

*rivm*

Rapport 330204002/2008

J.F. Schijven et al.

# Effect filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie

RIVM-rapport 330204002/2008

## **Effect filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie**

J.F. Schijven, M. Colin<sup>1</sup>, Y. Dullefont<sup>1</sup>, W.A.M. Hijnen<sup>2</sup>, A. Magic-Knezev<sup>3</sup>, W. Oorthuizen<sup>4</sup>, G. Wubbels<sup>5</sup>, J. Bruins<sup>5</sup>, S.A. Rutjes, A.M. de Roda Husman

<sup>1</sup>Waternet

<sup>2</sup>Kiwa Research

<sup>3</sup>Het Waterlaboratorium

<sup>4</sup>Duinwaterbedrijf Zuid-Holland

<sup>5</sup>Waterbedrijf Groningen

Contact:

Jack F. Schijven

EMI

jack.schijven@rivm.nl

Dit onderzoek werd verricht in opdracht van Drinkwaterbedrijven DZH, WLN en Waternet, in het kader van project 3302024 Waterkwaliteit

© RIVM 2008

Delen uit deze publicatie mogen worden overgenomen op voorwaarde van bronvermelding: 'Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), de titel van de publicatie en het jaar van uitgave'.

## Rapport in het kort

### **Effect filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie**

Een rekenmodel werd ontwikkeld om de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie, een belangrijke zuiveringstap in de drinkwaterbereiding, te voorspellen onder verschillende bedrijfscondities. Deze bedrijfscondities zijn filtratiesnelheid, temperatuur, korrelgrootte en de *Schmutzdecke*, een slijm laag op de zandfilters. De condities kunnen variëren afhankelijk van benodigde productiecapaciteit, weersomstandigheden en het drinkwaterbedrijf.

Inzicht in de effecten van deze bedrijfscondities is van belang bij de vertaling tussen bedrijven of van literatuurgegevens naar bedrijf en daardoor ook van belang voor de wettelijk verplichte kwantitatieve microbiologische risicoschattingen.

Het model werd ontwikkeld op grond van meetgegevens van voorgaand onderzoek op proefinstallatieschaal. De processen die de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie bepalen, zijn hechting en zeefwerking. Ook het effect van de *Schmutzdecke* werd geëvalueerd. De mate van hechting van een micro-organisme aan het zand is locatiespecifiek. Het model werd vervolgens gebruikt om de verwijdering van bacteriofaag MS2, *E. coli* en *Cryptosporidium* bij de vier drinkwaterbedrijven voor de voor deze bedrijven relevante bedrijfscondities te voorspellen en op basis daarvan onderzoeksvoorstellen op proefinstallatieschaal te formuleren om het model te valideren.

#### Trefwoorden:

langzame zandfiltratie, filtratiesnelheid, temperatuur, korrelgrootte, micro-organismen

## **Abstract**

### **Effect of filtration rate, temperature and grain size on the removal of micro-organisms by slow sand filtration**

A mathematical model was developed to predict removal of microorganisms by slow sand filtration, an important treatment in the production of drinking water, under a variety of conditions. These conditions are filtration rate, temperature, grain size and the Schmutzdecke, a slime layer on top of the sand filters. These conditions may vary dependent on required production capacity, weather conditions and the drinking water utility.

Insight into the effects of these conditions matter for the translation of data between drinking water utilities and of literature data to utilities and are therefore also of importance for the legally obligated quantitative microbiological risk assessments.

The model was developed using experimental data from previous research on pilot plant scale. The processes that determine removal of microorganisms by slow sand filtrations are attachment and straining. Also the effect of the Schmutzdecke was evaluated. The extent of attachment of microorganisms to sand appeared to be utility-specific.

The model was applied to predict removal by slow sand filtration of bacteriophage MS2, *E. coli* and *Cryptosporidium* for four drinking water utilities under their relevant process conditions and to use these prediction to formulate research proposals on pilot plant scale in order to validate the model.

**Key words:**

slow sand filtration, filtration rate, temperature, grain size, microorganisms

# Inhoud

<b>Samenvatting</b>		<b>6</b>
<b>1</b>	<b>Inleiding</b>	<b>7</b>
<b>2</b>	<b>Methoden</b>	<b>10</b>
2.1	Micro-organismen	10
2.2	Modelbeschrijving	10
2.2.1	Conceptueel model	10
2.2.2	Zeefwerking	11
2.2.3	Hechting	11
2.2.4	Steady statemodel	13
2.2.5	Loglikelihoodfuncties en likelihoodratioets	14
<b>3</b>	<b>Resultaten</b>	<b>16</b>
3.1	Algemeen	16
3.2	Analyse verwijderinggegevens met likelihoodratioets	16
3.3	Zeefwerking	18
3.3.1	Effect $u$ , $temp$ en $d_c$ op $k_{str}$	18
3.3.2	Effect $u$ , $temp$ en $d_c$ op de verwijdering door zeefwerking	18
3.4	Hechting	20
3.4.1	Effect $u$ , $temp$ en $d_c$ op botsingskans $\eta_0$	20
3.4.2	Effect $u$ , $temp$ en $d_c$ op de $k_{att}$	22
3.4.3	Effect $u$ , $temp$ en $d_c$ op de verwijdering door hechting	23
3.5	Voorspelling verwijdering op vier locaties	24
<b>4</b>	<b>Discussie</b>	<b>34</b>
<b>5</b>	<b>Aanbevelingen</b>	<b>36</b>
<b>Literatuur</b>		<b>40</b>

## Samenvatting

Langzame zandfiltratie wordt bij een aantal Nederlandse drinkwaterbedrijven als een van de laatste zuiveringsstappen toegepast.

De belangrijke bedrijfscondities filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte kunnen variëren afhankelijk van benodigde productiecapaciteit, weersomstandigheden en het drinkwaterbedrijf.

Inzicht in de effecten van de filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie is van belang bij de vertaling tussen bedrijven of van literatuurgegevens naar bedrijf met behulp van rekenmodellen en is daarmee ook van belang bij de wettelijk verplichte kwantitatieve microbiologische risicoschattingen.

