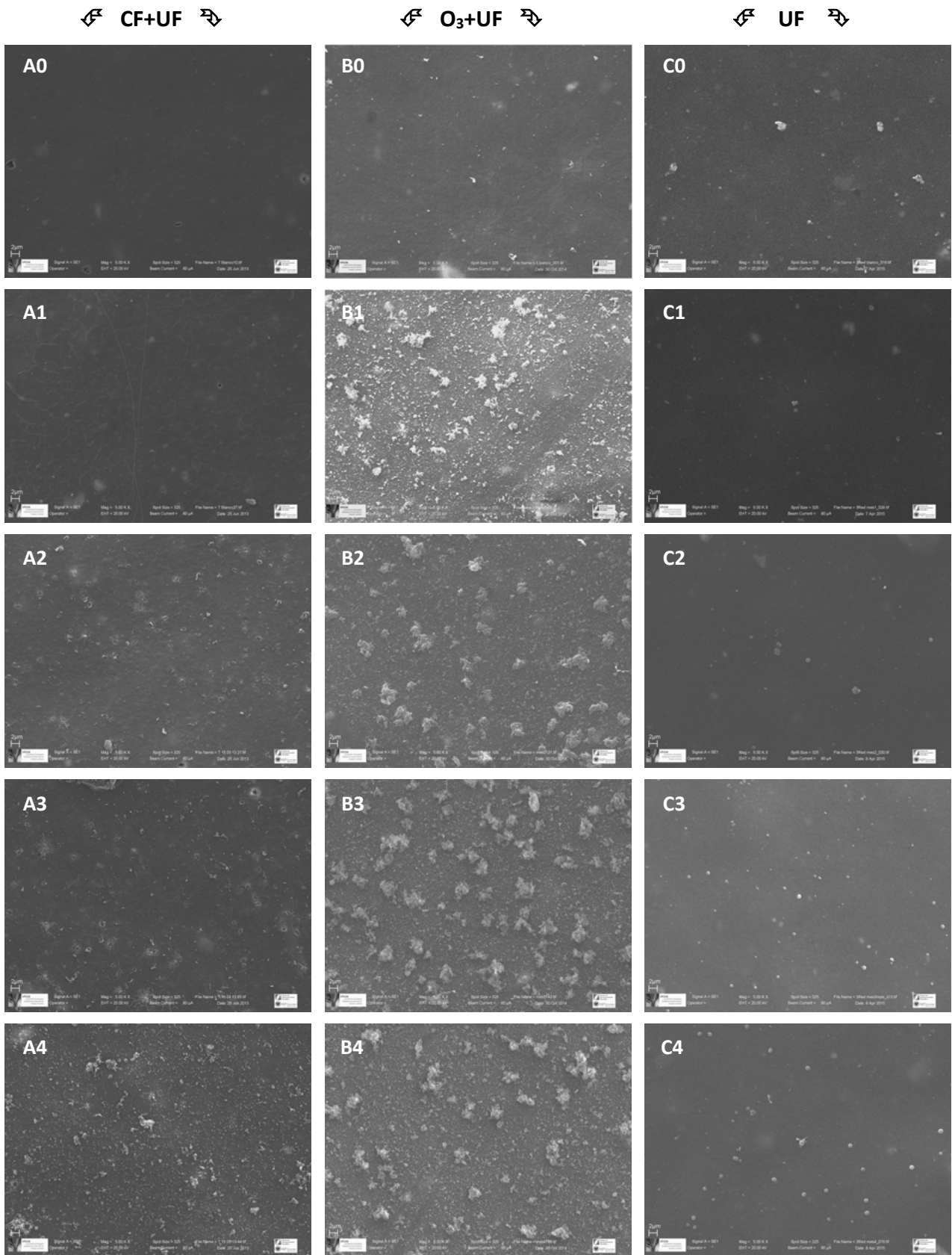
Las biopelículas son consideradas como un contaminante crónico de las redes de distribución de agua potable (Gomes *et al.*, 2016) y por ello se estudiaron en este trabajo, tanto de forma cualitativa (por inspección visual de la superficie de la RDE) como cuantitativamente (mediante el recuento de bacterias adheridas a esa superficie).

Es sabido que la filtración por membrana elimina más del 99,5 % de las células bacterianas (Prest *et al.*, 2016), pero a pesar de que todas las fases del estudio comparativo contaron con este módulo final de tratamiento, las condiciones y el diseño de la instalación experimental posibilitan la aparición de vida microbiana, como las biopelículas, en la RDE.

También se analizaron los factores que pudieron contribuir a la formación de biopelícula. Pero en este caso, el análisis de redundancias no sirvió para cuantificar de una forma representativa la influencia que esos factores tuvieron sobre la biopelícula debido al escaso número de muestreos de fragmentos de tubería con respecto al resto de parámetros del agua (mensual vs. diario), como queda reflejado en la escasa longitud del vector “biopelícula” de los distintos RDA realizados (Figura 43, Figura 44, Figura 45 y Figura 46). Igual cautela plantea el análisis de correlación de Pearson (Tabla 28, Tabla 29, Tabla 30 y Tabla 31) por el mismo motivo, incluso llegando a no poder calcularse su coeficiente de correlación en alguna fase por el elevado número de recuentos nulos.

4.4.1. Análisis cualitativo del ensuciamiento en la red

La Figura 67 muestra una imagen representativa de cada fragmento de tubería muestreado, en orden cronológico, para ilustrar la evolución temporal del ensuciamiento de la superficie de la RDE en cada una de las fases del estudio comparativo (fundamentalmente depósitos de suciedad, bacterias adheridas y biopelícula). Como se aprecia en dicha figura, la evolución temporal no fue la misma en todas las fases a pesar de que todas partieron de una tubería nueva y limpia de características idénticas (material, diámetro y longitud), sin diferencias iniciales entre ellas como así se observa en las imágenes de la Figura 67-A0, B0 y C0 (muestras blanco o control de la RDE1, RDE2 y RDE3 respectivamente).



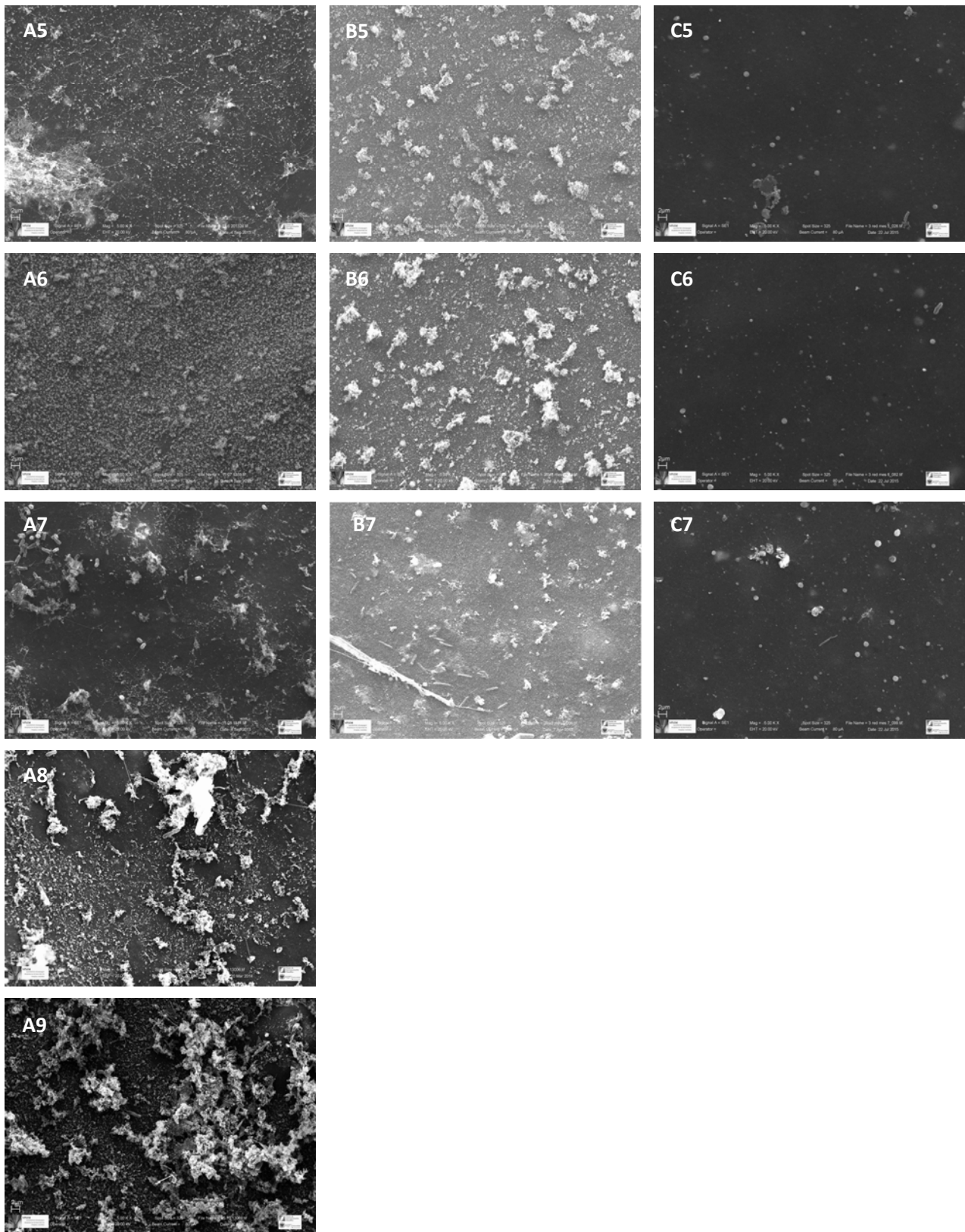


Figura 67. Micrografías SEM de la superficie interna de la tubería de la RDE1 (A), RDE2 (B) y RDE3 (C) de cada mes de operación en las distintas fases del estudio comparativo (A: CF+UF, B: O₃+UF, C: UF).

En la fase de CF+UF (Figura 67-A) puede verse que durante los primeros meses de operación (micrografías A1, A2 y A3) hubo pequeños depósitos de suciedad que comenzaron a cubrir la superficie de la tubería de una forma gradual y todavía sutil hasta que en el cuarto mes del ensayo la superficie estaba plagada de pequeños cúmulos dispersos por toda la superficie (A4). Este escenario correspondería a la primera etapa de la formación de una biopelícula, el acondicionamiento de la superficie, tal y como describe Percival *et al.* (2010). Los depósitos eran principalmente de origen orgánico como reveló su análisis químico, aunque también se detectó hierro. Aunque la fase de CF+UF no fue la que produjo un agua tratada con mayor contenido en MON gracias al pretratamiento de coagulación-floculación ($5,24 \pm 3,07$ mgCOD/L; Tabla 37), la calidad media del agua en COD unido a la acción del hierro residual presente en la RDE1 procedente del coagulante, propició que esta materia disuelta en el agua se depositara en las paredes de la tubería, como así comprobaron Zhang *et al.* (2016) para el caso del aluminio residual. Estas acumulaciones supusieron el acondicionamiento de la superficie para una posterior colonización por parte de las bacterias planctónicas, además de servirles como alimento, ya que se estima que un 20-30 % del COD es biodegradable (Sibille, 1998) y éste es la fuente principal de nutrientes en la formación de biopelículas en agua potable (Park y Hu, 2010).

En el quinto mes (A5), correspondiente al mes de junio, puede apreciarse cómo esa suciedad aumentó en densidad y algunas bacterias ya habían empezado a colonizar distintos puntos de la superficie de la tubería de forma todavía disgregada, y se visualizaron estructuras como fimbrias o pili, haciendo esto de sujeción de las bacterias hacia la superficie. Estas bacterias pioneras, de dimensiones homogéneas y en forma de bacilos, también eran capaces de producir sustancias poliméricas que facilitaban la adhesión bacteriana al sustrato y proporciona un mecanismo de estabilidad para la biopelícula (Fish *et al.*, 2016). Un ejemplo de ello es esa estructura enmarañada que se distingue en esta micrografía. Este estado podría considerarse una etapa temprana de biopelícula en su fase reversible (de la Rúa *et al.*, 2008).

En el mes de julio (A6) la superficie estaba cubierta ya en su totalidad por una masa heterogénea de suciedad dando lugar a que en los siguientes meses se contabilizaran un número de bacterias adheridas considerablemente mayor, de morfología tipo bacilo, pero de dimensiones ya algo más variadas. En la micrografía A7 (agosto) se aprecian agregaciones de microorganismos y en la A8 (septiembre) incluso una matriz abundante y evidente de sustancias poliméricas extracelulares, la cual ayudaría a la protección de la vida microbiana frente a la acción del desinfectante (Sibille, 1998; Liu *et al.*, 2013). También la temperatura contribuyó en parte a este crecimiento de la biopelícula en estos meses de verano, ya que es un factor estrechamente relacionado con ella en RDAPs (Lund y Ormerod, 1995), aunque la correlación existente entre ambos parámetros no fuera elevada (0,346; Tabla 29). En este punto del proceso podría decirse que la formación de biopelícula era patente y que había llegado a un estado de maduración.

En la última micrografía de la CF+UF correspondiente al mes de octubre (A9) puede apreciarse una biopelícula de mayor espesor que hacía imposible el recuento visual de bacterias adheridas. Esta imagen muestra una biopelícula en una fase ya irreversible, pudiendo desprenderse parte de la misma y colonizar otros puntos de la tubería por parte de esa biomasa libre y afectar así a la calidad del agua obtenida (*Liu et al.*, 2013b). De hecho, los coeficientes de correlación de Pearson pusieron de manifiesto fuertes correlaciones de la biopelícula con el RC_{22} y la $Turb_{EF}$ (0,997 y 0,921 respectivamente; Tabla 29), lo que comprueba que la generación de biopelícula en esta fase comprometió en cierto grado la calidad del agua potable. A pesar de que hubo un nivel de CRL constante durante toda la fase, está claro que la cloración no impidió la proliferación de desarrollos biológicos como la biopelícula en la red, al igual que referencian otros autores (*Wang et al.*, 2014; *Revetta et al.*, 2013; *LeChevallier et al.*, 1987). Esto puede deberse, en parte, a que el tratamiento de CF eliminó la fracción más hidrófoba de la MON (*Tapia et al.*, 2011), dejando la fracción menos reactiva con el cloro de desinfección (*Lavonen et al.*, 2013) y, por tanto, dejando más materia disponible para la nutrición bacteriana.

Pasando al análisis cualitativo de la fase de O_3 +UF, partiendo como en todos los casos de una red limpia, sin suciedad ni bacterias (Figura 67-B0), se vio que la superficie se cubrió de pequeña materia disgregada por toda ella en un corto plazo de tiempo ya que el primer mes de operación fue suficiente para presentar este aspecto (B1). En las consecutivas micrografías, correspondientes a los meses de junio (B2) en adelante, la cantidad de materia particulada y la aglomeración de ésta fue *in crescendo* pero no el número de bacterias adheridas al sustrato, cuyo recuento fue bastante escaso, manteniéndose prácticamente igual que en la muestra control.

No fue hasta el mes de octubre (B6), tras seis meses de operación, cuando la presencia de bacterias adheridas a la tubería empezó a repuntar discretamente pero sin llegar ni siquiera a un estado que pudiera ser considerado como una fase reversible de una posible biopelícula. Es en la última micrografía correspondiente al mes de noviembre (B7), último mes de esta fase experimental, cuando sí se aprecia una mayor presencia de bacterias acompañada de más materia particulada, pero en ningún momento se observan desarrollos propios de una biopelícula.

Seguramente el ozono residual presente en la red de distribución desempeñó un papel importante en el impedimento del desarrollo de la biopelícula. Por un lado, se conoce que el O_3 es un oxidante fuerte que ataca a la MON del agua provocando su fragmentación, convirtiendo la fracción de mayor a menor peso molecular (*Zhou et al.*, 2015). Y lógicamente, esta materia más fraccionada está más expuesta a las condiciones operacionales (dosis de cloro, flujo, etc.), dificultando el hábitat para el desarrollo de una

biopelícula. Aunque también es cierto que este efecto del ozono aumenta la biodegradabilidad de los compuestos orgánicos, haciéndolos más asimilables para los microorganismos y promoviendo el crecimiento bacteriano (Escobar y Randall, 2001a; Escobar y Randall, 2001b; van der Kooij *et al.*, 1989), la presencia de bacterias fue insignificante en esta fase. Esto fue consecuencia del efecto biocida del O₃, que hizo que no prosperara fácilmente la vida microbiana en la tubería ni en el agua en un intervalo de tiempo en el que en la fase de CF+Uf había sido suficiente. Prueba de ello fue también el escasísimo recuento de bacterias cultivadas a 22°C ($0,24 \pm 0,40$ ufc/mL; Tabla 41, apartado 4.2.5.1), por lo que al haber pocas bacterias planctónicas, la probabilidad de que éstas pudieran adherirse a la superficie de la tubería para formar biopelícula era menor. Otro aspecto que también pudo influir en la biopelícula como consecuencia de la presencia de O₃ residual es el pH, ya que el ozono suele producir reducciones de pH (Rojas-Serrano *et al.*, 2016; X. Huang *et al.*, 2005a) y eso provoca peores condiciones de supervivencia para los microorganismos (Merino Guzmán *et al.*, 2011; Mendoza *et al.*, 2008) y la mortalidad bacteriana por el desplazamiento del equilibrio HClO/ClO⁻ de las especies de desinfección (Piriou *et al.*, 1996). No obstante, el coeficiente de correlación en este caso no fue muy destacado (0,208; Tabla 30) pero no puede tenerse muy en cuenta por la particularidad del parámetro “biopelícula” en el análisis estadístico.