In dit rapport werden de gegevens over verwijdering van bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 door langzame zandfiltratie gebruikt om een model te ontwikkelen dat gebruikt kan worden om verwijdering van micro-organismen onder verschillende bedrijfscondities (filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte) te voorspellen. De processen die de verwijdering bepalen zijn hechting en zeefwerking, waarbij vooral hechting belangrijk is. Ook het effect van de Schmutzdecke werd geëvalueerd. Met behulp van *loglikelihoodfuncties* werden de effecten van watertemperatuur, filtratiesnelheid, Schmutzdecke en korrelgrootte gekwantificeerd. Deze effecten werden door middel van modelsimulaties voor de verschillende drinkwaterbedrijven gedemonstreerd.

Voor bacteriofaag MS2 bleek een model dat naast hechting extra verwijdering door de Schmutzdecke meeneemt op basis van de leeftijd van de Schmutzdecke en de watertemperatuur de beste beschrijving van de verwijdering te geven. Voor *E. coli* was er geen significant effect van de temperatuur, maar neemt de verwijdering met  $2^{10}$  log toe door de aanwezigheid van een Schmutzdecke. De *sticking efficiency* of hechtingsparameter is een locatiespecifieke parameter.

De betere verwijdering van bacteriofaag MS2 bij hogere temperatuur in combinatie met de aanwezigheid van de Schmutzdecke wijst op predatie.

Predatie van *E. coli* vindt waarschijnlijk evengoed plaats, maar is niet zichtbaar vanwege het effect van zeefwerking in de Schmutzdecke.

Het model werd vervolgens gebruikt om de verwijdering van bacteriofaag MS2, *E. coli* en *Cryptosporidium* bij de vier drinkwaterbedrijven voor de voor deze bedrijven relevante bedrijfscondities te voorspellen en op basis daarvan onderzoeksvoorstellen op proefinstallatieschaal te formuleren. De doelstellingen van dit vervolgonderzoek zijn:

- De effecten van filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte te onderzoeken en de modelvoorspellingen te verifiëren.
- Verkleinen van de onzekerheden van de modelvoorspellingen en daarmee de toepasbaarheid van het model vergroten.
- De modellen zo nodig aanpassen en verder ontwikkelen.
- Koppeling van waterkwaliteitsgegevens (pH, ionsterkte, ionsamenstelling, organische stof) aan de waarden van de (locatiespecifieke) sticking efficiëncies.
- Aanvullen van gegevens voor risicoanalyse volgens de Inspectierichtlijn Analyse microbiologische veiligheid drinkwater.

# 1 Inleiding

Historisch gezien is langzame zandfiltratie het eerst gebouwde mechanische filtratieproces dat werd toegepast in de drinkwaterbereiding. In langzame zandfiltratie percoleert water langzaam van boven naar beneden door een zandbed. Langzame zandfiltratie is effectief in het verwijderen van troebeling, micro-organismen en in mindere mate van organische stof. De meeste verwijdering vindt bovenin het filter plaats in de zogenaamde Schmutzdecke, een slijmlaag, die zich langzaam vormt op het zandfilter (Amy et al., 2006).

Belangrijk voor de werking, en daarom ook voor het ontwerp en de beheersing, van langzame zandfiltratie als zuiveringsstap in de drinkwaterbereiding zijn het type zand, de diepte van het filterbed, de filtratiesnelheid, fysisch-chemische kenmerken van het water, zoals temperatuur, pH, ionsterkte, ionsamenstelling en organischestofgehalte.

Langzame zandfiltratie wordt bij een aantal Nederlandse drinkwaterbedrijven als een van de laatste zuiveringsstappen toegepast (Waternet Leiduin en Weesperkarspel; Duinwaterbedrijf Zuid-Holland, Den Haag, Waterbedrijf Groningen, De Punt (Hijnen en Schijven, 2003)).

In de periode van 2002 tot en met 2005 werd door de drinkwaterbedrijven Waternet en Duinwaterbedrijf Zuid-Holland (DZH) in samenwerking met Kiwa Water Research (KWR), Het Waterlaboratorium en het RIVM reeds uitgebreid onderzoek gedaan naar de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie (Dullefont et al., 2004, 2006; Hijnen en Schijven, 2003; Hijnen et al., 2004, 2007; Schijven et al., 2008), waarbij de aandacht werd gericht op de mate van verwijdering. Daarbij werd verwijdering van bacteriofaag MS2 als surrogaat voor virussen, *E. coli* als surrogaat voor bacteriën onderzocht op proefinstallatieschaal bij verschillende temperaturen en in aanwezigheid van een Schmutzdecke. Ook werd zand van DZH en Waternet onderling vergeleken. Daarnaast werd naar de verwijdering van oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, diatomeeën en sporen van *Clostridia* gekeken op laboratorium- en proefinstallatieschaal.

Gevonden werd dat ongeveer één op de honderd virussen, één op de tienduizend bacteriën en minder dan één op de honderdduizend parasitaire protozoa nog door de zandfilters komt. De concentratie van de micro-organismen in het toegevoerde water bleek niet van invloed (Schijven et al., 2008).

Bij 9 – 12 °C werd geen effect van de Schmutzdecke op de verwijdering van virussen gevonden, maar met Schmutzdecke worden bacteriën honderd keer meer verwijderd dan zonder. Bij 14 – 16 °C werden alle micro-organismen ongeveer tien keer meer verwijderd. Na afschrapen was de werking van de Schmutzdecke binnen 53 dagen hersteld. Ook wees het onderzoek uit dat het zand van de twee onderzochte waterleidingbedrijven nagenoeg even werkzaam was (Schijven et al., 2008). Door het grote verschil in verwijdering en ook door predatie van oöcysten van *Cryptosporidium*, maar niet van *Clostridium*-sporen in het zandfilter, werd geconcludeerd dat sporen van sulfiet reducerende *Clostridia* geen goede surrogaatparameter zijn voor oöcysten van *Cryptosporidium* (Hijnen et al., 2007).