El caso de la fase de UF directa fue el más llamativo de todos puesto que, a pesar de la baja eficiencia de la membrana en retención de materia disuelta al trabajar sin pretratamiento combinado, en las micrografías no se aprecian apenas depósitos de suciedad sobre la superficie de la conducción (Figura 67-C). Aparte de esto, la presencia de bacterias fue nula durante los 4 primeros meses de operación y comenzaron a verse algunas de ellas en los últimos meses (C5, C6 y C7), correspondientes a los meses de mayo a julio, donde las temperaturas fueron en aumento.

Este resultado en la fase UF se debió por un lado a que, aunque la concentración de COD fue más alta que en el resto de fases ($7,00 \pm 1,61$ mg/L; Tabla 37), no hubo ningún factor que ayudara a que esa materia disuelta se depositara en las paredes de la tubería como algún coagulante o bacterias ya adheridas. Por otro lado, la presencia de bacterias planctónicas que pudieran colonizar la superficie fue enormemente baja la más baja de todo el estudio comparativo ($0,06 \pm 0,12$ ufc/mL; Tabla 41), lo que dificulta también una generación de biopelícula. Además, el nivel de CRL pudo ser suficiente para controlar el recrecimiento bacteriano en la RDE y agotar un poco la disposición de nutrientes al no contar esta fase con un oxidante más fuerte (como el O₃) que eliminara más cantidad de materia.

4.4.2. Análisis cuantitativo del ensuciamiento en la red

Del recuento bacteriano de todas las micrografías realizadas a las muestras mensuales de los fragmentos de tubería de cada RDE se obtuvo la Figura 68, donde se representaron el número medio de bacterias por unidad de superficie (mm^2) con respecto al tiempo para modelizar matemáticamente el crecimiento bacteriano en la biopelícula.

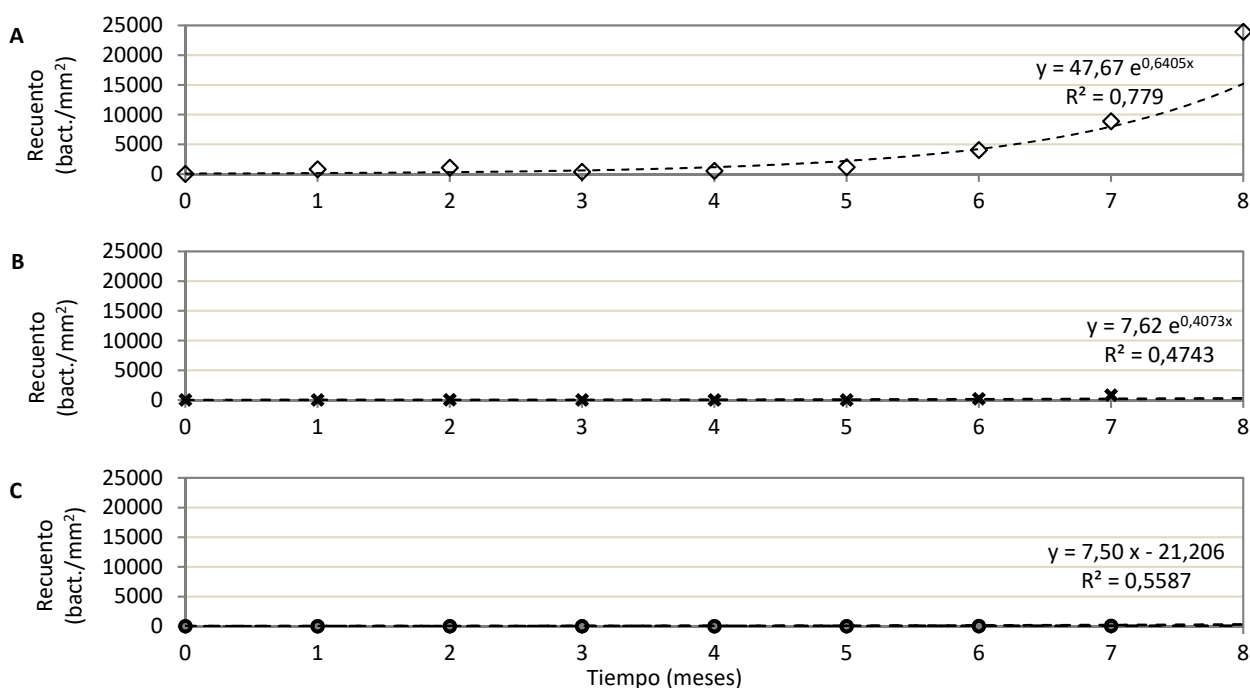


Figura 68. Evolución temporal del recuento bacteriano en la superficie de la RDE en la fase de CF+UF (A), O₃+UF (B) y UF (C).

Al igual que se observó cualitativamente en las micrografías detalladas en el apartado anterior, el número de bacterias por unidad de superficie fue significativamente mayor en la fase de CF+UF, alcanzando las 23926 bacterias/ mm^2 en el último mes. Además se apreció un crecimiento exponencial (Figura 68), propio del crecimiento bacteriano, que siguió la ecuación de ajuste [5]. La fase de O₃+UF también mostró un crecimiento en el RBA pero cuantitativamente más bajo y con menor *velocidad de crecimiento* como delata el exponente de su ecuación de ajuste ([6]), que es un 36% más bajo que en el caso anterior. Por último, en la fase de UF la presencia de bacterias fue nula hasta el sexto mes, donde el recuento medio fue de 26 bacterias/ mm^2 y alcanzando su máximo en 69 bacterias/ mm^2 en el último mes del ensayo (189 veces menor que en la CF+UF de ese mismo mes). Por ello hacer un ajuste exponencial en este caso no fue posible, de ahí que se muestre un ajuste lineal (ecuación [7]) en el que se aprecia una pendiente totalmente despreciable de 7,5 bacterias/ mm^2 -mes.

$$\text{RBA (bacterias/mm}^2\text{)} = 47,67 \cdot e^{0,640 \cdot \text{Tiempo (meses)}} ; R^2 = 0,779 \quad [5]$$

$$\text{RBA (bacterias/mm}^2\text{)} = 7,62 \cdot e^{0,4073 \cdot \text{Tiempo (meses)}} ; R^2 = 0,4743 \quad [6]$$

$$\text{RBA (bacterias/mm}^2\text{)} = 7,50 \cdot \text{Tiempo (meses)} - 21,21 ; R^2 = 0,5587 \quad [7]$$

Para una mejor visualización y análisis de los resultados, se calculó el logaritmo de cada recuento medio (*eje Y*) para linealizar así los ajustes y facilitar la comparación de los mismos entre las distintas fases. Estos valores y sus ajustes se muestran en la Figura 69 y la Tabla 44, donde la pendiente se puede interpretar como la *velocidad de crecimiento bacteriano en la biopelícula* y la ordenada como la *tasa de recuento inicial*.

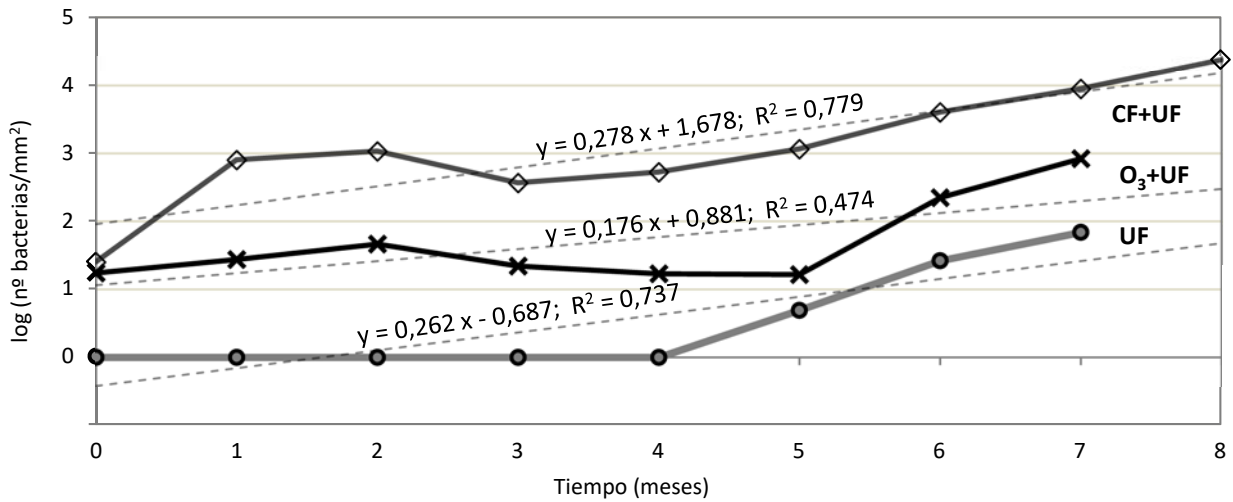


Figura 69. Evolución temporal del logaritmo del recuento bacteriano en la superficie de la RDE en la fase de CF+UF (◊), O₃+UF (×) y UF (●).

De nuevo se comprueba que en la fase de CF+UF, donde sí llegó a desarrollarse una biopelícula, el crecimiento bacteriano fue evidente, presentando la mayor tasa de recuento y velocidad de crecimiento de todas las fases (Tabla 44). La siguiente fase que demostró cierta evidencia de los inicios de una posible biopelícula en el análisis cualitativo fue la de O₃+UF, pero ésta presentó una tasa de recuento inicial un 48% menor que en el caso anterior y una velocidad de crecimiento un 37% más baja que la misma. Y en la fase de UF, donde las micrografías ya mostraron la ausencia de biopelícula en cualquiera de sus etapas, la velocidad de crecimiento no difirió mucho de la presentada en la fase de CF+UF pero sí la tasa de recuento inicial que cayó a valores negativos (-0,687), lo que demuestra la poca presencia de bacterias durante la fase de UF directa.

Tabla 44: Parámetros característicos del ajuste lineal del recuento bacteriano en la superficie de la RDE en las tres fases del estudio comparativo y el porcentaje de incremento con respecto a la fase de CF+UF.

	Fase	Pendiente	Ordenada	R ²	% ordenada	% pendiente
I)	CF + UF	0,278	1,678	0,779	-	-
II)	O ₃ + UF	0,176	0,881	0,474	-47,50	-36,69
III)	UF	0,262	-0,687	0,737	-140,94	-5,76

A la vista de los resultados tanto del análisis cualitativo como del análisis cuantitativo, y comparando cada una de las fases para conocer la influencia del tratamiento sobre la evaluación de la biopelícula, puede afirmarse que hubo una diferencia bastante significativa entre el tratamiento de CF+UF y los tratamientos de O₃+UF y UF. Mientras que en la fase de coagulación se desarrolló una biopelícula madura e irreversible en los últimos meses del ensayo, en las otras dos fases no llegó a formarse biopelícula como tal. Si acaso podría decirse que en la fase de O₃+UF llegó a las dos primeras etapas definidas en la generación de una biopelícula como son el acondicionamiento de la superficie y la adhesión de bacterias pioneras. Pero en el caso de la UF no llegó a ninguna de estas etapas iniciales.

Esto hace pensar que el comportamiento de la variable biopelícula sí estuvo marcado en cierto modo por el tratamiento aunque el RDA (Figura 43) no lo muestre así debido a que el número de datos de este parámetro fue mucho menor que en el resto de parámetros del sistema.

La fase de CF+UF, a pesar de que el pretratamiento mejoró el rendimiento en eliminación de materia orgánica (\downarrow COD), la formación de biopelícula fue patente y estuvo condicionada por la turbidez del efluente y el RC₂₂, como demuestran los coeficientes de correlación de estas variables ($r_{\text{Biofilm-TurbEF}}=0,921$ y $r_{\text{Biofilm-RC22}}=0,997$; Tabla 29), y también favorecida por la influencia de la temperatura del agua, que aunque la correlación directa no fuera muy alta ($r=0,346$), sí intervino de forma indirecta ya que la temperatura presentó una correlación fuerte positiva con el RC₂₂ ($\alpha=10^\circ$; Figura 44). Todos ellos repercutieron en el empeoramiento de la calidad microbiológica del agua ya que todos los procesos biológicos lo hacen, tanto la biopelícula como las células planctónicas (Liu *et al.*, 2013b).

En el caso de la O₃+UF, los resultados presumiblemente estuvieron muy condicionados por el efecto del ozono residual procedente del pretratamiento y presente posteriormente en la red de distribución, que afectó tanto a la estructura de la MON del agua como a la vida microbiana como ya se ha explicado con anterioridad. El ozono residual, al no ser una variable medida del sistema, no se pudo evaluar ni cuantificar su efecto sobre la biopelícula con los análisis de correlación y RDA, que en esta fase no muestran correlaciones significativas con la misma.

Y la fase de UF, a pesar de no tener un pretratamiento acoplado a la membrana que mejorase su rendimiento en eliminación de MON, no desarrolló ninguna biopelícula debido a la combinación de varios factores que convergieron a ello. Entre estos factores se encuentra la dificultad de que la materia orgánica disuelta se depositara por sí sola en una superficie limpia y sin bacterias que permitiría acondicionar la superficie y la escasa cantidad de bacterias planctónicas para colonizar dicha superficie (puede interpretarse el RC₂₂ como una medida indirecta del número de bacterias libres). Además, cabría pensar en la alta eficiencia de la UF en retención de bacterias (Prest *et al.*, 2016), pero este aspecto fue común a todas las fases y, por tanto, no se considera un factor diferenciador influyente.

5. CONCLUSIONES / CONCLUSIONS

5. CONCLUSIONES / CONCLUSIONS

A partir de los resultados derivados de la experimentación durante varios meses potabilizando agua mediante un tratamiento principal de tecnología de UF y su combinación con pretratamientos de CF u O₃, y bajo las mismas condiciones operacionales, se obtienen las siguientes conclusiones de investigación:

- 1) El agua de consumo humano producida mediante tecnología de ultrafiltración sufrió una pérdida de calidad en la red de distribución con carácter general en todos los indicadores físico-químicos analizados, excepto para COD cuando se empleó ozono como pretratamiento y para UV₂₅₄ cuando se emplearon CF y O₃ como pretratamientos.
- 2) El empleo de membranas de UF produce agua potable de excelente calidad microbiológica, independientemente del sistema de pretratamiento, lo que no descarta el uso de una desinfección química con carácter residual como protección frente a rebrotes bacterianos y desarrollos de biopelícula en la red, los cuales se apreciaron en momentos donde las condiciones fueron favorables para ello.
- 3) El aumento de la temperatura potencia el desarrollo de biopelícula en redes de distribución que transportan agua potabilizada mediante membranas de ultrafiltración y condicionan la calidad del agua con incrementos de turbidez y RC₂₂. Este efecto es dependiente del tipo de tratamiento empleado, produciéndose con CF+UF pero no con UF o O₃+UF.
- 4) La potabilización del agua mediante la asociación de CF+UF dio lugar al desarrollo de biopelícula en la red de distribución, alcanzando ésta un estado maduro tras 8 meses de operación. Sin embargo, la calidad microbiológica del agua no se vio afectada significativamente por ello.
- 5) La potabilización del agua mediante la asociación de O₃+UF dio lugar al incremento de depósitos de materia orgánica sobre la superficie de la red de distribución, aunque esto no supuso un desarrollo de biopelícula madura.
- 6) La potabilización del agua mediante membranas de UF sin pretratamiento, no originó la formación de depósitos ni biopelícula en la red de distribución a pesar del contenido significativo en COD del agua.
- 7) El nivel de DBPs generados no guardó relación con la aromaticidad ni la concentración de la materia orgánica del efluente, pero sí estuvo fuertemente marcada por el tipo de tratamiento.

- 8) A pesar de la alta concentración de COD en el agua potabilizada con el pretratamiento de coagulación-floculación, la generación de DBPs en la red de distribución fue insignificante, cumpliendo los límites legislativos en todo momento.
- 9) La pre-ozonización dio lugar a elevadas concentraciones de DBPs en el agua potable, sobrepasando ampliamente los estándares de calidad establecidos tanto para THM como para AHA.
- 10) El índice SUVA no presentó relación directa con el nivel de DBPs generados, por lo que el SUVA no se manifestó como buen indicador del riesgo de formación de DBPs en aguas potabilizadas mediante membranas de UF.