Een overzicht van dit onderzoek werd gepresenteerd op de BTO-workshop in oktober 2006 (Hijnen et al., 2006). Daarin kwam filtratiesnelheid naar voren als een van de meest belangrijke factoren om te onderzoeken. Ook temperatuur verdiende aandacht, omdat uit het onderzoek bleek dat bij lagere temperatuur verwijdering van micro-organismen minder effectief verloopt, maar dat bovendien niet de laagste voorkomende bedrijfstemperatuur in het gedane onderzoek zat. Bij een hogere temperatuur gaat biologische activiteit als verwijderingsproces in belang toenemen.

Samengevat:

- Het onderzoek heeft nog geen duidelijk beeld gegeven over het effect van de filtratiesnelheid, een parameter die voor de bedrijven van belang is.



- Tot dusver zijn de experimenten uitgevoerd in het temperatuurbereik van 7,5 –16 °C. Hoe effectief langzame zandfiltratie bij 2 – 7,5 °C is, is nog niet bekend.
- Naast temperatuur en filtratiesnelheid is ook korrelgrootte een belangrijke procesparameter die van invloed is op de effectiviteit van langzame zandfiltratie.
- Naast de uitgevoerde doseerproeven op proefinstallatieschaal zijn er voor de bedrijfsfilters momenteel geen andere middelen om de effectiviteit locatiespecifiek te verifiëren. Er is een alternatieve manier nodig om de verwijdering van bedrijfsfilters te kunnen vaststellen, afhankelijk van de locatiespecifieke condities. Dit zou kunnen aan de hand van een rekenmodel.
- Literatuuronderzoek is nodig om gegevens en modellen te verzamelen, die kunnen leiden tot een rekenmodel waarmee voorspellingen van de verwijdering van micro-organismen gedaan kunnen worden, afhankelijk van filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte. Dit model moet dan nog gevalideerd worden.

De processen waardoor micro-organismen tijdens langzame zandfiltratie worden verwijderd, zijn inactivatie/afsterving, hechting aan het zand en zeefwerking. Inactivatie/afsterving kan onder meer het gevolg zijn van biologische activiteit zoals predatie door protisten (biodegradatie).

De effectiviteit van deze processen is afhankelijk van de filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte van het filterzand, wat belangrijke bedrijfscondities en ontwerpparameters zijn. Door deze processen te kwantificeren in relatie tot die bedrijfscondities, kunnen rekenmodellen worden ontwikkeld, waarmee kan worden voorspeld in welke mate micro-organismen door langzame zandfiltratie worden verwijderd onder verschillende bedrijfscondities.

De belangrijke bedrijfscondities filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte kunnen variëren afhankelijk van benodigde productiecapaciteit, weersomstandigheden en het drinkwaterbedrijf:

- Een waterleidingbedrijf kan de filtratiesnelheid verhogen om de productie van drinkwater op te voeren. Dit mag dan natuurlijk niet tot gevolg hebben dat micro-organismen onvoldoende worden verwijderd. Ook ten gevolge van onderhoudswerkzaamheden of calamiteiten kan de filtratiesnelheid veranderen. Plotselinge snelheidsveranderingen zouden tot gevolg kunnen hebben dat achtergebleven micro-organismen in het zandfilter weer gemobiliseerd worden. De langzame zandfilters van verschillende drinkwaterbedrijven kunnen verschillen in afmetingen en in de toegepaste filtratiesnelheden.
- De temperatuur van het gefiltreerde water varieert ten gevolge van het wisselen van de seizoenen en de heersende weersomstandigheden. Afhankelijk van de aard van het ingenomen water en het ontwerp van de zandfilters verschilt de temperatuurvariatie tussen bedrijven.
- Ook de korrelgrootte van het zand tussen de verschillende waterleidingbedrijven varieert (0,25 mm – 0,50 mm). In het algemeen geldt dat micro-organismen in zand met een kleinere korrelgrootte beter verwijderd worden. Dat neemt niet weg dat in grover zand de verwijdering ook goed kan zijn, mits er voldoende hechting van de micro-organismen aan de zandkorrels kan plaatsvinden.

Inzicht in de effecten van de filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie is van belang bij de vertaling tussen bedrijven of van literatuurgegevens naar bedrijf met behulp van rekenmodellen en daarmee ook van belang bij de wettelijke verplichte kwantitatieve microbiologische risicoschattingen (VROM-Inspectie, 2005).

Tot op zekere hoogte is reeds bekend wat de relatie is tussen filtratiesnelheid en de effectiviteit van de verwijderingsprocessen. Bijvoorbeeld, bij een hogere filtratiesnelheid is er minder tijd voor afsterving. Hechting is deels afhankelijk van diffusie van deeltjes en daardoor ook afhankelijk van de filtratiesnelheid. Hechting wordt door het colloïdfiltratiemodel (bijvoorbeeld Yao et al., 1971; Tufenkji en Elimelech, 2004) beschreven. Het colloïdfiltratiemodel bevat termen voor diffusie, sedimentatie en

interceptie van colloïdale deeltjes door de zandkorrels van het zandfilter. Volgens het colloïdfiltratiemodel neemt diffusie (Brownse beweging) van kleine deeltjes toe met de temperatuur. Dit model voorspelt dus meer hechting bij een hogere temperatuur. Ook voorspelt dit model dat in zand met kleinere korrels er meer interceptie plaatsvindt. Dus in fijner zand voorspelt dit model ook meer hechting. Bij een hogere filtratiesnelheid kunnen poriën in het zandfilter eerder verstopt raken, hetgeen effect heeft op de vorming van de Schmutzdecke en op zeefwerking. Verwijdering van micro-organismen door zeefwerking is naar verwachting ook effectiever in fijner zand (Bradford et al., 2003).

Een belangrijke reden om het effect van veranderingen in filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie te onderzoeken, is ook dat de kwantitatieve relatie tussen filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte enerzijds en effectiviteit van de verwijdering van micro-organismen anderzijds sowieso niet goed bekend is. Het colloïdfiltratiemodel is empirisch van aard en gebaseerd op vereenvoudigingen, zoals een glad oppervlak van de zandkorrels (Ryan en Elimelech, 1996).