CONCLUSIONS

On the basis of the results of several months of experimentation, purifying water by means of treatment based mainly on the use of UF technologies and combinations of UF technology with CF and O₃ pre-treatments and under the same operational conditions, the following conclusions can be reached:

- 1) Water destined for human consumption that was produced using ultrafiltration technology led to a general decline in the quality of the water in the supply network in terms of all the physical-chemical indicators analysed, with the exception of DOC when ozone was used as a pre-treatment, and UV₂₅₄ when CF and O₃ treatments were applied.
- 2) The use of UF membranes produces drinking water with excellent microbiological quality, independently of the pre-treatment systems used, though this does not rule out the use of residual chemical disinfection as a means of ensuring protection against bacterial outbreaks and the development of biofilm in the network, both of which appeared when the conditions proved favourable.
- 3) Temperature increases both encourage the development of biofilms in supply networks that transport drinking water via ultrafiltration membranes and affect the quality of the water, with increases observed in both turbidity and TBC₂₂. This effect depends on the type of treatment used and occurs with CF+UF treatment but not with UF or O₃+UF treatments.

- 4) Water purification carried out using the combination CF+UF gave rise to the development of biofilm in the supply network, which reached maturity following 8 months of operation. However, the microbiological quality of the water was not affected to any significant degree.
- 5) Water purification carried out using the combination O₃+UF led to an increase in the deposits of organic matter on the surface of the supply network, though this did not lead to the development of mature biofilm.
- 6) Purification of water using UF membranes without pre-treatment did not lead to the formation of deposits or biofilm in the supply network, despite the significant DOC content in the water.
- 7) While the level of DBPs generated bore no relationship to either the aromaticity or concentration of organic matter observed in the effluent water, it was strongly influenced by the type of treatment used.
- 8) Despite the high concentration of DOC in the water purified by means of coagulation-flocculation pre-treatment, the generation of DBPs in the supply network was insignificant and complied with the established legal limits at all times.
- 9) Pre-ozonation gave rise to high concentrations of DBPs in the drinking water, easily surpassing the quality standards established for both THMs and HAAs.
- 10) The SUVA index did not reveal a direct relationship with the level of DBPs generated, meaning it does not represent a good indicator of the risk of formation of DBPs in waters purified using UF membranes.

6. LÍNEAS FUTURAS DE INVESTIGACIÓN

6. LÍNEAS FUTURAS DE INVESTIGACIÓN

A raíz de los resultados obtenidos en este trabajo, puede decirse que uno de los aspectos más controvertidos ha sido la generación de DBPs cuando se operó con el tratamiento de O₃+UF, ya que desvelaron concentraciones bastante elevadas de THMs y AHAs, mientras que la literatura científica afirma que el ozono reduce su formación al eliminar precursores de DBPs. Tal vez la tecnología de membranas sea determinante en este aspecto por su baja eliminación de MOD frente a los procesos convencionales y por ello es de gran interés avanzar en esta línea de investigación, y más teniendo en cuenta que esta tecnología de membranas va *in crescendo* en el campo del tratamiento de aguas.

Por otro lado, está surgiendo una preocupación cada vez mayor sobre la resistencia de bacterias frente a los antibióticos, y la OMS ha publicado recientemente (27 de febrero de 2017) una lista de patógenos prioritarios (PPL) sobre los que aconseja encarecidamente que se investigue con el objetivo de encontrar nuevos fármacos que combatan las enfermedades que éstos pueden ocasionar. Muchas de estas especies bacterianas, incluidas las clasificadas de prioridad crítica, son transmitidas por el agua, de ahí que abordar este tema sea de suma importancia. Por ello una interesante y actual línea de investigación podría ir encaminada en el tratamiento de aguas de consumo humano mediante tecnología de membranas, ya que ésta presenta una excelente eficiencia en retención de bacterias y podría reducir así el riesgo de propagación de la resistencia bacteriana a antibióticos, afrontando la solución desde la prevención del problema.

Por tanto, y en resumen, se plantean las siguientes líneas de investigación futuras:

- Estudio de la formación de DBPs, sobre todo de AHAs y THMs, generados en las RDAP cuando se asocia pre-ozonización con membranas de UF.
- Estudio de la resistencia a antibióticos en aguas tratadas con membranas de UF.

7. APORTACIONES CIENTÍFICAS

7. APORTACIONES CIENTÍFICAS

Algunos de los resultados expuestos en el presente trabajo han sido publicados en revistas científicas internacionales indexadas en JCR y parcialmente expuestos en eventos de divulgación científica mediante ponencias en congresos de ámbito internacional y nacional.

7.1. PUBLICACIONES EN REVISTAS

- **Álvarez-Arroyo, R.**, Rojas-Serrano, F., Garralón, G., Plaza, F., Pérez Pérez, J.I., Gómez Nieto, M.Á., 2015. Evaluation of drinking water quality produced by ultrafiltration membranes in distribution systems. *Desalin. Water Treat.* 56, 3447-3455.
- Rojas-Serrano, F., **Álvarez-Arroyo, R.**, Pérez, J.I., Plaza, F., Garralón, G., Gómez, M.A., 2015. Ultrafiltration membranes for drinking-water production from low-quality surface water: A case study in Spain. *Membr. Water Treat.* 6, 77-94.

7.2. EVENTOS DE DIFUSIÓN CIENTÍFICA

- **Álvarez-Arroyo, R.**, Garralón, G., Plaza, F., Pérez, J.I., Gómez, M.Á. Comunicación oral "Evaluation of drinking water quality produced by ultrafiltration membranes in distribution systems" en el 9th Ibero-American Congress on Membrane Science and Technology. Santander (España), 25-28 Mayo 2014.
- Rojas, F., **Álvarez, R.**, Pérez, J.I., Gómez, M.Á. Comunicación oral "Drinking water production by ultrafiltration membranes: energy consumptions" en el 6th International Conference SOLARIS 2013. Granada (España), 16-17 Mayo 2013.
- Rojas, F., **Álvarez, R.**, Plaza, F., Garralón, G., Pérez, J.I., Gómez, M.Á. Comunicación oral "Ultrafiltration membranes for drinking-water production from low-quality surface water" en el IWA 3rd Regional Conference in Membrane Technology. Buenos Aires (Argentina), 3-6 Diciembre 2012.
- **Álvarez-Arroyo, R.**, Pérez Pérez, J.I., Gómez Nieto, M.Á. Comunicación oral "Evaluación de la contaminación en redes de distribución de agua potabilizada mediante membranas de ultrafiltración como garantía del suministro de agua" en el I Foro de Ingeniería para el Desarrollo Sostenible. Granada (España), 29-30 Septiembre 2016.

8. REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS

8. REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- Acero, J.L., Benitez, F.J., Real, F.J., Rodriguez, E., 2015. Elimination of selected emerging contaminants by the combination of membrane filtration and chemical oxidation processes. *Water, Air, Soil Pollut.* 226, 14. doi:10.1007/s11270-015-2404-8
- AENOR, 2000. UNE-EN ISO 9308-1:2000: Calidad del agua. Detección y recuento de *Escherichia coli* y de bacterias coliformes. Parte 1: Método de filtración en membrana. Madrid.
- AENOR, 1999. UNE-EN ISO 6222: Calidad del agua. Enumeración de microorganismos cultivables. Recuento de colonias por siembra en medio de cultivo de agar nutritivo. Madrid.
- Agüera, A., Martínez Bueno, M.J., Fernández-Alba, A.R., 2013. New trends in the analytical determination of emerging contaminants and their transformation products in environmental waters. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 20, 3496–3515. doi:10.1007/s11356-013-1586-0
- Ahmed, M.B., Zhou, J.L., Ngo, H.H., Guo, W., Thomaidis, N.S., Xu, J., 2016. Progress in the biological and chemical treatment technologies for emerging contaminant removal from wastewater: A critical review. *J. Hazard. Mater.* doi:10.1016/j.jhazmat.2016.04.045
- Aigües de Barcelona, 2015. L'estació de tractament d'aigua potable (ETAP) de Sant Joan Despí.
- Álvarez-Arroyo, R., Rojas-Serrano, F., Garralón, G., Plaza, F., Pérez Pérez, J.I., Gómez Nieto, M.Á., 2015. Evaluation of drinking water quality produced by ultrafiltration membranes in distribution systems. *Desalin. Water Treat.* 56, 3447–3455. doi:10.1080/19443994.2014.997295
- American Water Works Association Research Foundation (AWWARF), 1996. Internal Corrosion Control in Water Distribution Systems. AWWA, Denver, CO.
- Amy, G.L., Tan, L., Davis, M.K., 1991. The effects of ozonation and activated carbon adsorption on trihalomethane speciation. *Water Res.* 25, 191–202. doi:10.1016/0043-1354(91)90029-P
- Arnal, J.M., García-Fayos, B., Sancho, M., Lora, J., Verdú, G., 2006. Water potabilization in developing countries: membrane technology and natural coagulants. *Desalination* 200, 325–326. doi:10.1016/j.desal.2006.03.321
- Arnal, J.M., Sancho, M., Verdú, G., Lora, J., Marín, J.F., Cháfer, J., 2004. Selection of the most suitable

- ultrafiltration membrane for water disinfection in developing countries. *Desalination* 168, 265–270. doi:10.1016/j.desal.2004.07.007
- Arnal, J.M., Sancho Fernández, M., Martín Verdú, G., Lora García, J., 2001. Design of a membrane facility for water potabilization and its application to third world countries. *Desalination* 137, 63–69. doi:10.1016/S0011-9164(01)00205-3
- Arnal, J.M., Sancho Fernández, M., Verdú Martín, G., Lora García, J., Gozávez Zafrilla, J.M., Ibáñez Candela, J., Febrer Peiró, I., Terrades Martínez, I., 2002. Design and construction of a water potabilization membrane facility and its application to the third world countries. Preliminary tests. *Desalination* 145, 305–308. doi:10.1016/S0011-9164(02)00427-7
- Asadi Tashvigh, A., Fouladitajar, A., Zokaee Ashtiani, F., 2015. Modeling concentration polarization in crossflow microfiltration of oil-in-water emulsion using shear-induced diffusion; CFD and experimental studies. *Desalination* 357, 225–232. doi:10.1016/j.desal.2014.12.001
- Aschermann, G., Jeihanipour, A., Shen, J., Mkongo, G., Dramas, L., Croué, J.P., Schäfer, A., 2016. Seasonal variation of organic matter concentration and characteristics in the Maji ya Chai River (Tanzania): Impact on treatability by ultrafiltration. *Water Res.* 101, 370–381. doi:10.1016/j.watres.2016.05.022
- Ates, N., Kitis, M., Yetis, U., 2007. Formation of chlorination by-products in waters with low SUVA-correlations with SUVA and differential UV spectroscopy. *Water Res.* 41, 4139–4148. doi:10.1016/j.watres.2007.05.042
- Attias, L., Contu, A., Loizzo, A., Massiglia, M., Valente, P., Zapponi, G. a, 1995. Trihalomethanes in drinking water and cancer: risk assessment and integrated evaluation of available data, in animals and humans. *Sci Total Env.* 171, 61–68. doi:10.1016/0048-9697(95)04669-9
- AWWA, 1991. *Back to Basics Guide To Disinfection with Chlorine*. Denver.
- Bai, X., Zhang, X., Sun, Q.U.N., Wang, X., Zhu, B.I.N., Bai, X., Zhang, X., Sun, Q., 2006. Effect of Water Source Pollution on the Water Quality of Shanghai Water Supply System. *J. Environ. Sci. Heal. Part A* 41, 1271–1280. doi:10.1080/10934520600656711
- Barbosa, M.O., Moreira, N.F.F., Ribeiro, A.R., Pereira, M.F.R., Silva, A.M.T., 2016. Occurrence and removal of organic micropollutants: An overview of the watch list of EU Decision 2015/495. *Water Res.* 94, 257–279. doi:10.1016/j.watres.2016.02.047

- Bekkari, H., Touijer, H., Berrada, S., Ettaybi, M., Benchemsi, N., Maniar, S., El Ouali Lalami, A., 2016. Surveillance of bacteriological quality and resistance to disinfectants and antibiotics in a provincial hospital in Morocco. *J. Mater. Environ. Sci.* 7, 1–8.
- Bencko, V., Kožíšek, F., 2009. 100th anniversary of permanent drinking water disinfection and its current development. *Hygiena* 54, 130–135.
- Benner, J., Salhi, E., Ternes, T., von Gunten, U., 2008. Ozonation of reverse osmosis concentrate: Kinetics and efficiency of beta blocker oxidation. *Water Res.* 42, 3003–3012. doi:10.1016/j.watres.2008.04.002
- Berry, D., Holder, D., Xi, C., Raskin, L., 2010. Comparative transcriptomics of the response of *Escherichia coli* to the disinfectant monochloramine and to growth conditions inducing monochloramine resistance. *Water Res.* 44, 4924–4931. doi:10.1016/j.watres.2010.07.026
- Blaustein, R.A., Shelton, D.R., Van Kessel, J.A. nn S., Karns, J.S., Stocker, M.D., Pachepsky, Y.A., 2016. Irrigation waters and pipe-based biofilms as sources for antibiotic-resistant bacteria. *Environ. Monit. Assess.* 188, 56. doi:10.1007/s10661-015-5067-4
- Blokker, E.J.M., Schaap, P.G., 2015. Particle accumulation rate of drinking water distribution systems determined by incoming turbidity. *Procedia Eng.* 119, 290–298. doi:10.1016/j.proeng.2015.08.888
- Boorman, G.A., Dellarco, V., Dunnick, J.K., Chapin, R.E., Hunter, S., Hauchman, F., Gardner, H., Cox, M., Sills ', R.C., 1999. Drinking Water Disinfection Byproducts: Review and Approach to Toxicity Evaluation. *Environ. Health Perspect.* 107, 207–217. doi:10.1289/ehp.99107s1207
- Borges, A., Simões, D., 2015. Impact of biofilms in drinking water contamination by *Escherichia coli* coliform, in: *Coliforms: Occurrence, Detection Methods and Environmental Impact*. Nova Science Pub Inc, pp. 1–25.
- Bouki, C., Venieri, D., Diamadopoulos, E., 2013. Detection and fate of antibiotic resistant bacteria in wastewater treatment plants: A review. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 91, 1–9. doi:10.1016/j.ecoenv.2013.01.016
- Brooks, E., Freeman, C., Gough, R., Holliman, P.J., 2015. Tracing dissolved organic carbon and trihalomethane formation potential between source water and finished drinking water at a lowland and an upland UK catchment. *Sci. Total Environ.* 537, 203–212. doi:10.1016/j.scitotenv.2015.08.017

- Brown, D., Bridgeman, J., West, J.R., 2011. Predicting chlorine decay and THM formation in water supply systems. *Rev. Environ. Sci. Biotechnol.* 10, 79–99. doi:10.1007/s11157-011-9229-8
- Bryers, J.D., 2000. *Biofilms II: process analysis and applications*.
- Bucheli-Witschel, M., Kötzsch, S., Darr, S., Widler, R., Egli, T., 2012. A new method to assess the influence of migration from polymeric materials on the biostability of drinking water. *Water Res.* 46, 4246–60. doi:10.1016/j.watres.2012.05.008
- Calderón, K., González-Martínez, A., Montero-Puente, C., Reboleiro-Rivas, P., Poyatos, J.M., Juárez-Jiménez, B., Martínez-Toledo, M.V., Rodelas, B., 2012. Bacterial community structure and enzyme activities in a membrane bioreactor (MBR) using pure oxygen as an aeration source. *Bioresour. Technol.* 103, 87–94. doi:10.1016/j.biortech.2011.09.133
- Canal de Isable II Gestión, 2012. *Normas para redes de abastecimiento*. Madrid.
- Candy, H., Haskins, N., Quarini, J., Ribal, A.V., 2010. Ice Pigging: Ice technology for pipes cleaning and drinking water quality guarantee. *Tecnol. del Agua* 30, 52–57.
- Castagnetti, D., Scir Mammano, G., Dragoni, E., 2011. Effect of chlorinated water on the oxidative resistance and the mechanical strength of polyethylene pipes. *Polym. Test.* 30, 277–285. doi:10.1016/j.polymertesting.2010.12.001
- Center for Disease Control and Prevention (CDC), 1999. *Achievements in Public Health, 1900-1999: Control of Infectious Diseases, Morbidity and Mortality Weekly Report*. Atlanta, EEUU.
- Chiao, T.H., Clancy, T.M., Pinto, A., Xi, C., Raskin, L., 2014. Differential resistance of drinking water bacterial populations to monochloramine disinfection. *Environ. Sci. Technol.* 48, 4038–4047. doi:10.1021/es4055725
- Chien, C.C., Kao, C.M., Chen, C.W., Dong, C.D., Chien, H.Y., 2009. Evaluation of biological stability and corrosion potential in drinking water distribution systems: A case study. *Environ. Monit. Assess.* 153, 127–138. doi:10.1007/s10661-008-0343-1
- Chin, Y.-P., Aiken, G.R., O’Loughlin, E., 1994. Molecular weight, polydispersity, and spectroscopic properties of aquatic humic substances. *Environ. Sci. ...* 28, 1853–1858. doi:10.1021/es00060a015

- Choo, K.H., Lee, H., Choi, S.J., 2005. Iron and manganese removal and membrane fouling during UF in conjunction with prechlorination for drinking water treatment. *J. Memb. Sci.* 267, 18–26. doi:10.1016/j.memsci.2005.05.021
- Chow, C.W.K., Kuntke, P., Fabris, R., Drikas, M., 2009. Organic characterisation tools for distribution system management. *Water Sci. Technol. Water Supply* 9, 1–8. doi:10.2166/ws.2009.015
- Chowdhury, S., Champagne, P., McLellan, P.J., 2009. Models for predicting disinfection byproduct (DBP) formation in drinking waters: A chronological review. *Sci. Total Environ.* 407, 4189–4206. doi:10.1016/j.scitotenv.2009.04.006
- Clark, R.M., Boutin, B.K., 2001. Controlling disinfection by-products and microbial contaminants in drinking water, USEPA.
- Clark, R.M., Goodrich, J.A., 1986. Drinking water and cancer mortality. *Sci. Total Environ.* 53, 153–172. doi:10.1016/0048-9697(86)90129-4
- Cohn, P.D., Cox, M., Beger, P.S., 2002. Capítulo 2: Aspectos de la calidad del agua. Salud y estética, in: American Water Works Association (AWWA) (Ed.), *Calidad Y Tratamiento Del Agua: Manual de Suministros de Agua Comunitaria*. McGraw-Hill Interamericana de España, p. 1248.
- Comisión de la Unión Europea, 2015. Decisión de Ejecución (UE) 2015/495, de 20 de marzo de 2015, por la que se establece una lista de observación de sustancias a efectos de seguimiento a nivel de la Unión en el ámbito de la política de aguas, de conformidad con la Directiva 2008/105/CE del .
- Comisión Europea, 2015. Directiva (UE) 2015/1787 de la Comisión. *Diario Oficial de la Unión Europea*.
- Consejo de Europa, 1968. *Carta Europea del Agua*. Estrasburgo.
- Consejo de la Unión Europea, 1998. Directiva 98/83/CE del Consejo, *Official Journal of the European Communities*.
- Córdoba, M.A., Del Coco, V.F., Minvielle, M.C., Basualdo, J.Á., 2010. Influencing factors in the occurrence of injured coliforms in the drinking water distribution system in the city of La Plata, Argentina. *J. Water Health* 8, 205–211. doi:10.2166/wh.2009.141
- Craun, M.F., Craun, G.F., Calderon, R.L., Beach, M.J., 2006. Waterborne outbreaks reported in the United

- States. *J. Water Health* 4 Suppl.2, 19–30. doi:10.2166/wh.2006.016
- Croué, J.-P., Violleau, D., Labouyrie, L., 2000. Disinfection by-product formation potentials of hydrophobic and hydrophilic natural organic matter fractions: A comparison between a low- and a high-humic water. *ACS Symp. Ser.* 761, 139–153.
- Croue, J.P., Lefebvre, E., Martin, B., Legube, B., 1993. Removal of dissolved hydrophobic and hydrophilic organic substances during coagulation/flocculation of surface waters. *Water Sci. Technol.* 27, 143–152. doi:10.1109/ICIF.2008.4632383
- Currey, A., Suydam, T., Wetstein, D., 2007. World's largest UF facility a model of efficiency and sustainability, in: *AWWA Annual Conference and Exposition, ACE 2007*. Toronto (Canadá), pp. 827–840. doi:10.1142/S0218625X02002488
- de la Rúa, A., González-López, J., Gómez Nieto, M.A., 2008. Influence of temperature on inoculation and startup of a groundwater-denitrifying submerged filter. *Environ. Eng. Sci.* 25, 265–274. doi:10.1089/ees.2007.0007.Published
- de la Rubia, A., Rodríguez, M., León, V.M., Prats, D., 2008. Removal of natural organic matter and THM formation potential by ultra- and nanofiltration of surface water. *Water Res.* 42, 714–722. doi:10.1016/j.watres.2007.07.049
- de Vera, G.A., Keller, J., Gernjak, W., Weinberg, H., Farr??, M.J., 2016. Biodegradability of DBP precursors after drinking water ozonation. *Water Res.* 106, 550–561. doi:10.1016/j.watres.2016.10.022
- Delpla, I., Rodriguez, M.J., 2016. Experimental disinfection by-product formation potential following rainfall events. *Water Res.* 104, 340–348. doi:10.1016/j.watres.2016.08.031
- Déon, S., Dutournié, P., Fievet, P., Limousy, L., Bourseau, P., 2013. Concentration polarization phenomenon during the nanofiltration of multi-ionic solutions: Influence of the filtrated solution and operating conditions. *Water Res.* 47, 2260–2272. doi:10.1016/j.watres.2013.01.044
- Devilliers, C., Fayolle, B., Laiarinandrasana, L., Oberti, S., Gaudichet-Maurin, E., 2011. Kinetics of chlorine-induced polyethylene degradation in water pipes. *Polym. Degrad. Stab.* 96, 1361–1368. doi:10.1016/j.polymdegradstab.2011.03.013
- Dodd, M.C., 2012. Potential impacts of disinfection processes on elimination and deactivation of antibiotic

resistance genes during water and wastewater treatment. *J. Environ. Monit.* 14, 1754–1771. doi:10.1039/c2em00006g

Domínguez-Tello, A., Arias-Borrego, A., García-Barrera, T., Gómez-Ariza, J.L., 2015. Seasonal and spatial evolution of trihalomethanes in a drinking water distribution system according to the treatment process. *Environ. Monit. Assess.* 187, 19. doi:10.1007/s10661-015-4885-8

Donlan, R.M., 2002. Biofilms: microbial life on surfaces. *Emerg. Infect. Dis.* 8, 881–90. doi:10.3201/eid0809.020063

Durán, J.A., Moral, J., 2015. Gestión de las redes de abastecimiento. Control del Agua No Registrada (ANR), in: IV Jornadas de Ingeniería Del Agua. Córdoba (España), p. 10.

Edberg, S.C., Rice, E.W., Karlin, R.J., Allen, M.J., 2000. *Escherichia coli*: the best biological drinking water indicator for public health protection. *Symp. Ser. Soc. Appl. Microbiol.* 106S–116S. doi:10.1109/ICIF.2008.4632383

Edzwald, J.K., Becker, W.C., Wattier, K.L., 1985. Surrogate Parameters for Monitoring Organic-Matter and THM Precursors 122–132.

Edzwald, J.K., Tobiasson, J.E., 1999. Enhanced coagulation: US requirements and a broader view. *Water Sci. Technol.* 40, 63–70. doi:10.1016/S0273-1223(99)00641-1

Edzwald, J.K., Van Benschoten, J., 1990. Aluminium coagulation of natural organic matter. *Chem. Water Wastewater Treat.* 341–359.

EPA, 2002. Health Risks from Microbial Growth and Biofilms in Drinking Water Distribution Systems.

EPA, 1999. Microbial and Disinfection Byproduct Rules - Simultaneous Compliance Guidance Manual.

Escobar, I.C., Randall, A.A., 2001a. Case study: Ozonation and distribution system biostability. *J. Am. Water Work. Assoc.* 93, 77–89.

Escobar, I.C., Randall, A.A., 2001b. Assimilable organic carbon (AOC) and biodegradable dissolved organic carbon (BDOC): Complementary measurements. *Water Res.* 35, 4444–4454. doi:10.1016/S0043-1354(01)00173-7

Fabris, R., Chow, C.W.K., Drikas, M., Eikebrokk, B., 2008. Comparison of NOM character in selected Australian

and Norwegian drinking waters. *Water Res.* 42, 4188–4196. doi:10.1016/j.watres.2008.06.023

Fabris, R., Denman, J., Braun, K., Ho, L., Drikas, M., 2015. Surface analysis of pilot distribution system pipe autopsies: The relationship of organic and inorganic deposits to input water quality. *Water Res.* 87, 202–210. doi:10.1016/j.watres.2015.09.031

Farkas, A., Butiuc-Keul, A., Ciatarăș, D., Neamțu, C., Crăciunaș, C., Podar, D., Drăgan-Bularda, M., 2013. Microbiological contamination and resistance genes in biofilms occurring during the drinking water treatment process. *Sci. Total Environ.* 443, 932–938. doi:10.1016/j.scitotenv.2012.11.068

Fernandez-Álvarez, G., Garralón, G., Plaza, F., Garralón, A., Pérez, J., Gómez, M.A., 2010. Autopsy of SWRO membranes from desalination plant in Ceuta after 8 years in operation. *Desalination* 263, 264–270. doi:10.1016/j.desal.2010.06.068

Fish, K., Osborn, A.M., Boxall, J., 2016. Characterising and Understanding the Impact of Microbial Biofilms and the Extracellular Polymeric Substance (EPS) Matrix in Drinking Water Distribution Systems. *Environ. Sci. Water Res. Technol.* 2, 614–630. doi:10.1039/C6EW00039H

Forslund, J., Kjolhede, T., Nilsson, N.H.I., 1991. Influence of plastic materials on drinking water quality parameters. *WATER SUPPLY* 9, SS12.11-15.

Galapate, R.P., Baes, A.U., Okada, M., 2001. Transformation of dissolved organic matter during ozonation: effects on trihalomethane formation potential. *Water Res.* 35, 2201–2206.

Gallard, H., Von Gunten, U., 2002. Chlorination of natural organic matter: Kinetics of chlorination and of THM formation. *Water Res.* 36, 65–74. doi:10.1016/S0043-1354(01)00187-7

Gauthier, V., Barbeau, B., Millette, R., Block, J.C., Prevost, M., 2001. Suspended Particles in the Drinking Water of Two Distribution Systems. *Water Sci Technol Water Supply* 1, 237–245.

Gauthier, V., Gérard, B., Portal, J.-M., Block, J.-C., Gatel, D., 1999. Organic matter as loose deposits in a drinking water distribution system. *Water Res.* 33, 1014–1026.

Giller, P.S., Myers, A.A., O'Halloran, J., 1999. Capítulo 6: Perspectivas ecológicas de la contaminación del agua, in: McGraw-Hill Interamericana de España S.L. (Ed.), *Ingeniería Ambiental. Fundamentos, Entornos, Tecnologías Y Sistemas de Gestión*. McGraw-Hill Interamericana de España S.L., pp. 355–409.

- Gillespie, S., Lipphaus, P., Green, J., Parsons, S., Weir, P., Juskowiak, K., Jefferson, B., Jarvis, P., Nocker, A., 2014. Assessing microbiological water quality in drinking water distribution systems with disinfectant residual using flow cytometry. *Water Res.* 65, 224–234. doi:10.1016/j.watres.2014.07.029
- Gofti, L., Zmirou, D., Seigle Murandi, F., Hartemann, P., Potelon, J.L., 2016. Waterborne microbiological risk assessment: A state of the art and perspectives. *Rev. Epidemiol. Sante Publique* 47, 61–73.
- Gomes, I.B., Simões, M., Simões, L.C., 2016. The effects of sodium hypochlorite against selected drinking water-isolated bacteria in planktonic and sessile states. *Sci. Total Environ.* 565, 40–48. doi:10.1016/j.scitotenv.2016.04.136
- Gómez, M., de la Rúa, A., Garralón, G., Plaza, F., Hontoria, E., Gómez, M. a., 2006. Urban wastewater disinfection by filtration technologies. *Desalination* 190, 16–28. doi:10.1016/j.desal.2005.07.014
- Gómez, M., Hontoria, E., 2003. *Técnicas analíticas en el control de la Ingeniería Ambiental*, Universidad de Granada.
- Gómez, M., Plaza, F., Garralón, G., Pérez, J., Gómez, M. a., 2007. A comparative study of tertiary wastewater treatment by physico-chemical-UV process and macrofiltration–ultrafiltration technologies. *Desalination* 202, 369–376. doi:10.1016/j.desal.2005.12.076
- Gopal, K., Tripathy, S.S., Bersillon, J.L., Dubey, S.P., 2007. Chlorination byproducts, their toxicodynamics and removal from drinking water. *J. Hazard. Mater.* 140, 1–6. doi:10.1016/j.jhazmat.2006.10.063
- Gruber, J.S., Ercumen, A., Colford, J.M., 2014. Coliform bacteria as indicators of diarrheal risk in household drinking water: Systematic review and meta-analysis. *PLoS One* 9. doi:10.1371/journal.pone.0107429
- Hametner, C., 1999. Polypropylene pipes for drinking water supply. *J. Macromol. Sci. - Pure Appl. Chem.* 36 A, 1751–1758.
- Holden, B., Greetham, M., Croll, B.T., Scutt, J., 1995. The effect of changing inter process and final disinfection reagents on corrosion and biofilm growth in distribution pipes. *Water Sci. Technol.* 32, 213–220. doi:10.1016/0273-1223(96)00028-5
- Homonnay, Z.G., Török, G., Makk, J., Brumbauer, A., Major, É., Márialigeti, K., Tóth, E., 2014. Bacterial communities in the collection and chlorinated distribution sections of a drinking water system in Budapest, Hungary. *J. Basic Microbiol.* 54, 729–738. doi:10.1002/jobm.201300960

- Hua, G., Reckhow, D.A., 2013. Effect of pre-ozonation on the formation and speciation of DBPs. *Water Res.* 47, 4322–4330. doi:10.1016/j.watres.2013.04.057
- Hua, G., Reckhow, D.A., 2007. Comparison of disinfection byproduct formation from chlorine and alternative disinfectants. *Water Res.* 41, 1667–1678. doi:10.1016/j.watres.2007.01.032
- Hua, G., Reckhow, D.A., Abusallout, I., 2015. Correlation between SUVA and DBP formation during chlorination and chloramination of NOM fractions from different sources. *Chemosphere* 130, 82–9. doi:10.1016/j.chemosphere.2015.03.039
- Huang, H., Chow, C.W.K., Jin, B., 2016a. Characterisation of dissolved organic matter in stormwater using high-performance size exclusion chromatography. *J. Environ. Sci.* 42, 236–245. doi:10.1016/j.jes.2015.07.003
- Huang, H., Sawade, E., Cook, D., Chow, C.W.K., Drikas, M., Jin, B., 2016b. High-performance size exclusion chromatography with a multi-wavelength absorbance detector study on dissolved organic matter characterisation along a water distribution system. *J. Environ. Sci.* Article in, 1–9. doi:10.1016/j.jes.2015.12.011
- Huang, J.J., Hu, H.Y., Tang, F., Li, Y., Lu, S.Q., Lu, Y., 2011. Inactivation and reactivation of antibiotic-resistant bacteria by chlorination in secondary effluents of a municipal wastewater treatment plant. *Water Res.* 45, 2775–2781. doi:10.1016/j.watres.2011.02.026
- Huang, J.J., Hu, H.Y., Wu, Y.H., Wei, B., Lu, Y., 2013. Effect of chlorination and ultraviolet disinfection on tetA-mediated tetracycline resistance of *Escherichia coli*. *Chemosphere* 90, 2247–2253. doi:10.1016/j.chemosphere.2012.10.008
- Huang, W.J., Fang, G.C., Wang, C.C., 2005. The determination and fate of disinfection by-products from ozonation of polluted raw water. *Sci. Total Environ.* 345, 261–272. doi:10.1016/j.scitotenv.2004.10.019
- Huang, X., Wei, I.W., Sung, W., 2005a. Pilot study of greater boston drinking water quality changes - Monochloramine and pH change, in: *World Water and Environmental Resources Congress 2004*. San Francisco, CA (United States), p. 17.
- Huang, X., Wei, I.W., Sung, W., 2005b. Pilot Study of Greater Boston Drinking Water Quality Changes - Monochloramine and pH change, in: *AWWA 124th Annual Conference and Exposition: The World's Water Event, ACE 2005*. San Francisco, CA (United States), p. 17.