Het onderhavige onderzoek is een modelleringsstudie, waarin aan de hand van reeds verzamelde verwijderingsgegevens (Schijven et al., 2008) en modellering de effecten van filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte onderzocht worden. Het doel is om tot de formulering van een model te komen, waarmee voorspellingen van deze effecten kunnen worden gedaan en waar vervolgens op basis daarvan experimenten kunnen worden geformuleerd (nieuwe onderzoeksvoorstellen). Dit betreft experimenten die ter validatie van het model worden uitgevoerd. Daarbij ligt de keuze op het uitvoeren van de experimenten op proefinstallatieschaal. In deze experimenten worden micro-organismen in hoge concentraties gedoseerd. Dit is niet toegestaan op praktijkfilters die in gebruik zijn voor de drinkwaterproductie. Omdat de filters in proefinstallaties functioneren onder dezelfde condities als de praktijkfilters (hetzelfde water, zand, filterbeddiepte en temperatuur) wordt de werking van de praktijkfilters zeer goed nagebootst. De modelvoorspellingen kunnen geverifieerd worden door vergelijking met de resultaten van het experimentele onderzoek (modelvalidatie).

Dit rapport beschrijft de eerste fase van het onderzoek met de volgende doelstellingen:

- Onderzoeken van de kwantitatieve relatie tussen filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte enerzijds en de verwijderingprocessen (inactivatie/afsterving, hechting en zeefwerking) anderzijds.
- Modelmatige voorspelling verwijdering micro-organismen door langzame zandfiltratie bij verschillende filtratiesnelheden, temperaturen en korrelgroottes.
- Formuleren van experimenteel vervolgonderzoek op grond van modelvoorspellingen (tweede fase van het onderzoek). Daarbij worden ook de nog ontbrekende gegevens, die nodig zijn voor de wettelijke verplichte risicoschatting zoals beschreven in de Inspectierichtlijn (VROM-Inspectie, 2005), mede in beschouwing genomen.

De mate van hechting en zeefwerking zijn sterk afhankelijk van de eigenschappen van het micro-organisme, zoals oppervlaktelading en grootte. Derhalve richt dit onderzoek zich op zowel virussen, als op bacteriën en parasitaire protozoa. Dat wil zeggen dat dezelfde indexpathogenen en indicatororganismen worden beschouwd als in de Inspectierichtlijn (VROM-Inspectie, 2005). Een dergelijke benadering op grond van de eigenschappen van micro-organismen heeft tevens als voordeel dat de ontwikkelde modellen ook kunnen worden toegepast voor nieuwe, zogenaamde emerging pathogenen.

## 2 Methoden

### 2.1 Micro-organismen

De micro-organismen waarop dit onderzoek van toepassing is, betreffen bacteriofagen (met name MS2), *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium*. De eerste twee zijn goede surrogaten voor verwijdering van virussen, respectievelijk bacteriën (Schijven et al., 2008), terwijl *Cryptosporidium* zelf een belangrijke ziekteverwekker is. Samen omvatten ze het groottebereik van 26 nm – 6 µm.

De zogenaamde indexpathogenen, waarvoor volgens de Inspectierichtlijn (VROM-Inspectie, 2005) een risicoschatting moet worden gedaan, zijn enterovirussen, *Campylobacter*, *Cryptosporidium* en *Giardia*. Volgens de Inspectierichtlijn van 2005 dienen bacteriofagen als surrogaat voor enterovirussen, *E. coli* als surrogaat voor *Campylobacter* en sporen van sulfietreducerend *Clostridia* als surrogaat voor *Cryptosporidium* en *Giardia* om de efficiëntie van de zuivering te bepalen.

Volgens Hijnen et al. (2007) zijn de *Clostridium*-sporen echter geen goede surrogaat voor de parasitaire protozoa bij langzame zandfiltratie.

Aangenomen kan worden dat cysten van *Giardia* beter worden verwijderd door langzame zandfiltratie dan oöcysten van *Cryptosporidium*, omdat cysten (8 – 12 µm) groter zijn dan oöcysten (4 – 6 µm).

### 2.2 Modelbeschrijving

#### 2.2.1 Conceptueel model

Verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie vindt plaats door inactivatie/afsterving, door zeefwerking en door hechting aan de zandkorrels. Dit kunnen we als volgt formuleren (Bradford et al., 2003):

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -u \frac{\partial C}{\partial z} - (k_{str} \Psi_{str} + k_{att} \Psi_{att}) C \quad (1)$$

Hierin is  $C$  de concentratie van micro-organismen in water [ $L^{-3}$ ],  $t$  is de tijd [T],  $z$  is de diepte [L],  $u$  is de poriewatersnelheid [ $LT^{-1}$ ],  $k_{str}$  is de zeefwerkingsnelheidscoëfficiënt (straining) [ $T^{-1}$ ] en  $\Psi_{str}$  is een dimensieloze functie voor zeefwerking,  $k_{att}$  is de hechtingsnelheidscoëfficiënt [ $T^{-1}$ ] en  $\Psi_{att}$  is een dimensieloze functie voor hechting.

Merk op dat in deze vergelijking dispersie is verwaarloosd, hetgeen gerechtvaardigd is op basis van de lage waarden voor dispersiviteit van 4 – 13 mm die werden gevonden voor langzame zandfilters op proefinstallatieschaal (Schijven et al., 2008). In vergelijking (1) wordt ook onthechting (detachment) van micro-organismen verwaarloosd. Uit hetzelfde onderzoek van Schijven et al. (2008) werd namelijk gevonden dat onthechtingsparameters meestal ongeveer vier ordes in grootte kleiner waren dan de hechtingsparameters.

Inactivatie/afsterving van micro-organismen in het gefiltreerd water werd in het proefinstallatieonderzoek (Schijven et al., 2008) voor bacteriofaag MS2 en *E. coli* gemeten in de doseersuspensies bij dezelfde temperatuur als de doseerexperimenten. Daaruit bleek dat inactivatie in het water gedurende de passagetijd van 1,3 uur door een zandfilter van 1,5 m slechts 0,004 – 0,03  $^{10}\log$

bedroeg, wat verwaarloosbaar is. Derhalve beschrijft het conceptuele model in vergelijking (1) alleen verwijdering van micro-organismen door irreversibele zeefwerking en irreversibele hechting. Dat houdt in dat de aldus in het zandfilter achtergebleven micro-organismen vervolgens nog wel geïnactiveerd kunnen raken. Verwijdering door predatie door protisten is ook mogelijk.

Het huidige onderzoek was gericht op de effecten van filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie en dus werd gekeken hoe de modelparameters ( $k_{str}$ ,  $\Psi_{str}$ ,  $k_{att}$ ,  $\Psi_{att}$ ) voor zeefwerking en hechting afhangen van ( $u$ ,  $temp$ ,  $d_c$ ). Tevens werd de invloed van de aanwezigheid van de Schmutzdecke in beschouwing genomen (zie paragraaf 2.2.5).

### 2.2.2 Zeefwerking

Zeefwerking (straining) van colloïdale deeltjes vindt plaats in de poriën van het zand die klein genoeg zijn. Dit dus afhankelijk van de verhouding van de grootte van de deeltjes en de poriën. De deeltjes kunnen nog steeds via grotere poriën door het zandfilter komen. Evenals hechting van deeltjes aan het zand is zeefwerking van deeltjes in het zand afhankelijk van zwaartekracht en soortelijk gewicht, de krachten van stromend water, aantrekking of afstoting door elektrische dubbellen, en van London-Van der Waals-krachten. In tegenstelling tot hechting vindt zeefwerking plaats in poriën die tussen ten minste twee vaste oppervlakken liggen van twee zandkorrels of op zandkorrels met een ruw oppervlak (Bradford et al., 2006). Volgens Bradford et al. (2003) geldt:

$$k_{str} = 269,7 \left( \frac{d_p}{d_c} \right)^{1,42} \quad (2)$$

$$\Psi_{str} = \left( \frac{d_c + z}{d_c} \right)^{-\beta} \quad (3)$$

Hierin is  $d_p$  de grootte van het colloïdale deeltjes (micro-organisme) [L] en  $d_c$  de gemiddelde diameter van de collector (korrelgrootte) [L]. In vergelijking (2) heeft  $k_{str}$  de eenheid  $\text{minuut}^{-1}$ . In vergelijking (3) is  $\beta$  een parameter die de vorm van de ruimtelijke verdeling (diepteprofiel) van de colloïdale deeltjes bepaalt. Het verloop van het diepteprofiel van door zeefwerking tegengehouden deeltjes is veelal hyperexponentieel. Dit hyperexponentiële profiel werd echter niet gevonden door Schijven et al. (2008), wat erop duidt dat onder die condities zeefwerking waarschijnlijk toch minder belangrijk is. Bradford et al. (2004) vonden de waarde van 0,432 voor  $\beta$  als er significante zeefwerking van colloïden plaatsvond. De constanten in vergelijking (2) zijn van toepassing bij deze waarde van  $\beta$ . Bradford et al. (2003) ontwikkelden dit diepteafhankelijke zeefwerkingsmodel op basis van kolomexperimenten met zand met een  $d_c$  in het bereik van 0,15 – 0,74 mm en met negatief geladen latex bolletjes met een  $d_p$  in het bereik van 0,45 – 3,2  $\mu\text{m}$ . Zeefwerking werd vervolgens ook onderzocht in kolomexperimenten voor *Cryptosporidium* (Bradford et al., 2004) en *E. coli* (Bradford et al., 2005, Foppen et al., 2005, 2007).

### 2.2.3 Hechting

Hechting van micro-organismen aan de zandkorrels van een langzaam zandfilter wordt in

vergelijking (1) met de factor  $k_{att} \Psi_{att}$  beschreven.

Volgens de colloïdfiltratietheorie (Yao et al., 1971), kan de hechtingsnelheidscoëfficiënt van een (bio)colloïde worden uitgedrukt in termen van een single collector efficiency  $\eta_0$  en een sticking efficiency  $\alpha$ :

$$k_{att} = \frac{3}{2} \frac{1-n}{d_c} \alpha \eta_0 u \quad (4)$$

Hierin is  $n$  de porositeit. De fractie van de colloïdale deeltjes die op de collector botsen ten gevolge van afvanging (interceptie), sedimentatie of diffusie (Brownse beweging) wordt gegeven door  $\eta_0$ , waarvan de waarde afhankelijk is van fysieke eigenschappen als de grootte van collector en colloïde, porositeit, filtratiesnelheid en temperatuur.

De sticking efficiency  $\alpha$  vertegenwoordigt de fractie van de deeltjes die op de collector botsen en vervolgens aan de collector hechten en is derhalve het netto effect van de afstotende en aantrekkende krachten tussen de oppervlakken van collector en colloïde en hangt af van hun oppervlakte-eigenschappen. Aldus hangt  $\alpha$  af van pH, organisch koolstofgehalte en ionsterkte en ionsamenstelling. Aangenomen wordt dat  $\alpha$  onafhankelijk is van hydrodynamische effecten (snelheid en dispersie). Als  $\alpha$  bekend is voor bepaalde condities, zoals type virus, type zand, pH, organisch koolstofgehalte en ionsterkte, dan kan  $k_{att}$  worden berekend voor verschillende hydrodynamische condities. Gewoonlijk wordt de waarde van  $\alpha$  afgeleid van experimentele waarden van  $k_{att}$  en berekende waarden van  $\eta_0$ . Daarbij kan gebruik worden gemaakt van de correlatievergelijking ontwikkeld door Tufenkji en Elimelech (2004):

$$\eta_0 = \eta_D + \eta_I + \eta_G \quad (5)$$

$$\eta_D = 2.4 A_s^{1/3} N_R^{-0.081} N_{Pe}^{-0.715} N_{vdW}^{-0.052} \quad (6)$$

$$\eta_I = 0.55 A_s N_R^{1.675} N_A^{0.125} \quad (7)$$

$$\eta_G = 0.22 N_R^{-0.24} N_G^{1.11} N_{vdW}^{-0.053} \quad (8)$$

Hierin beschrijft  $\eta_D$  het transport door diffusie,  $\eta_I$  door interceptie en  $\eta_G$  door sedimentatie.