- Hyung, H., Lee, S., Yoon, J., Lee, C.-H., 2000. Effect of Preozonation on Flux and Water Quality in Ozonation-Ultrafiltration Hybrid System for Water Treatment. *Ozone Sci. Eng.* 22, 637–652. doi:10.1080/01919510009408804
- Ibrahim, H.T., Qiang, H., Al-Rekabi, W.S., Qiqi, Y., 2012. Improvements in biofilm processes for wastewater treatment. *Pakistan J. Nutr.* 11, 610–636. doi:10.1017/CBO9781107415324.004
- Ikonen, J., Pitkänen, T., Miettinen, I.T., 2013. Suitability of optical, physical and chemical measurements for detection of changes in bacterial drinking water quality. *Int. J. Environ. Res. Public Health* 10, 5349–5363. doi:10.3390/ijerph10115349
- IMTA, 2005. Tecnologías convencionales de tratamiento de agua y sus limitaciones.
- Iritani, E., 2009. Modeling and Evaluation of Pore Clogging of Membrane in Membrane Filtration. *Kagaku Kogaku Ronbunshu* 35, 1–11. doi:10.1252/kakoronbunshu.35.1
- Ivancev-Tumbas, I., Dalmacija, B., Tamas, Z., Karlovic, E., 1999. The effect of different drinking water treatment processes on the rate of chloroform formation in the reactions of natural organic matter with hypochlorite. *Water Res.* 33, 3715–3722. doi:10.1016/S0043-1354(99)00070-6
- Jacangelo, J.G., 2004. Control of Microorganisms in Drinking Water by Pressure-Driven Membrane Processes. *Bridg. Gap Bridging Gap Meet. World's Water Environ. Resour. Challenges - Proc. World Water Environ. Resour. Congr. 2001* 87, 1–5. doi:10.1061/40569(2001)428
- Jang, E., Nam, S.-H., Hwang, T.-M., Lee, S., Choi, Y., 2015. Effect of operating parameters on temperature and concentration polarization in vacuum membrane distillation process. *Desalin. Water Treat.* 54, 871–880. doi:10.1080/19443994.2014.952673
- Judd, S., 2006. *The MBR book: Principles and Applications of Membrane Bioreactors in Water and Wastewater Treatment.*
- Karnik, B.S., 2005. Application of Ozone-Membrane Filtration Hybrid Process for Drinking Water Treatment and Disinfection Byproducts Formation, in: *World Water and Environmental Resources Congress 2005.* Anchorage, AK, United States, p. 8. doi:10.1061/40792(173)5
- Kerneis, A., Nakache, F., Deguin, A., Feinberg, M., 1995. The effects of water residence time on the biological quality in a distribution network. *Water Res.* 29, 1719–1727. doi:10.1016/0043-1354(94)00323-Y

- Khan, S., Beattie, T.K., Knapp, C.W., 2016. Relationship between antibiotic- and disinfectant-resistance profiles in bacteria harvested from tap water. *Chemosphere* 152, 132–141. doi:10.1016/j.chemosphere.2016.02.086
- Khramenkov, S.V., Schröder, R., 2011. Improving the quality of drinking water in Moscow by integrating modern technologies in the waterworks south-west. *GWF, Wasser - Abwasser* 148, 766–772. doi:10.1142/S0218625X02002488
- Kiely, G., 1999. *Ingeniería Ambiental. Fundamentos, entornos, tecnologías y sistemas de gestión*. McGraw-Hill Interamericana de España S.L.
- Kim, Y., Kweon, J., Kim, D., Lee, C., 2014. Effects of advanced treatments using granular activated carbon adsorption with ozonation and ultrafiltration on chlorine decay. *Desalin. Water Treat.* 52, 976–984. doi:10.1080/19443994.2013.827319
- Kimura, S.Y., Vu, T.N., Komaki, Y., Plewa, M.J., Mariñas, B.J., 2015. Acetonitrile and N-Chloroacetamide Formation from the Reaction of Acetaldehyde and Monochloramine. *Environ. Sci. Technol.* 49, 9954–9963. doi:10.1021/acs.est.5b01875
- Kitis, M., Karanfil, T., Wigton, A., Kilduff, J.E., 2002. Probing reactivity of dissolved organic matter for disinfection by-product formation using XAD-8 resin adsorption and ultrafiltration fractionation. *Water Res.* 36, 3834–3848. doi:10.1016/S0043-1354(02)00094-5
- Knobelsdorf, J., Mujeriego, R., 1997. Crecimiento bacteriano en las redes de distribución de agua potable: una revisión bibliográfica. *Ing. del Agua* 4, 17–27.
- Korotta-Gamage, S.M., Sathasivan, A., 2017. A review: Potential and challenges of biologically activated carbon to remove natural organic matter in drinking water purification process. *Chemosphere* 167, 120–138. doi:10.1016/j.chemosphere.2016.09.097
- Kowalski, K.P., Madsen, H.T., Sogaard, E.G., 2014. Comparison of sand and membrane filtration as nonchemical pre-treatment strategies for pesticide removal with nanofiltration/low pressure reverse osmosis membranes. *Water Sci. Technol. Water Supply* 14, 532–539. doi:10.2166/ws.2014.004
- Kowbel, D.J., Ramaswamy, S., Malaiyandi, M., Nestmann, E.R., 1986. Mutagenicity studies in salmonella: Residues of ozonated and/or chlorinated water fulvic acids. *Environ. Mutagen.* 8, 253–262. doi:10.1002/em.2860080207

- Kuch, A., 1988. Investigations of the reduction and re-oxidation kinetics of iron(III) oxide scales formed in waters. *Corros. Sci.* 28, 221–231. doi:10.1016/0010-938X(88)90106-0
- Kumari, M., Gupta, S.K., 2015. Modeling of trihalomethanes (THMs) in drinking water supplies: a case study of eastern part of India. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 22, 12615–12623. doi:10.1007/s11356-015-4553-0
- Lamsal, R., Montreuil, K.R., Kent, F.C., Walsh, M.E., Gagnon, G.A., 2012. Characterization and removal of natural organic matter by an integrated membrane system. *Desalination* 303, 12–16. doi:10.1016/j.desal.2012.06.025
- Lasa, I., del Pozo, J.L., Penadés, J.R., Leiva, J., 2005. Biofilms bacterianos e infección. *An. Sist. Sanit. Navar.* 28, 163–175.
- Lavonen, E.E., Gonsior, M., Tranvik, L.J., Schmitt-kopplin, P., Ko, S.J., 2013. Selective Chlorination of Natural Organic Matter : Identification of Previously Unknown Disinfection Byproducts. *Environ. Sci. Technol.* 47, 2264–2271.
- LeChevallier, M.W., Babcock, T.M., Lee, R.G., 1987. Examination and Characterization of Distribution-System Biofilms. *Appl. Environ. Microbiol.* 53, 2714–2724.
- LeChevallier, M.W., Welch, N.J., Smith, D.B., 1996. Full-scale studies of factors related to coliform regrowth in drinking water. *Appl. Environ. Microbiol.* 62, 2201–2211.
- Leclerc, H., Schwartzbrod, L., Dei-Cas, E., 2002. Microbial agents associated with waterborne diseases. *Crit. Rev. Microbiol.* 28, 371–409. doi:10.1080/1040-840291046768
- Lehtola, M.J., Laxander, M., Miettinen, I.T., Hirvonen, A., Vartiainen, T., Martikainen, P.J., 2006. The effects of changing water flow velocity on the formation of biofilms and water quality in pilot distribution system consisting of copper or polyethylene pipes. *Water Res.* 40, 2151–2160. doi:10.1016/j.watres.2006.04.010
- Lehtola, M.J., Miettinen, I.T., Keinänen, M.M., Kekki, T.K., Laine, O., Hirvonen, A., Vartiainen, T., Martikainen, P.J., 2004. Microbiology, chemistry and biofilm development in a pilot drinking water distribution system with copper and plastic pipes. *Water Res.* 38, 3769–3779. doi:10.1016/j.watres.2004.06.024
- Lehtola, M.J., Nissinen, T.K., Miettinen, I.T., Martikainen, P.J., Vartiainen, T., 2004. Removal of soft deposits from the distribution system improves the drinking water quality. *Water Res.* 38, 601–610.

- Lepš, J., Šmilauer, P., 2003. *Multivariate Analysis of Ecological Data using CANOCO*. Cambridge University Press. doi:10.1017/CBO9780511615146
- Li, Q., Liu, S., Zhao, X., Hu, H., Hu, C., Niu, J., 2015. Comparison of residual chlorine decay in different reclaimed water and the relationship with the change in DOM. *Huanjing Kexue Xuebao/Acta Sci. Circumstantiae* 35, 2387–2392. doi:10.13671/j.hjkxxb.2014.1030
- Lin, C.F., Yu-Chen Lin, A., Sri Chandana, P., Tsai, C.Y., 2009. Effects of mass retention of dissolved organic matter and membrane pore size on membrane fouling and flux decline. *Water Res.* 43, 389–394. doi:10.1016/j.watres.2008.10.042
- Lipp, P., 2014. The use of ultrafiltration in the public drinking water supply in Germany.
- Lisle, J.T., Broadaway, S.C., Prescott, A.M., Pyle, B.H., Fricker, C., Mcfeters, G.A., 1998. Effects of starvation on physiological activity and chlorine disinfection resistance in *Escherichia coli* O157:H7. *Appl. Environ. Microbiol.* 64, 4658–4662.
- Liu, G., Lut, M.C., Verberk, J., Q.J.C., Van Dijk, J.C., 2013a. A comparison of additional treatment processes to limit particle accumulation and microbial growth during drinking water distribution. *Water Res.* 47, 2719–28. doi:10.1016/j.watres.2013.02.035
- Liu, G., Verberk, J.Q.J.C., Van Dijk, J.C., 2013b. Bacteriology of drinking water distribution systems: An integral and multidimensional review. *Appl. Microbiol. Biotechnol.* 97, 9265–9276. doi:10.1007/s00253-013-5217-y
- Liu, W., Wu, H., Wang, Z., Ong, S.L., Hu, J.Y., Ng, W.J., 2002. Investigation of assimilable organic carbon (AOC) and bacterial regrowth in drinking water distribution system. *Water Res.* 36, 891–898.
- Liu, Z., Yin, H., Dang, Z., 2016. Do estrogenic compounds in drinking water migrating from plastic pipe distribution system pose adverse effects to human? An analysis of scientific literature. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 1–9. doi:10.1007/s11356-016-8032-z
- López-Roldán, R., Platikanov, S., Martín-Alonso, J., Tauler, R., González, S., Cortina, J.L., 2016. Integration of Ultraviolet-Visible spectral and physicochemical data in chemometrics analysis for improved discrimination of water sources and blends for application to the complex drinking water distribution network of Barcelona. *J. Clean. Prod.* 112, 4789–4798. doi:10.1016/j.jclepro.2015.06.074

- Löschner, D., Rapp, T., Schlosser, F.-U., Schuster, R., Stottmeister, E., Zander, S., 2011. Experience with the application of the draft European Standard prEN 15768 to the identification of leachable organic substances from materials in contact with drinking water by GC-MS. *Anal. Methods* 3, 2547. doi:10.1039/c1ay05471f
- Lund, V., Ormerod, K., 1995. The influence of disinfection processes on biofilm formation in water distribution systems. *Water Res.* 29, 1013–1021.
- Luo, Y., Guo, W., Ngo, H.H., Nghiem, L.D., Hai, F.I., Zhang, J., Liang, S., Wang, X.C., 2014. A review on the occurrence of micropollutants in the aquatic environment and their fate and removal during wastewater treatment. *Sci. Total Environ.* 473–474, 619–641. doi:10.1016/j.scitotenv.2013.12.065
- Lv, L., Jiang, T., Zhang, S., Yu, X., 2014. Exposure to mutagenic disinfection byproducts leads to increase of antibiotic resistance in *Pseudomonas aeruginosa*. *Environ. Sci. Technol.* 48, 8188–8195. doi:10.1021/es501646n
- Madaeni, S.S., 1999. The application of membrane technology for water disinfection. *Water Res.* 33, 301–308.
- Maeng, M., Choi, E., Dockko, S., 2015. Reduction of organic matter in drinking water using a hybrid system combined with a rock biofilter and membrane in developing countries. *Int. Biodeterior. Biodegradation* 102, 223–230. doi:10.1016/j.ibiod.2015.02.005
- Mallevalle, J., Odendaal, P.E., Wiesner, M.R., 1996. *Water Treatment Membrane Processes*. McGraw-Hill, US.
- Mallevalle, J., Suffet, I.H., 1987. *Identification and treatment of tastes and odors in drinking water*. American Water Works Association (AWWA), Francia.
- Mancini, G., Roccaro, P., Vagliasindi, F.G. a., 2005. Water intended for human consumption — Part II: Treatment alternatives, monitoring issues and resulting costs. *Desalination* 176, 143–153. doi:10.1016/j.desal.2004.11.007
- Marín Galvín, R., 2003. *Físicoquímica y Microbiología de los Medios Acuáticos: Tratamiento y Control de Calidad de Aguas*. Ediciones Díaz de Santos, Madrid (España).
- Mason, C.F., 1991. *Biology of Freshwater Pollution*. Longman, Harlow.

- Matilainen, A., Lindqvist, N., Korhonen, S., Tuhkanen, T., 2002. Removal of NOM in the different stages of the water treatment process. *Environ. Int.* 28, 457–465. doi:10.1016/S0160-4120(02)00071-5
- Matilainen, A., Sillanpää, M., 2010. Removal of natural organic matter from drinking water by advanced oxidation processes. *Chemosphere* 80, 351–365. doi:10.1016/j.chemosphere.2010.04.067
- McAliley, I., Reiber, S., D’Adamo, P., Price, K.C., 2012. Corrosion control strategies for low alkalinity waters, in: *Water Quality Technology Conference and Exposition 2012*. Toronto (Canadá), p. 15.
- McNeill, L.S., Edwards, M., 2002. The importance of temperature in assessing iron pipe corrosion in water distribution systems. *Environ. Monit. Assess.* 77, 229–242. doi:10.1361/asmhba0004102
- Mendoza, J., Cedillo, M., Muñoz, A., Silva, F., 2008. Efecto de las condiciones ambientales en la formación in vitro de biopelículas de *Klebsiella pneumoniae*. *Rev. Latinoam. Recur. Nat.* 4, 3–16.
- Merino Guzmán, G., Cedillo Ramírez, L., Silva Andrade, Francisco Muñoz García, A.A., Castañeda Roldán, E.I., 2011. Análisis morfológico de biopelículas de *Candida albicans* producidas en diferentes condiciones de pH y temperatura analizadas por microscopía óptica y de fuerza atómica. *Rev. Mex. Micol.* 33, 1–8.
- Metsämuuronen, S., Sillanpää, M., Bhatnagar, A., Mänttari, M., 2013. Natural Organic Matter Removal from Drinking Water by Membrane Technology. *Sep. Purif. Rev.* 43, 1–61. doi:10.1080/15422119.2012.712080
- Mi, Z., Dai, Y., Xie, S., Chen, C., Zhang, X., 2015. Impact of disinfection on drinking water biofilm bacterial community. *J. Environ. Sci. (China)* 37, 200–205. doi:10.1016/j.jes.2015.04.008
- Mierzwa, J.C., Hespanhol, I., da Silva, M.C.C., Rodrigues, L.D.B., Giorgi, C.F., 2008. Direct drinking water treatment by spiral-wound ultrafiltration membranes. *Desalination* 230, 41–50. doi:10.1016/j.desal.2007.11.014
- Ministerio de Educación y Ciencia, 2004. Los sistemas terrestres y sus implicaciones medioambientales.
- Ministerio de Fomento, G. de E., 2009. Código Técnico de la Edificación. Documento Básico de Salubridad. Suministro de agua (CTE-DB-HS4). España.
- Ministerio de la Presidencia, 2016. Real Decreto 314/2016, de 29 de julio, por el que se modifican el Real Decreto 140/2003, de 7 de febrero, por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del

- agua de consumo humano, el Real Decreto 1798/2010, de 30 de diciembre, por el que. BOE núm. 183, España. doi:BOE-A-2012-5403
- Ministerio de la Presidencia, 2003. REAL DECRETO 140/2003, de 7 de febrero, por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano. BOE núm. 45, España.
- Ministerio de Sanidad Política Social e Igualdad, 2011. Calidad del agua de consumo humano en España. Informe Técnico. Año 2010.
- Ministerio de Sanidad y Consumo, 2005. Desarrollo del artículo 27.7 del Real Decreto 140/2003, de 7 de febrero. Gob. España.
- Ministerio de Sanidad y Consumo, 2003. REAL DECRETO 865/2003, de 4 de julio, por el que se establecen los criterios higiénicos-sanitarios para la prevención y control de la legionelosis, Boletín Oficial del Estado.
- Mitroka, S.M., Smiley, T.D., Tanko, J.M., Dietrich, A.M., 2013. Reaction mechanism for oxidation and degradation of high density polyethylene in chlorinated water. *Polym. Degrad. Stab.* 98, 1369–1377. doi:10.1016/j.polymdegradstab.2013.03.020
- Molelekwa, G.F., Mukhola, M.S., Van der Bruggen, B., Luis, P., 2014. Preliminary studies on membrane filtration for the production of potable water: a case of Tshaanda rural village in South Africa. *PLoS One* 9, e105057. doi:10.1371/journal.pone.0105057
- Molnar, J., Agbaba, J., Dalmacija, B., Rončević, S., Prica, M., Tubić, A., 2012. Influence of pH and ozone dose on the content and structure of haloacetic acid precursors in groundwater. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 19, 3079–3086. doi:10.1007/s11356-012-0896-y
- Momba, M.N.B., Kfir, R., Venter, S.N., Cloete, T.E., 2000. An overview of biofilm formation in distribution systems and its impact on the deterioration of water quality. *Water SA* 26, 59–66.
- Momba, M.N.B., Makala, N., 2004. Comparing the effect of various pipe materials on biofilm formation in chlorinated and combined chlorine-chloraminated water systems. *Water SA* 30, 175–182. doi:10.4314/wsa.v30i2.5061
- Monroe, D., 2007. Looking for chinks in the armor of bacterial biofilms. *PLoS Biol.* 5, 2458–2461. doi:10.1371/journal.pbio.0050307