$A_s$  is de porositeitafhankelijke parameter van Happels model  $A_s = 2(1 - \gamma^5)/(2 - 3\gamma + 3\gamma^5 - 2\gamma^6)$ ,  $\gamma = (1 - n)^{1/3}$  met porositeit  $n$ .

$N_R = \frac{d_p}{d_c}$  is de verhouding van de grootte van colloïde  $d_p$  en collector  $d_c$ ,

$N_{Pe} = und_c \frac{3\pi\mu d_p}{k_B T}$  is het Pecletgetal met  $\mu$  de dynamische viscositeit van het water [ $\text{ML}^{-1}\text{T}^{-1}$ ],

$k_B = 1,3805 \times 10^{-23}$  J/K, de Boltzmann-constante en  $T$  de temperatuur, °K,

$N_{vdW} = \frac{H}{k_B T}$  is het Van der Waalsgetal met  $H = 10^{-20}$  J, de Hamaker constante voor de interactie tussen latex bolletjes en glaspereels.

$N_A = \frac{H}{3\pi\mu d_p^2 u n}$  is het aantrekkingsgetal.

$N_G = \frac{\pi d_p^2 (\rho_p - \rho_f) g}{3k_B T}$  is het gravitatiegetal met  $\rho_p$  [ML<sup>-3</sup>] de dichtheid van het micro-organisme,  $\rho_f$  [ML<sup>-3</sup>] de vloeistofdichtheid en  $g = 9,81$  [m/s<sup>2</sup>] de gravitatieversnelling.

In het algemeen zijn micro-organismen negatief geladen, hoewel de ladingen sterk kunnen variëren. Daarnaast spelen ook grootte, vorm, sterische hindering door oppervlaktemoleculen en hydrofobiciteit van de micro-organismen een rol bij hechting (toename van  $\alpha$ ). Gewoonlijk leiden een hogere ionsterkte, een lagere pH en de aanwezigheid van multivalente ionen tot een toename van hechting. Opgeloste organische stof kan, afhankelijk van de eigenschappen ervan, hechting verhinderen door plaatsen voor hechting te bezetten. Voor meer detail met betrekking tot hechting van virussen kan worden verwezen naar het literatuuroverzicht van Schijven en Hassanizadeh (2000), voor *E. coli* naar Foppen en Schijven (2006) en voor *Cryptosporidium* naar Tufenkji et al. (2006).

$\Psi_{att}$  is een dimensieloze functie voor hechting en is gelijk aan 1 in het geval van een nieuw filter (clean bead, Bradford et al., 2003).  $\Psi_{att}$  kan veranderen ten gevolge van blocking, waarbij alle hechtingsplaatsen bezet raken door rijping van het filter en door niet-exponentiële ruimtelijke verdelingen (Johnson en Elimelech, 1995; Redman et al., 2001).

## 2.2.4 Steady statemodel

In voorgaande paragrafen zijn de verwijderingprocessen beschreven, met inbegrip van filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte. In deze paragraaf wordt een beschrijving gegeven van de bijdrage van de verwijderingprocessen aan de verwijdering van de micro-organismen door langzame zandfiltratie.

Onder steady state conditions geldt  $\frac{\partial C}{\partial t} = 0$ , zodat vergelijking (1), na substitutie van de vergelijkingen (2), (3) en (4), het volgende steady statemodel als analytische oplossing heeft:

$$-\ln\left(\frac{C}{C_0}\right) = \frac{1}{u} 269,7 \left(\frac{d_p}{d_c}\right)^{1,42} \frac{d_c^\beta (d_c + z)^{1-\beta} - d_c}{1-\beta} + \frac{3}{2} \frac{1-n}{d_c} \alpha \eta_0 \quad (9a)$$

Aldus kan de verwijdering  $^{10}\log\left(\frac{C}{C_0}\right)$  worden uitgedrukt als de som van de verwijderingen door zeefwerking (straining) en hechting (attachment):

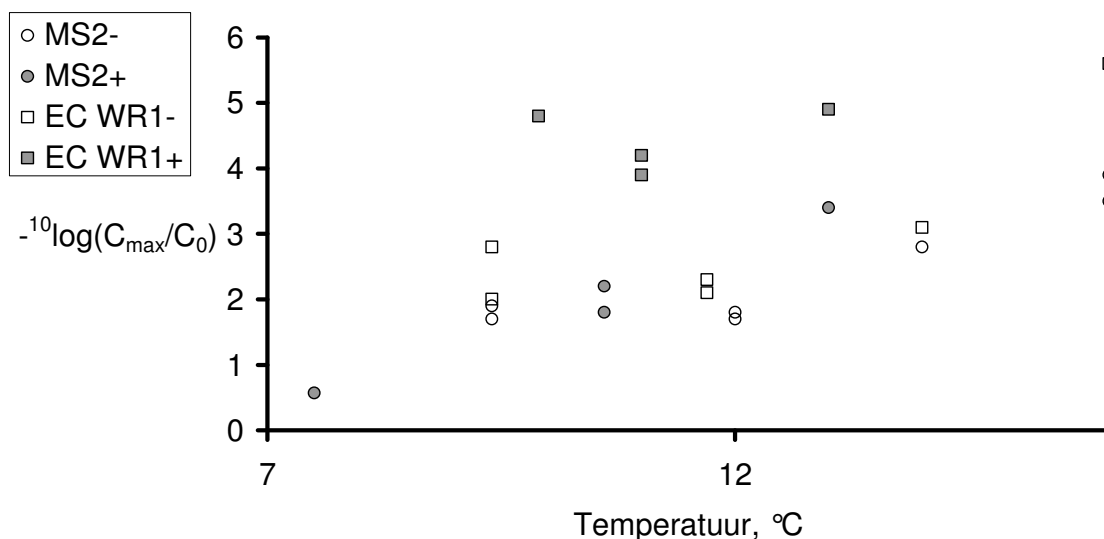
$$^{10}\log\left(\frac{C}{C_0}\right) = ^{10}\log\left(\frac{C}{C_0}\right)_{str} + ^{10}\log\left(\frac{C}{C_0}\right)_{att} \quad (9b)$$

$${}^{10}\log\left(\frac{C}{C_0}\right)_{str} = -\frac{1}{\ln(10)} \frac{1}{u} 269,7 \left(\frac{d_p}{d_c}\right)^{1,42} \frac{d_c^\beta (d_c + z)^{1-\beta} - d_c}{1-\beta} \quad (9c)$$

$${}^{10}\log\left(\frac{C}{C_0}\right)_{att} = -\frac{1}{\ln(10)} \frac{3}{2} \frac{1-n}{d_c} \alpha \eta_0 \quad (9d)$$

### 2.2.5 Loglikelihoodfuncties en likelihoodratiotoets

Door de experimenten op proefinstallatieschaal in 2002 en 2005 om de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie te bepalen, werden gegevens verzameld over de verwijdering van bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 bij verschillende filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte (Schijven et al., 2008). Figuur 1 laat deze verwijderingsgegevens als functie van de watertemperatuur zien. Daaruit kan worden afgeleid dat er een sterk effect van de temperatuur is op de verwijdering van bacteriofaag MS2 en dat dit effect sterker is in de aanwezigheid van een Schmutzdecke. Kennelijk is er hier sprake van een gecombineerd effect van temperatuur en Schmutzdecke, hetgeen een aanwijzing is voor biologische activiteit in het filter en met name de Schmutzdecke, die maakt dat bacteriofaag MS2 beter wordt verwijderd (predatie). In het geval van *E. coli* is er geen significant effect van de temperatuur, maar is in de aanwezigheid van een Schmutzdecke de verwijdering van *E. coli* ongeveer  $2^{10}\log$  hoger dan zonder Schmutzdecke. Dit werd door Schijven et al. (2008) toegeschreven aan zeefwerking van *E. coli* door de Schmutzdecke. Het bleek dat bij lage temperatuur er geen effect was van de aanwezigheid van de Schmutzdecke op de verwijdering van bacteriofaag MS2, maar wel op die van *E. coli*. In aanwezigheid van de Schmutzdecke werd *E. coli*  $2^{10}\log$  meer verwijderd. Aangezien zowel bacteriofaag MS2 als *E. coli* WR1 negatief geladen zijn, maar dat de laatste veel groter is en gegeven het feit dat de Schmutzdecke in de tijd minder doorlatend wordt, is het zeer aannemelijk dat *E. coli* in de Schmutzdecke door zeefwerking wordt tegengehouden.



Figuur 1 Verwijdering ( $-10\log(C_{\max}/C_0)$ ) van bacteriofaag MS2, *E. coli* WR1 door langzame zandfiltratie op proefinstallatieschaal bij verschillende temperatuur (Schijven et al., 2008).

Op basis van deze waarnemingen werden de volgende twee loglikelihoodfuncties geformuleerd:

$$L(\alpha_1, \alpha_2 \dots \alpha_m, \mu_{C \times SD}) = 2 \sum_{j=1}^m \sum_{i=1}^n \left[ \ln(s\sqrt{2\pi}) + \frac{\left[ \ln\left(\frac{C}{C_0}\right)_i - \frac{1}{u_i} 269,7 \left(\frac{d_{p,i}}{d_{c,i}}\right)^{1,42} \frac{d_{c,i}^\beta (d_{c,i} + z_i)^{1-\beta} - d_{c,i}}{1-\beta} + \frac{3}{2} \frac{1-n}{d_{c,i}} \alpha_j \eta_{0,i} + \mu_{C \times SD} t_i a_{SD,i} \right]^2}{2s^2} \right] \quad (10)$$

en

$$L(\alpha_1, \alpha_2 \dots \alpha_m, R_{SD}) = 2 \sum_{j=1}^m \sum_{i=1}^n \left[ \ln(s\sqrt{2\pi}) + \frac{\left[ \ln\left(\frac{C}{C_0}\right)_i - \frac{1}{u_i} 269,7 \left(\frac{d_{p,i}}{d_{c,i}}\right)^{1,42} \frac{d_{c,i}^\beta (d_{c,i} + z_i)^{1-\beta} - d_{c,i}}{1-\beta} + \frac{3}{2} \frac{1-n}{d_{c,i}} \alpha_j \eta_{0,i} + R_{SD} p_{SD,i} \right]^2}{2s^2} \right] \quad (11)$$

Hierin is  $L$  de loglikelihood (Hogg en Craig, 1978),  $i$  is de index voor elke set waarnemingen en parameters behorende bij het  $i$ -de experiment,  $\mu_{C \times SD}$  [ $^{\circ}\text{C}^{-1} \text{dag}^{-1}$ ] is een afnamesnelheidscoëfficiënt afhankelijk van temperatuur  $t$  [ $^{\circ}\text{C}$ ] en leeftijd van de Schmutzdecke is  $a_{SD}$  [ $\text{dag}^{-1}$ ].  $R_{SD}$  is het aantal <sup>10</sup>logeenheden verwijdering door aanwezigheid van de Schmutzdecke en  $p_{SD}$  is de aanwezigheidsfactor voor de Schmutzdecke, die de waarde 0 of 1 kan hebben.

Beide loglikelihoodfuncties werden gebruikt om sticking efficiencies  $\alpha$  te schatten, alsmede  $\mu_{C \times SD}$  en  $R_{SD}$ . Tevens werden hierbij waarden voor  $\alpha$  voor elk filter apart (Leiduin, Weesperkarspel, DZH) gecombineerd. De ratio van de likelihoods van de verschillende modellen met het aantal vrijheidsgraden gelijk aan het aantal te schatten parameters min één werd getoetst tegen een chi-kwadraatverdeling met dat aantal vrijheidsgraden. Als er geen significant verschil is, kan worden gekozen voor het model met het kleinste aantal parameters (Teunis et al., 1996).