- Montgomery, J.R., 2010. Study of The Effects of Ozonation and Flow on Corrosion of Cement Mortar Lined Water Pipe, in: World Environmental and Water Resources Congress 2010: Challenges of Change - Proceedings of the World Environmental and Water Resources Congress 2010. Providence (USA), pp. 29–36. doi:10.1061/41114(371)5
- Morcillo, F. (Asociación E. de A. de A. y S.-A., 2014. Servicios de agua en España, in: 12º Congreso Nacional Del Medio Ambiente (CONAMA 2014). Madrid, p. 30.
- Moro González, A., 2011. Contaminación del agua potable: problemas microbiológicos. Ind. del agua.
- Mouly, D., Joulin, E., Rosin, C., Beaudreau, P., Zeghnoun, A., Olszewski-Ortar, A., Munoz, J.F., Welt??, B., Joyeux, M., Seux, R., Montiel, A., Rodriguez, M.J., 2010. Variations in trihalomethane levels in three French water distribution systems and the development of a predictive model. *Water Res.* 44, 5168–5179. doi:10.1016/j.watres.2010.06.028
- Nair, J., Gibbs, R., Mathew, K., Ho, G.E., 2001. Suitability of the H₂S method for testing untreated and chlorinated water supplies. *Water Sci. Technol.* 44, 119–126.
- Navarrete Rodríguez, S.C., 2012. Modelización física de biopelículas en redes de distribución de agua potable alimentadas con carbono orgánico disuelto.
- Nazar C., J., 2007. Biofilms bacterianos. *Rev. Otorrinolaringol. y cirugía cabeza y cuello* 67, 61–72.
- Neilands, K., Bernats, M., Rubulis, J., 2012. Accumulation and modeling of particles in drinking water pipe fittings. *Drink. Water Eng. Sci.* 5, 47–57. doi:10.5194/dwes-5-47-2012
- Ng, D.-Q., Lin, Y.-P., 2016. Effects of pH value, chloride and sulfate concentrations on galvanic corrosion between lead and copper in drinking water. *Environ. Chem.* 13, 602–610. doi:10.1071/EN15156
- Nicolella, C., Van Loosdrecht, M.C.M., Heijnen, J.J., 2000. Wastewater treatment with particulate biofilm reactors. *J. Biotechnol.* 80, 1–33. doi:10.1016/S0168-1656(00)00229-7
- Nwachuku, N., Gerba, C.P., 2004. Emerging waterborne pathogens: Can we kill them all? *Curr. Opin. Biotechnol.* 15, 175–180. doi:10.1016/j.copbio.2004.04.010
- Obolensky, A., Singer, P.C., 2008. Development and interpretation of disinfection byproduct formation models using the information collection rule database. *Environ. Sci. Technol.* 42, 5654–5660.

doi:10.1021/es702974f

- Ochando-Pulido, J.M., Hodaifa, G., Martínez-Ferez, A., 2014. Permeate recirculation impact on concentration polarization and fouling on RO purification of olive mill wastewater. *Desalination* 343, 169–179. doi:10.1016/j.desal.2014.03.025
- OMS, 2017. Global priority list of antibiotic-resistant bacteria to guide research, discovery, and development of new antibiotics.
- OMS, 2015. Informe 2015 del Programa Conjunto OMS/UNICEF de Monitoreo (PCM): datos esenciales.
- OMS, 2008a. Hojas de información microbiológica, in: *Guías Para La Calidad Del Agua*. pp. 191–241.
- OMS, 2008b. *Guías para la calidad del agua potable (primer apéndice a la tercera edición)*.
- OMS, 2006. *Guidelines for the safe use of wastewater, excreta and greywater*.
- OMS, 1961. *Actividades de la OMS en 1961: informe anual del Director General a la Asamblea Mundial de la Salud y a las Naciones Unidas (del 1 de octubre de 1960 al 31 de diciembre de 1961)*. Ginebra.
- Ortiz Mingo, J., 2015. *Tratamientos avanzados de agua potable para eliminación de materia orgánica disuelta: aplicación del BAC*.
- Pal, A., He, Y., Jekel, M., Reinhard, M., Gin, K.Y.H., 2014. Emerging contaminants of public health significance as water quality indicator compounds in the urban water cycle. *Environ. Int.* 71, 46–62. doi:10.1016/j.envint.2014.05.025
- Park, S.K., Hu, J.Y., 2010. Interaction between phosphorus and biodegradable organic carbon on drinking water biofilm subject to chlorination. *J. Appl. Microbiol.* 108, 2077–2087. doi:10.1111/j.1365-2672.2009.04612.x
- Parlamento Europeo y Consejo de la Unión Europea, 2013. Directiva 2013/39/UE, de 12 de agosto de 2013, por la que se modifican las Directivas 2000/60/CE y 2008/105/CE en cuanto a las sustancias prioritarias en el ámbito de la política de aguas.
- Pavissich, J.P., Vargas, I.T., González, B., Pastén, P. a, Pizarro, G.E., 2010. Culture dependent and independent analyses of bacterial communities involved in copper plumbing corrosion. *J. Appl. Microbiol.* 109, 771–782. doi:10.1111/j.1365-2672.2010.04704.x

- Pellegrin, M.-L., Greiner, A.D., Aguinaldo, J., Diamond, J., Gluck, S., Burbano, M.S., Arabi, S., Wert, J., McCandless, R., Padhye, L.P., Shoaf, R., 2012. Membrane Processes. *Water Environ. Res.* 84, 1114–1216. doi:10.2175/106143007X218421
- Peng, C.-Y., Korshin, G. V, 2011. Speciation of trace inorganic contaminants in corrosion scales and deposits formed in drinking water distribution systems. *Water Res.* 45, 5553–5563. doi:10.1016/j.watres.2011.08.017
- Percival, S.L., Walker, J.T., Hunter, P.R., 2010. *Microbiological Aspects of Biofilms and Drinking Water*. Boca Raton (Florida).
- Perez-Martinez, I., Aguilar-Ayala, D. a, Fernandez-Rendon, E., Carrillo-Sanchez, A.K., Helguera-Repetto, A.C., Rivera-Gutierrez, S., Estrada-Garcia, T., Cerna-Cortes, J.F., Gonzalez-Y-Merchand, J. a, 2013. Occurrence of potentially pathogenic nontuberculous mycobacteria in Mexican household potable water: a pilot study. *BMC Res. Notes* 6, 531. doi:10.1186/1756-0500-6-531
- Pérez Recuerda, R., 2000. Colonización microbiana de los sistemas de distribución del agua de bebida. Formación de biofilms. Universidad de Málaga.
- Pifer, A.D., Cousins, S.L., Fairey, J.L., 2014. Assessing UV- and fluorescence-based metrics as disinfection byproduct precursor surrogate parameters in a water body influenced by a heavy rainfall event. *J. Water Supply Res. Technol. - AQUA* 63, 200–211. doi:10.2166/aqua.2013.122
- Piriou, P., Dukan, S., Levi, Y., Guyon, F., Villon, P., 1996. Modelling free and fixed bacterial biomass behaviour in drinking water distribution systems. *Rev. des Sci. l'Eau* 9, 381–406.
- Pizarro, G.E., Vargas, I.T., 2016. Biocorrosion in drinking water pipes. *Water Sci. Technol. Water Supply* 16, 881–887. doi:10.2166/ws.2016.018
- Pontius, F.W., Clark, S.W., 2002. Capítulo 1: Normas, regulaciones y objetivos de calidad del agua potable, in: *American Water Works Association (AWWA) (Ed.), Calidad Y Tratamiento Del Agua: Manual de Suministros de Agua Comunitaria*. McGraw-Hill Interamericana de España, p. 1248.
- Prest, E.I., Hammes, F., van Loosdrecht, M.C.M., Vrouwenvelder, J.S., 2016. Biological stability of drinking water: Controlling factors, methods, and challenges. *Front. Microbiol.* 7, 1–24. doi:10.3389/fmicb.2016.00045

- Pruden, A., 2014. Balancing water sustainability and public health goals in the face of growing concerns about antibiotic resistance. *Environ. Sci. Technol.* 48, 5–14. doi:10.1021/es403883p
- Pujol, M., Rosales, B., López, N., 2011. 18th International Corrosion Congress 2011, in: *Effect of Flow in the Formation of Biofilms on Different Materials in Drinking Water Distribution Systems*. Buenos Aires (Argentina), pp. 620–626.
- Quarini, G., Ainslie, E., Herbert, M., Deans, T., Ash, D., Rhys, D., Haskins, N., Norton, G., Andrews, S., Smith, M., 2010. Investigation and development of an innovative pigging technique for the water-supply industry. *Proc. Inst. Mech. Eng. Part E J. Process Mech. Eng.* 224, 79–89. doi:10.1243/09544089JPME312
- Quarini, J., 2002. Ice-pigging to reduce and remove fouling and to achieve clean-in-place. *Appl. Therm. Eng.* 22, 747–753. doi:10.1016/S1359-4311(02)00019-4
- Reckhow, D.A., Singer, P.C., Malcolm, R.L., 1990. Chlorination of humic materials: Byproduct formation and chemical interpretations. *Environ. Sci. Technol.* 24, 1655–1664. doi:10.1016/0047-2484(92)90059-I
- Redondo, J.A., Lanari, F., 1997. Membrane selection and design considerations for meeting European potable water requirements based on different feedwater conditions. *Desalination* 113, 309–323. doi:10.1680/macr.14.00211
- Regulation (EC) No 1907/2006 of the European Parliament and of the Council of 18 December 2006 concerning the Registration, Evaluation, Authorisation and Restriction of Chemicals (REACH), establishing a European Chemicals Agency, amending Directive 1999/4, 2006. doi:2004R0726 - v.7 of 05.06.2013
- Reith, C., Birkenhead, B., 1998. Membranes enabling the affordable and cost effective reuse of wastewater as an alternative water source. *Desalination* 117, 203–210. doi:10.1016/S0011-9164(98)00097-6
- Restrepo, I., Sánchez, L.D., Galvis, A., Rojas, J., Sanabria, I.J., 2007. Avances en investigación y desarrollo en agua y saneamiento para el cumplimiento de las metas del milenio. Universidad del Valle.
- Revetta, R.P., Gomez-Alvarez, V., Gerke, T.L., Curioso, C., Santo Domingo, J.W., Ashbolt, N.J., 2013. Establishment and early succession of bacterial communities in monochloramine-treated drinking water biofilms. *FEMS Microbiol. Ecol.* 86, 404–414. doi:10.1111/1574-6941.12170
- Richardson, S.D., Thruston Jr., A.D., Caughran, T.V., Chen, P.H., Collette, T.W., Schenck, K.M., Lykins Jr., B.W.,

- Rav-Acha, C., Glezer, V., 2016. Identification of new drinking water disinfection by-products from ozone, chlorine dioxide, chloramine, and chlorine. *Water. Air. Soil Pollut.* 123, 95–102.
- Ristoiu, D., von Gunten, U., Mocan, A., Chira, R., Siegfried, B., Haydee Kovacs, M., Vancea, S., 2009. Trihalomethane formation during water disinfection in four water supplies in the Somes river basin in Romania. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* 16 Suppl 1, S55–S65. doi:10.1007/s11356-009-0100-1
- Robertson, W., Stanfield, G., Howard, G., Bartram, J., 2003. Monitoring the Quality of Drinking Water During Storage and Distribution, in: *Assessing Microbial Safety of Drinking Water. Improving Approaches and Methods.* pp. 179–204. doi:10.1787/9789264099470-en
- Roccaro, P., Chang, H.-S., Vagliasindi, F.G. a, Korshin, G. V, 2008. Differential absorbance study of effects of temperature on chlorine consumption and formation of disinfection by-products in chlorinated water. *Water Res.* 42, 1879–88. doi:10.1016/j.watres.2007.11.013
- Roccaro, P., Korshin, G. V, Cook, D., Chow, C.W.K., Drikas, M., 2014. Effects of pH on the speciation coefficients in models of bromide influence on the formation of trihalomethanes and haloacetic acids. *Water Res.* 62, 117–26. doi:10.1016/j.watres.2014.05.024
- Rodríguez, M.J., Rodríguez, G., Serodes, J., Sadiq, R., 2007. Subproductos de la desinfección del agua potable : formación, aspectos sanitarios y reglamentación. *Interciencia* 32, 749–756.
- Rodriguez, M.J., Sérodes, J., 2005. Laboratory-scale chlorination to estimate the levels of halogenated DBPs in full-scale distribution systems. *Environ. Monit. Assess.* 110, 323–340. doi:10.1007/s10661-005-8042-7
- Rodriguez, M.J., Sérodes, J.B., 2001. Spatial and temporal evolution of trihalomethanes in three water distribution systems. *Water Res.* 35, 1572–1586. doi:10.1016/S0043-1354(00)00403-6
- Rodriguez, M.J., Vinette, Y., Sérodes, J.B., Bouchard, C., 2003. Trihalomethanes in drinking water of greater Québec region (Canada): Occurrence, variations and modelling. *Environ. Monit. Assess.* 89, 69–93. doi:10.1023/A:1025811921502
- Rojas-Serrano, F., Álvarez-Arroyo, R., Pérez, J.I., Plaza, F., Garralón, G., Gómez, M.A., 2015a. Ultrafiltration membranes for drinking-water production from low-quality surface water : A case study in Spain. *Membr. Water Treat.* 6, 77–94.

- Rojas-Serrano, F., Marín, E., Pérez, J.I., Gómez, M.Á., 2015b. Autopsy of ultrafiltration membranes for drinking-water production with in-line coagulation and ozonation pre-treatments. *Desalin. Water Treat.* 1–13. doi:10.1080/19443994.2015.1106986
- Rojas-Serrano, F., Pérez, J.I., Gómez, M.A., 2015c. Integrated in-line coagulation-aerated ultrafiltration for drinking-water production: A case study from laboratory to pilot plant. *J. Environ. Sci. Heal. - Part A Toxic/Hazardous Subst. Environ. Eng.* 50, 1376–1385. doi:10.1080/10934529.2015.1064284
- Rojas-Serrano, F., Pérez, J.I., Gómez, M.Á., 2016. Comparative study of in-line coagulation and/or ozonation pre-treatment for drinking-water production with spiral-wound ultrafiltration membranes. *Chem. Eng. Process. Process Intensif.* 105, 21–29. doi:10.1016/j.cep.2016.04.004
- Rojas, J.C., Moreno, B., Garralón, G., Plaza, F., Pérez, J., Gómez, M. a, 2010. Influence of velocity gradient in a hydraulic flocculator on NOM removal by aerated spiral-wound ultrafiltration membranes (ASWUF). *J. Hazard. Mater.* 178, 535–40. doi:10.1016/j.jhazmat.2010.01.116
- Rojas, J.C., Moreno, B., Garralón, G., Plaza, F., Pérez, J., Gómez, M. a, 2008. Potabilization of low NOM reservoir water by ultrafiltration spiral wound membranes. *J. Hazard. Mater.* 158, 593–598. doi:10.1016/j.jhazmat.2008.01.107
- Rojas, J.C., Pérez, J., Garralón, G., Plaza, F., Moreno, B., Gómez, M. a., 2011. Humic acids removal by aerated spiral-wound ultrafiltration membrane combined with coagulation–hydraulic flocculation. *Desalination* 266, 128–133. doi:10.1016/j.desal.2010.08.013
- Rusin, P.A., Rose, J.B., Haas, C.N., Gerba, C.P., 1997. Risk assessment of opportunistic bacterial pathogens in drinking water. *Rev. Environ. Contam. Toxicol.* 152, 57–83.
- Sahar, E., Ernst, M., Godehardt, M., Hein, A., Herr, J., Kazner, C., Melin, T., Cikurel, H., Aharoni, A., Messalem, R., Brenner, A., Jekel, M., 2011. Comparison of two treatments for the removal of selected organic micropollutants and bulk organic matter: Conventional activated sludge followed by ultrafiltration versus membrane bioreactor. *Water Sci. Technol.* 63, 733–740. doi:10.2166/wst.2011.300
- Sander, A., Berghult, B., Elfström Broo, A., Lind Johansson, E., Hedberg, T., 1996. Iron corrosion in drinking water distribution systems - The effect of pH, calcium and hydrogen carbonate. *Corros. Sci.* 38, 443–455. doi:10.1016/0010-938X(96)00142-4
- Schoenen, D., 2002. Role of disinfection in suppressing the spread of pathogens with drinking water:

- Possibilities and limitations. *Water Res.* 36, 3874–3888. doi:10.1016/S0043-1354(02)00076-3
- Schwering, M., Song, J., Louie, M., Turner, R.J., Ceri, H., 2013. Multi-species biofilms defined from drinking water microorganisms provide increased protection against chlorine disinfection. *Biofouling* 29, 917–28. doi:10.1080/08927014.2013.816298
- Scott, B. a, Pepper, I.L., 2010. Water distribution systems as living ecosystems: impact on taste and odor. *J. Environ. Sci. Health. A. Tox. Hazard. Subst. Environ. Eng.* 45, 890–900. doi:10.1080/10934521003709115
- Secondes, M.F.N., Naddeo, V., Belgiorno, V., Ballesteros, F., 2014. Removal of emerging contaminants by simultaneous application of membrane ultrafiltration, activated carbon adsorption, and ultrasound irradiation. *J. Hazard. Mater.* 264, 342–349. doi:10.1016/j.jhazmat.2013.11.039
- Sérodes, J.B., Rodriguez, M.J., Li, H., Bouchard, C., 2003. Occurrence of THMs and HAAs in experimental chlorinated waters of the Quebec City area (Canada). *Chemosphere* 51, 253–263. doi:10.1016/S0045-6535(02)00840-8
- Sibille, I., 1998. Biological stability in drinking water distribution systems: A review. *Annee Biol.* 37, 117–161.
- Siéliéchi, J.M., Lartiges, B.S., Kayem, G.J., Hupont, S., Frochot, C., Thieme, J., Ghanbaja, J., d’Espinose de la Caillerie, J.B., Barr??s, O., Kamga, R., Levitz, P., Michot, L.J., 2008. Changes in humic acid conformation during coagulation with ferric chloride: Implications for drinking water treatment. *Water Res.* 42, 2111–2123. doi:10.1016/j.watres.2007.11.017
- Sillanpää, M., 2015. NOM in water: Characterisation and treatment methods, Igarss 2014. doi:10.1007/s13398-014-0173-7.2
- Simões, L.C., Simões, M., Vieira, M.J., 2010. Influence of the diversity of bacterial isolates from drinking water on resistance of biofilms to disinfection. *Appl. Environ. Microbiol.* 76, 6673–6679. doi:10.1128/AEM.00872-10
- Singer, P.C., 1994. Control of Disinfection By-Products in Drinkin Water. *J. Environ. Eng.* 120, 727–744.
- Smith, P.J., Shon, H.K., Vigneswaran, S., Ngo, H.H., Nguyen, H., 2006. Productivity enhancement in a cross-flow ultrafiltration membrane system through automated de-clogging operations. *J. Memb. Sci.* 280, 82–88. doi:10.1177/0898010105280114

- Snow, J., 1991. On the mode of communication of cholera. 1855. *Salud Publica Mex.* 33, 194–201. doi:10.1680/mac.14.00211
- Sorlini, S., Collivignarelli, C., 2005. Trihalomethane formation during chemical oxidation with chlorine, chlorine dioxide and ozone of ten Italian natural waters. *Desalination* 176, 103–111. doi:10.1016/j.desal.2004.10.022
- Soukatchoff, P., Baron, J., Lessirard, L., 2001. Cement-based materials used in drinking water pipe systems. *Water Sci. Technol. Water Supply* 1, 227–236.
- Sousa, C. De, Correia, A., Colmenares, M.C., 2010. Corrosión e incrustaciones en los sistemas de distribución de agua potable: Revisión de las estrategias de control. *Boletín Malariol. y salud Ambient.* 50, 187–196.
- Stern, B.R., Lagos, G., 2008. Are there health risks from the migration of chemical substances from plastic pipes into drinking water? A review. *Hum. Ecol. Risk Assess.* 14, 753–779. doi:10.1080/10807030802235219
- Stoquart, C., Servais, P., Bérubé, P.R., Barbeau, B., 2012. Hybrid Membrane Processes using activated carbon treatment for drinking water: A review. *J. Memb. Sci.* 411–412, 1–12. doi:10.1016/j.memsci.2012.04.012
- Swietlik, J., Dabrowska, A., Raczyk-Stanisławiak, U., Nawrocki, J., 2004. Reactivity of natural organic matter fractions with chlorine dioxide and ozone. *Water Res.* 38, 547–58. doi:10.1016/j.watres.2003.10.034
- Szewzyk, U., Szewzyk, R., Manz, W., Schleifer, K.-H., 2000. Microbiological safety of drinking water. *Annu. Rev. Microbiol.* 54, 81–127.
- Tan, L., Amy, G., Rigby, M., Renna, J., Kemp, K., 1991. Ozonation of Colored Groundwater Pilot-Scale and Full-Scale Experiences. *Ozone Sci. Eng.* 13, 109–125. doi:10.1080/01919519108552464
- Tapia, A.K., Reyes, A., García, I., 2011. Study of the organic matter fraction greater removal in the coagulation-flocculation process using surface water [Estudio de la fracción de materia orgánica de mayor remoción en el proceso de coagulación-floculación usando agua superficial]. *Nexo Rev. Científica* 24, 72–80.
- Taylor, J.S., Wiesner, M., 2002. Capítulo 11: Membranas, in: American Water Works Association (AWWA) (Ed.), *Calidad Y Tratamiento Del Agua: Manual de Suministros de Agua Comunitaria*. McGraw-Hill Interamericana de España, p. 1248.

- Teixeira, M.R., Nunes, L.M., 2011. The impact of natural organic matter seasonal variations in drinking water quality. *Desalin. Water Treat.* 36, 344–353. doi:DOI 10.5004/dwt.2011.2524
- Teksoy, A., Alkan, U., Başkaya, H.S., 2008. Influence of the treatment process combinations on the formation of THM species in water. *Sep. Purif. Technol.* 61, 447–454. doi:10.1016/j.seppur.2007.12.008
- Thomas, V., Loret, J.F., Jousset, M., Greub, G., 2008. Biodiversity of amoebae and amoebae-resisting bacteria in a drinking water treatment plant. *Environ. Microbiol.* 10, 2728–2745. doi:10.1111/j.1462-2920.2008.01693.x
- Tijing, L.D., Woo, Y.C., Choi, J.S., Lee, S., Kim, S.H., Shon, H.K., 2015. Fouling and its control in membrane distillation-A review. *J. Memb. Sci.* 475, 215–244. doi:10.1016/j.memsci.2014.09.042
- USEPA, 2016. Secondary Drinking Water Standards : Guidance for Nuisance Chemicals [WWW Document]. URL <https://www.epa.gov/dwstandardsregulations/secondary-drinking-water-standards-guidance- nuisance-chemicals>
- USEPA, 1990a. Method 551.1: Determination of chlorination disinfection byproducts, chlorinated solvents , and halogenated pesticides/herbicides in drinking water by liquid-liquid extraction and gas chromatography with electron-capture detection, Environmental Protection Agency. Ohio.
- USEPA, 1990b. Method 552.2: Determination of Haloacetic Acids and Dalapon in Drinking Water by Liquid-Liquid Extraction, Derivatization and Gas Chromatography With Electron Capture Detection, Environmental Protection Agency. Ohio.
- USEPA, 1983. Methods for Chemical Analysis of Water and Wastes.
- Valdivia-Garcia, M., Weir, P., Frogbrook, Z., Graham, D.W., Werner, D., 2016. Climatic, Geographic and Operational Determinants of Trihalomethanes (THMs) in Drinking Water Systems. *Sci. Rep.* 6, 35027. doi:10.1038/srep35027
- van der Kooij, D., Hijnen, W.A.M., Kruithof, J.C., 1989. Effects of ozonation, biological filtration and distribution on the concentration of easily assimilable organic carbon (AOC) in drinking water. *Ozone Sci. Eng.* 11, 297–311. doi:10.1080/01919518908552443
- Veschetti, E., Achene, L., Ferretti, E., Lucentini, L., Citti, G., Ottaviani, M., 2010. Migration of trace metals in Italian drinking waters from distribution networks. *Toxicol. Environ. Chem.* 92, 521–535.

doi:10.1080/02772240903036139

- Videla, H.A., Viera, M.R., Guiamet, P.S., Alais, J.C., S., 1995. Using ozone to control biofilms. *Mater. Perform.* 34, 40–44.
- Vikesland, P.J., Ozekin, K., Valentine, R.L., 2001. Monochloramine decay in model and distribution system waters. *Water Res.* 35, 1766–1776. doi:10.1016/S0043-1354(00)00406-1
- Villan Criado, I., Bravo Cabria, M.S., 1990. Depuración de datos estadísticos. EUSTAT, Gipúzcoa.
- Villanueva, C.M., Kogevinas, M., Grimalt, J.O., 2003. Haloacetic acids and trihalomethanes in finished drinking waters from heterogeneous sources. *Water Res.* 37, 953–8.
- Vital, M., Hammes, F., Egli, T., 2012. Competition of *Escherichia coli* O157 with a drinking water bacterial community at low nutrient concentrations. *Water Res.* 46, 6279–6290. doi:10.1016/j.watres.2012.08.043
- Volk, C.J., LeChevallier, M.W., 1999. Impacts of the reduction of nutrient levels on bacterial water quality in distribution systems. *Appl. Environ. Microbiol.* 65, 4957–4966.
- Von Gunten, U., 2003. Ozonation of drinking water: Part II. Disinfection and by-product formation in presence of bromide, iodide or chlorine. *Water Res.* 37, 1469–1487. doi:10.1016/S0043-1354(02)00458-X
- Wang, H., Masters, S., Edwards, M.A., Falkinham, J.O., Pruden, A., 2014. Effect of disinfectant, water age, and pipe materials on bacterial and eukaryotic community structure in drinking water biofilm. *Environ. Sci. Technol.* 48, 1426–1435. doi:10.1021/es402636u
- Wang, J.J., Liu, X., Ng, T.W., Xiao, J.W., Chow, A.T., Wong, P.K., 2013. Disinfection byproduct formation from chlorination of pure bacterial cells and pipeline biofilms. *Water Res.* 47, 2701–2709. doi:10.1016/j.watres.2013.02.038
- Wei, I.W., Huang, X., Sung, W., 2004. Pilot study of greater boston drinking water quality changes -impacts of ozonation and distribution system, in: 2004 World Water and Environmental Resources Congress: Critical Transitions in Water and Environmental Resources Management. Salt Lake City, UT; United States, pp. 4505–4513.
- Weishaar, J., Aiken, G., Bergamaschi, B., Fram, M., Fujii, R., Mopper, K., 2003. Evaluation of specific ultra-

- violet absorbance as an indicator of the chemical content of dissolved organic carbon. *Environ. Sci. Technol.* 37, 4702–4708. doi:10.1021/es030360x
- Weishaar, J.L., Fram, M.S., Fujii, R., Mopper, K., 2003. Evaluation of specific ultraviolet absorbance as an indicator of the chemical composition and reactivity of dissolved organic carbon. *Environ. Sci. Technol.* 37, 4702–4708.
- Wert, E.C., Rosario-Ortiz, F.L., 2011a. Effect of ozonation on trihalomethane and haloacetic acid formation and speciation in a full-scale distribution system. *Ozone Sci. Eng.* 33, 14–22. doi:10.1080/01919512.2011.536504
- Wert, E.C., Rosario-Ortiz, F.L., 2011b. Effect of ozonation on trihalomethane and haloacetic acid formation and speciation in a full-scale distribution system. *Ozone Sci. Eng.* 33, 14–22. doi:10.1080/01919512.2011.536504
- White, C.G., 1999. *Handbook of chlorination and alternative disinfectants: a review* (4th ed.). New York.
- Wigle, D.T., 1998. Safe Drinking Water: A Public Health Challenge. *Chronic Dis. Can.* 19, 103–107. doi:10.1680/macrc.14.00211
- Willhite, C.C., Ball, G.L., Bhat, V.S., 2013. Emergency do not consume/do not use concentrations for ferric chloride in drinking water. *Hum. Exp. Toxicol.* 32, 260–74. doi:10.1177/0960327112459208
- Williams, D.T., Lebel, G.L., Benoit, F.M., 1997. Disinfection by-products in canadian drinking water. *Chemosphere* 34, 299–316.
- Williams, M.M., Braun-Howland, E.B., 2003. Growth of *Escherichia coli* in Model Distribution System Biofilms Exposed to Hypochlorous Acid or Monochloramine Growth of *Escherichia coli* in Model Distribution System Biofilms Exposed to Hypochlorous Acid or Monochloramine. *Appl. Environ. Microbiol.* 69, 5463–5471. doi:10.1128/AEM.69.9.5463
- Wingender, J., Flemming, H.-C., 2011. Biofilms in drinking water and their role as reservoir for pathogens. *Int. J. Hyg. Environ. Health* 214, 417–23. doi:10.1016/j.ijheh.2011.05.009
- Wittmer, A., Heisele, A., McArdeell, C.S., Böhler, M., Longree, P., Siegrist, H., 2015. Decreased UV absorbance as an indicator of micropollutant removal efficiency in wastewater treated with ozone. *Water Sci. Technol.* 71, 980–985. doi:10.2166/wst.2015.053

- Wlodyka-Bergier, A., Bergier, T., 2013. Seasonal variations in volatile organic halogen water chlorination by-product content in Krakow city water distribution system. *Ochr. Sr.* 35, 23–27. doi:10.1016/j.desal.2004.11.008
- Wright, J.A., Yang, H., Pedley, S., Gundry, S., 2011. Evaluation of different strategies for deploying the H2S test to detect microbial contamination of drinking water, in: 35th WEDC International Conference - The Future of Water, Sanitation and Hygiene in Low-Income Countries: Innovation, Adaptation and Engagement in a Changing World. Loughborough; United Kingdom, p. 6.
- Yang, D., Zhang, X., Zhou, Y., Xiu, Z., 2015. The Principle and Method of Wastewater Treatment in Biofilm Technology. *J. Comput. Theor. Nanosci.* 12, 2630–2638. doi:10.1166/jctn.2015.4154
- Yannoni, C.C., Covellone, M.A., 1998. Pipe loop demonstration study of corrosion control alternatives at a pH of 10. *J. New Engl. Water Work. Assoc.* 112, 132–137.
- Zhai, H., Zhang, X., Zhu, X., Liu, J., Ji, M., 2014. Formation of brominated disinfection byproducts during chloramination of drinking water: New polar species and overall kinetics. *Environ. Sci. Technol.* 48, 2579–2588. doi:10.1021/es4034765
- Zhang, L., Liu, S., 2014. Investigation of organic compounds migration from polymeric pipes into drinking water under long retention times. *Procedia Eng.* 70, 1753–1761. doi:10.1016/j.proeng.2014.02.193
- Zhang, Y., Shi, B., Zhao, Y., Yan, M., Lytle, D.A., Wang, D., 2016. Deposition behavior of residual aluminum in drinking water distribution system: Effect of aluminum speciation. *J. Environ. Sci.* 42, 142–151. doi:10.1016/j.jes.2015.05.010
- Zhang, Y., Tseng, T.J., Andrews-Tate, C., Cheng, R.C., Wattier, K.L., 2012. Pilot-scale evaluation of blending desalinated seawater into a distribution system. *J. Am. Water Works Assoc.* 104, 416–430.
- Zhang, Y., Wang, Q., He, F., Ding, S., 2010. Characterization of Natural Organic Matter and Disinfection Byproducts Formation Potential in Pilot-Scale Coagulation-Ultrafiltration Membrane Combined Process in Winter. *Trans. Tianjin Univ.* 16, 328–335. doi:10.1007/s12209
- Zhang, Y., Zhao, X., Zhang, X., Peng, S., 2015. A review of different drinking water treatments for natural organic matter removal. *Water Sci. Technol. Water Supply* 15, 442–455. doi:10.2166/ws.2015.011
- Zheng, X., Yu, M., Liang, H., Qi, L., Zheng, H., Exler, H., Schier, W., Frechen, F.-B., 2012. Membrane technology

for municipal drinking water plants in China: progress and prospect. *Desalin. Water Treat.* 49, 281–295.
doi:10.1080/19443994.2012.719337

Zhou, S., Zhu, S., Shao, Y., Gao, N., 2015. Characteristics of C-, N-DBPs formation from algal organic matter: Role of molecular weight fractions and impacts of pre-ozonation. *Water Res.* 72, 381–390.
doi:10.1016/j.watres.2014.11.023

Zhu, I.X., Rothberg, M.R., Wiedmeier, T., 2008. Pilot study on TOC removal in drinking water using enhanced coagulation assisted by membrane ultrafiltration, in: American Water Works Association - American Water Works Association Association Annual Conference and Exposition, ACE 2008. Atlanta, GA (United States), pp. 1499–1514.

9. ANEXOS

9. ANEXOS

9.1. ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 1. Ciclo integral del agua.	23
Figura 2. Línea de tratamiento de una ETAP convencional.	39
Figura 3: Esquema básico de operación de una membrana.	40
Figura 4: Tipologías de membranas según geometría: arrollada en espiral (A), placa en bastidor (B), tubulares (C) y de fibra hueca (D). Fuentes: TriSepCorporation y Judd (2006).	42
Figura 5. Línea de tratamiento de una ETAP con tecnología de membranas.	44
Figura 6: Tipología de redes que conforman una red de distribución de agua potable.	48
Figura 7: Tipologías de redes de distribución: mallada (A), ramificada (B) y mixta (C).	49
Figura 8: Secuencia de las etapas de formación de una biopelícula y sus fotomicrografías (Monroe, 2007).	54
Figura 9. Emplazamiento de la planta experimental en las instalaciones del Parque de las Ciencias de Granada.	68
Figura 10. Diagrama de flujo de la instalación experimental.	69
Figura 11. Vista general de la planta piloto con detalle del sistema de alimentación de agua.	70
Figura 12. Detalle de los elementos del módulo de ultrafiltración.	72
Figura 13. Sistema de coagulación-floculación hidráulica.	73
Figura 14. Sistema de ozonización.	74
Figura 15. Red de distribución y sistema de post-cloración.	75
Figura 16. Conformaciones de la línea de proceso ensayadas en la fase de estudio evolutivo de la red de distribución.	76
Figura 17. Conformaciones de la línea de proceso ensayadas en cada fase experimental.	77
Figura 18. Puntos de toma de muestras de agua.	80
Figura 19. Variables y parámetros de entrada (INF) y salida (EF) del sistema según tipología.	81
Figura 20. Comparación entre el análisis de una muestra de agua y un punto patrón de THMs.	88
Figura 21. Diagrama bidimensional del análisis de redundancia (RDA) realizado al sistema en la fase de estudio evolutivo.	99

Figura 22. Evolución de la temperatura media diaria del agua de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	100
Figura 23. Temperatura media mensual ambiental y del agua de la RDE durante el de estudio evolutivo.	102
Figura 24. Evolución del pH medio diario del agua de la red de distribución experimental durante la fase de estudio evolutivo.	103
Figura 25. Evolución del CRL medio diario del agua de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	105
Figura 26. Evolución de la turbidez del influente (◇) y efluente (●) de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	108
Figura 27. Evolución del incremento de turbidez del efluente con respecto al influente de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	108
Figura 28. Evolución del carbono orgánico disuelto del influente (◇) y efluente (●) de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	113
Figura 29. Evolución del incremento de carbono orgánico disuelto del efluente con respecto al influente de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	113
Figura 30. Evolución de la absorbancia ultravioleta a 254 nm del influente (◇) y efluente (●) de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	119
Figura 31. Evolución del incremento de absorbancia ultravioleta a 254 nm del efluente con respecto al influente de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	119
Figura 32. Evolución del SUVA del influente (◇) y efluente (●) de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	124
Figura 33. Evolución del incremento de SUVA del efluente con respecto al influente de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	124
Figura 34. Evolución media de los parámetros de la materia orgánica UV ₂₅₄ (●), COD (◇) y SUVA (×) del influente (INF) y efluente (EF) de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	125
Figura 35. Comparativa de los parámetros de caracterización de MON del influente (◇), efluente (●) e incremento entre ellos (Δ) en la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	129
Figura 36. Caracterización de la MON del agua de la RDE en función de la UV ₂₅₄ y el COD en las distintas etapas del tratamiento durante la fase de estudio evolutivo: UF (+), CF+UF (○), PARADA (▲), O ₃ +UF (*).	131
Figura 37. Cromatograma de una de las muestras analizadas para detección de trihalometanos (a) en comparación con un patrón comercial de estos (b).	132
Figura 38. Evolución de la concentración de THMs (● cloroformo) en el agua de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	133
Figura 39. Gráfico de burbujas de la concentración de cloroformo en relación a la UV ₂₅₄ , el COD y el SUVA del agua de la RDE en las distintas etapas del tratamiento durante la fase de estudio evolutivo.	136

Figura 40. Evolución del recuento de colonias a 22 °C en el agua de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.	138
Figura 41. Micrografías SEM de la superficie interna de la tubería que conforma la RDE representativas de cada mes de la fase de estudio evolutivo.....	148
Figura 42. Evolución del recuento de bacterias adheridas a la superficie de la RDE (●) durante la fase de estudio evolutivo y representación de los modelos de ajuste del crecimiento bacteriano en biopelícula con el tiempo (Δ ec. [3] y \diamond ec. [4]).	151
Figura 43. Diagrama bidimensional del análisis de redundancia (RDA) realizado al sistema definido por las tres fases del estudio comparativo en conjunto.	160
Figura 44. Diagrama bidimensional del análisis de redundancia (RDA) realizado al sistema definido por la fase de CF+UF del estudio comparativo.	161
Figura 45. Diagrama bidimensional del análisis de redundancia (RDA) realizado al sistema definido por la fase de O ₃ +UF del estudio comparativo.	162
Figura 46. Diagrama bidimensional del análisis de redundancia (RDA) realizado al sistema definido por la fase de UF del estudio comparativo.	163
Figura 47. Evolución temporal de la temperatura del agua de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).....	165
Figura 48. Evolución temporal del pH del agua de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	168
Figura 49. Evolución temporal del CRL en el agua de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	172
Figura 50. Evolución temporal de la turbidez en el influente (\diamond) y efluente (●) de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).....	176
Figura 51. Evolución del incremento de turbidez en la RDE durante las fases de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	177
Figura 52. Evolución temporal del COD en el influente (\diamond) y efluente (●) de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).....	183
Figura 53. Evolución del incremento de COD en la RDE durante las fases de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	186
Figura 54. Evolución temporal de la UV ₂₅₄ en el influente (\diamond) y efluente (●) de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	190
Figura 55. Evolución del incremento de la UV ₂₅₄ en la RDE durante las fases de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	192
Figura 56. Evolución media de los parámetros de la materia orgánica UV ₂₅₄ (●), COD (\diamond) y SUVA (×) del influente (INF) y efluente (EF) de la RDE durante las fases del estudio comparativo.....	195

Figura 57. Evolución temporal de SUVA en el influente (\diamond) y efluente (\bullet) de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	197
Figura 58. Evolución del incremento de SUVA en la RDE durante las fases de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	198
Figura 59. Comparativa de los parámetros de caracterización de MON del influente (\diamond), efluente (\bullet) e incremento entre ellos (Δ) en la RDE durante las fases de estudio comparativo.	199
Figura 60. Caracterización de la MON del agua de la RDE en función de la UV ₂₅₄ y el COD en las distintas fases del estudio comparativo: CF+UF (\diamond), O ₃ +UF (\times), UF (\bullet).	200
Figura 61. Evolución temporal del RC ₂₂ en el agua de la RDE durante el tratamiento de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	204
Figura 62. Porcentajes medios de las distintas especies de AHAs presentes en el agua de la RDE para la fase de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	209
Figura 63. Evolución de la concentración total de THMs del agua de la RDE en la fase de CF+UF (\diamond), O ₃ +UF (\times) y UF (\bullet).	210
Figura 64. Evolución de la concentración total de AHAs del agua de la RDE en la fase de CF+UF (\diamond), O ₃ +UF (\times) y UF (\bullet).	211
Figura 65. Concentración de Σ THMs (\diamond) y Σ AHAs (\times) vs SUVA (\bullet) del agua de la RDE durante las fases del estudio comparativo.	213
Figura 66. Gráfico de burbujas de la concentración de Σ THMs (A) y Σ AHAs (B) en relación a la UV ₂₅₄ , el COD y el SUVA del agua de la RDE en las distintas fases del estudio comparativo.	214
Figura 67. Micrografías SEM de la superficie interna de la tubería de la RDE1 (A), RDE2 (B) y RDE3 (C) de cada mes de operación en las distintas fases del estudio comparativo (A: CF+UF, B: O ₃ +UF, C: UF).	217
Figura 68. Evolución temporal del recuento bacteriano en la superficie de la RDE en la fase de CF+UF (A), O ₃ +UF (B) y UF (C).	221
Figura 69. Evolución temporal del logaritmo del recuento bacteriano en la superficie de la RDE en la fase de CF+UF (\diamond), O ₃ +UF (\times) y UF (\bullet).	222

9.2. ÍNDICE DE TABLAS

Tabla 1: Principales microorganismos relacionados con enfermedades hídricas (Moro González, 2011; Cohn <i>et al.</i> , 2002).....	27
Tabla 2: Principales contaminantes emergentes en medios sistemas acuáticos (Luo <i>et al.</i> , 2014).....	34
Tabla 3: Desinfectantes más comunes, ventajas e inconvenientes de su uso (adaptación de Chowdhury <i>et al.</i> , 2009; IMTA, 2005).	38
Tabla 4: Tratamientos específicos para mejorar la calidad del agua (Pérez Recuerda, 2000; Ortiz Mingo, 2015).	39
Tabla 5: Subproductos de desinfección en agua potable, regulación y efectos sobre la salud (Chowdhury <i>et al.</i> , 2009; Rodríguez <i>et al.</i> , 2007; Singer, 1994).....	58
Tabla 6: Períodos que abarcan las distintas fases del estudio evolutivo y comparativo.	78
Tabla 7. Caracterización físico-química y microbiológica del agua de alimentación a planta experimental. .	78
Tabla 8. Condiciones operacionales de la instalación experimental.....	80
Tabla 9: Parámetros empleados en el análisis de ácidos haloacéticos por espectrometría de masas de triple cuadrupolo empleando el modo MRM.	89
Tabla 10: Criterio de correlación entre variables de entrada y salida del sistema vectorial definido en los análisis RDA.	92
Tabla 11. Estadísticos descriptivos de los parámetros y variables del estudio evolutivo para las opciones A (sin excluir valores atípicos), B (excluyendo valores atípicos extremos) y C (excluyendo valores atípicos extremos y leves).	96
Tabla 12. Matriz de coeficientes de correlación de Pearson (r) de todos los parámetros y variables del estudio evolutivo.....	98
Tabla 13: Valores medios de temperatura del agua de la RDE en las distintas etapas del estudio evolutivo.	101
Tabla 14: Valores medios de pH del agua de la red de distribución experimental en las distintas etapas del estudio evolutivo.	104
Tabla 15: Valores medios de CRL del agua de la RDE en las distintas etapas del estudio evolutivo.	107
Tabla 16: Valores medios de turbidez del influente y efluente de la RDE, porcentaje de incremento de turbidez de EF respecto al INF y % de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las distintas etapas del estudio evolutivo.	109
Tabla 17: Valores medios de CO total y disuelto del influente y efluente de la RDE durante la fase de estudio evolutivo.....	113

Tabla 18: Valores medios de carbono orgánico disuelto del influente y efluente de la RDE, porcentaje de incremento de COD de EF respecto al INF y % de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las distintas etapas del estudio evolutivo.....	114
Tabla 19: Valores medios de absorbancia ultravioleta a 254 nm del influente y efluente de la RDE, porcentaje de incremento de UV ₂₅₄ de EF respecto al INF y % de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las distintas etapas del estudio evolutivo.....	120
Tabla 20: Valores medios de SUVA del influente y efluente de la RDE, porcentaje de incremento del SUVA de EF respecto al INF y % de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las distintas etapas del estudio evolutivo.....	126
Tabla 21: Valores medios de los parámetros de caracterización de la MON y eficacia del pretratamiento (η_T) en influente y efluente de la RDE, incremento medio de los parámetros en la RDE ($\Delta_{INF vs EF}$) y su interrelación en el cálculo de SUVA para cada una de las etapas del estudio evolutivo.....	127
Tabla 22: Valores medios de concentración de THM (cloroformo) y SUVA en el agua de la RDE en las distintas etapas del estudio evolutivo.	134
Tabla 23: Valores medios, máximos y mínimos del recuento de colonias a 22 °C del agua de la RDE en las distintas etapas del estudio evolutivo.....	141
Tabla 24. Estadísticos descriptivos de los parámetros y variables de la Fase I para las opciones A (sin excluir valores atípicos), B (excluyendo valores atípicos extremos) y C (excluyendo valores atípicos leves y extremos).	154
Tabla 25. Estadísticos descriptivos de los parámetros y variables de la Fase II para las opciones A (sin excluir valores atípicos), B (excluyendo valores atípicos extremos) y C (excluyendo valores atípicos leves y extremos).	155
Tabla 26. Estadísticos descriptivos de los parámetros y variables de la Fase III para las opciones A (sin excluir valores atípicos), B (excluyendo valores atípicos extremos) y C (excluyendo valores atípicos leves y extremos).	156
Tabla 27: Resumen de las propiedades físico-químicas y microbiológicas del INF y EF de la RDE del estudio comparativo.....	157
Tabla 28. Matriz de coeficientes de correlación de Pearson (r) de todos los parámetros y variables del estudio comparativo global.....	158
Tabla 29. Matriz de coeficientes de correlación de Pearson (r) de todos los parámetros y variables la fase CF+UF del estudio comparativo.	158
Tabla 30. Matriz de coeficientes de correlación de Pearson (r) de todos los parámetros y variables de la fase O ₃ +UF del estudio comparativo.	159
Tabla 31. Matriz de coeficientes de correlación de Pearson (r) de todos los parámetros y variables de la fase UF del estudio comparativo.	159
Tabla 32: Valores medios, máximos y mínimos de la temperatura del agua en la RDE en las tres fases del estudio comparativo.....	166

Tabla 33: Valores medios, máximos y mínimos del pH del agua en la RDE en las tres fases del estudio comparativo.....	169
Tabla 34: Valores medios, máximos y mínimos del CRL del agua en la RDE en las tres fases del estudio comparativo.....	174
Tabla 35: Valores medios de turbidez del influente, efluente y su incremento en la RDE, y porcentajes de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las fases del estudio comparativo.	175
Tabla 36: Valores medios de carbono orgánico total y disuelto del influente y efluente de la RDE durante la fase de estudio comparativo.	181
Tabla 37: Valores medios de COD del influente, efluente y su incremento en la RDE, y porcentajes de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las fases del estudio comparativo.	181
Tabla 38: Valores medios de UV_{254} del influente, efluente y su incremento en la RDE, y porcentajes de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las fases del estudio comparativo.	188
Tabla 39: Valores medios de SUVA del influente, efluente y su incremento en la RDE, y porcentajes de incrementos (Δ) y decrementos (∇) en cada una de las fases del estudio comparativo.	194
Tabla 40: Valores medios de los parámetros de caracterización de la MON del agua bruta (AB), influente (INF) y efluente (EF) de la RDE, incremento medio en la RDE (ΔX), porcentaje de eliminación por tratamiento ($\% E_T$), porcentaje de aumento por su paso a través de la RDE ($\% A_{RDE}$) y la interrelación de éste en el cálculo de SUVA para cada una de las fases del estudio comparativo.....	196
Tabla 41: Valores medios, máximos y mínimos del RC_{22} del agua en la RDE en las tres fases del estudio comparativo.....	203
Tabla 42: Valores medios, máximos y mínimos de $\Sigma THMs$ y $\Sigma AHAs$ del agua en la RDE en las tres fases del estudio comparativo.....	208
Tabla 43: Valores medios, máximos y mínimos de $\Sigma THMs$ y $\Sigma AHAs$ en el agua de la RDE en las tres fases del estudio comparativo.....	212
Tabla 44: Parámetros característicos del ajuste lineal del recuento bacteriano en la superficie de la RDE en las tres fases del estudio comparativo y el porcentaje de incremento con respecto a la fase de CF+UF. ...	223

9.3. LISTA DE ABREVIATURAS

En la siguiente lista se recogen todas las abreviaturas usadas a lo largo de este trabajo:

AB	agua bruta
AHA	ácido haloacético
AMT	aerobios mesófilos totales
ANOVA	análisis de varianzas
AOC	carbono orgánico asimilable
AOPs	procesos de oxidación avanzada
A_{RDE}	aumento en la RDE
BCAA	ácido bromocloroacético
BDCAA	ácido bromodicloroacético
BDOC	carbono orgánico disuelto biodegradable
CAG	carbón activo granular
CDBAA	ácido clorodibromoacético
CF	coagulación-floculación
CO	carbono orgánico
COD	carbono orgánico disuelto
COT	carbono orgánico total
CRL	cloro residual libre
DBAA	ácido dibromoacético
DBP	subproducto de desinfección
DCAA	ácido dicloroacético
DOT	dosis de ozono transferido
EC_{EF}	evolución de la calidad del efluente
EC_{INF}	evolución de la calidad del influente
EDAR	estación depuradora de aguas residuales
EE_{RDE}	evolución del ensuciamiento en la RDE
EF	efluente
EPS	sustancias poliméricas extracelulares
E_T	eliminación por tratamiento
ETAP	estación de tratamiento de agua potable
INF	influyente
IQR	rango intercuartílico
MBAA	ácido monobromoacético
MCAA	ácido monocloroacético
MO	materia orgánica
MON	materia orgánica natural
MTBE	metil tert-butil éter
O_3	ozonización
p	p-valor
Q_n	cuartil n-ésimo
r	coeficiente de correlación de Pearson
R^2	coeficiente de determinación del ajuste

RBA	recuento de bacterias adheridas a la superficie (biopelícula)
RC ₂₂	recuento de colonias a 22°C
RDA	análisis de redundancias
RDAP	red de distribución de agua potable
RDE	red de distribución experimental
SD	Desviación típica (<i>standard deviation</i>)
SEM	microscopía electrónica de barrido
SNK	Student-Newman-Keuls
SS	sólidos en suspensión
SUVA	absorbancia ultravioleta específica
T ^e	temperatura
TBA	agar triptonado de sales biliares
TBAA	ácido tribromoacético
TCAA	ácido tricloroacético
THM	trihalometano
PTM	presión transmembrana
TSA	agar triptonado de soja
Turb	turbidez
UF	ultrafiltración
ufc	unidades formadoras de colonias
UNT	unidades nefelométricas de turbidez
UV ₂₅₄	absorbancia ultravioleta a 254 nm
VA	valor atípico
α	ángulo entre dos vectores del sistema en el diagrama RDA
Δ	incremento
∇	decremento
η_x	eficacia del tratamiento "x"