## 3 Resultaten

### 3.1 Algemeen

In paragraaf 3.2 worden de resultaten van de analyse met de likelihoodratio-toets gepresenteerd en op basis daarvan worden voor bacteriofaag MS2 en *E. coli* de verwijderingsmodellen, dat wil zeggen, inclusief de waarden voor constanten in deze modellen gepresenteerd. Op basis van deze modellen worden in paragrafen 3.3 en 3.4 de effecten van filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op respectievelijk zeefwerking en hechting gedemonstreerd. Vervolgens worden in paragraaf 3.5 de voorspelde verwijderingen van bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum* voor elk van de waterleidingbedrijven (DZH, Waterbedrijf Groningen, Waternet Leiduin en Waternet Weesperkarspel) gegeven voor een reeks van waarden voor filtratiesnelheid en temperatuur, al dan niet in aanwezigheid van een Schmutzdecke.

### 3.2 Analyse verwijderinggegevens met likelihoodratio-toets

Uit de likelihoodratio-toetsing volgde dat voor verwijdering van bacteriofaag MS2 vergelijking (10) en voor *E. coli* vergelijking (11) het beste model was. Voor de verwijdering van beide micro-organismen gold dat er geen significant verschil bestond tussen de sticking efficiëncies van filters F1, F2 en F2W (Weesperkarspel en Leiduin) en dat die voor het zand van F3 (DZH) significant (ongeveer een factor 5) hoger was. Dit verschil kan worden toegeschreven aan het hogere ijzeroxidengehalte van dit zand (Schijven et al., 2008). Het volstond om voor de verwijdering van bacteriofaag MS2 één waarde van  $\mu_{C \times SD} = 1,95 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1} \text{ dag}^{-1}$  toe te passen en voor *E. coli* één waarde van  $R_{SD} = 1,98 \text{ }^{10} \log$ . Dat houdt in dat een model met verschillende waarden van deze parameters voor verschillende zandfilters geen significant grotere likelihood had.

Tabellen 1 en 2 geven in de voetnoten de waarden voor  $\alpha$ ,  $\mu_{C \times SD}$  en  $R_{SD}$ . De tabellen tonen tevens voor bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 de bedrijfscondities en de verwijdering voor de verschillende processen weer, zoals berekend met de modellen. Bovendien zijn ter vergelijking de gemeten verwijderingen gepresenteerd.

De berekende verwijderingen stemmen zeer goed overeen met de gemeten verwijderingen.

Uit Tabel 1 valt af te leiden dat zeefwerking van MS2 verwaarloosbaar klein is. Voor bacteriofaag MS2 is volgens het model verwijdering door hechting het belangrijkste. Ook voor *E. coli* is hechting belangrijk en in het geval van ontbreken van een Schmutzdecke is verwijdering van *E. coli* door zeefwerking veel minder belangrijk dan door hechting. Door hechting worden bacteriofaag MS2 en *E. coli* ongeveer evenveel verwijderd. Foppen et al. (2007) vonden in kolommen van 5 cm lengte met glasparels van 0,04 – 0,4 mm dat 5-20% van de *E. coli*'s achterbleven in de kolommen door zeefwerking (de meeste zeefwerking vond plaats in de kolommen met de kleinste korrels). In dergelijke kolommen voorspelt het zeefwerkingsmodel (vergelijking 9) dat 5-50% door zeefwerking achter zou blijven. Dit geeft aan dat *E. coli* in de langzame zandfilters dus meer door hechting dan door zeefwerking tegengehouden wordt. In de Schmutzdecke is het mogelijk dat zeefwerking daarentegen belangrijker is ten gevolge van de geringere doorlatendheid van de Schmutzdecke. Hierbij wordt aangenomen dat juist zeefwerking meer een rol speelt in de minder goede doorlatende Schmutzdecke, hetgeen de extra verwijdering van *E. coli* verklaart, terwijl bij lage temperatuur dit effect niet speelt voor virussen.

Hijnen et al. (2007) doseerden *Cryptosporidium* gedurende drie maanden aan filter F1 te Leiduin en rapporteerden 4,7 <sup>10</sup>log verwijdering, wat uitermate goed overeenstemt met de modelvoorspelling, waarbij  $\alpha = 0,01$ , zodat verwijdering hoofdzakelijk door zeefwerking plaatsvindt. Dit is in overeenstemming met de bevindingen uit de kolomproeven gerapporteerd door Schijven et al. (2008), die aangaven dat oöcysten voor bijna 100% werden tegengehouden door zeefwerking. Oöcysten van *Cryptosporidium* zijn negatief geladen (Tufenkji et al., 2006). Tufenkji et al. (2006) rapporteerden dat er subpopulaties van snel- en langzaam hechtende oöcysten zijn met sticking efficiëncies van 0,87 (snel) en van 0,01 tot 0,17 (langzaam) afhankelijk van de ionsterkte van het water. Hijnen et al. (2007) berekenden een  $\alpha$  van 0,2. In dit rapport werd daarom gekozen voor een sticking efficiency voor *Cryptosporidium* van zowel 0,01 als van 0,2 (aangeduid als Crypto 1 en Crypto 2) voor filters F1, F2 en F2W en vijf keer zo hoog voor F3 (0,05 en 1). Deze factor vijf volgt uit de gevonden  $\alpha$ -waarden voor bacteriofaag MS2 en voor *E. coli* uit het proefinstallatieonderzoek. Het bleek dat de twee  $\alpha$ -waarden voor bacteriofaag MS2 en de twee  $\alpha$ -waarden voor *E. coli* een factor 5 verschilden en ook dat verwijdering door hechting van bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 volgens de modelberekeningen ongeveer gelijk was.

**Tabel 1 Verwijdering  $-^{10}\log(C/C_0)$  van bacteriofaag MS2**

Filter	Experimentele condities						Gemeten verwijdering	Gemodelleerde verwijdering			
	Temp. °C	$a_{SD}$	$u$	$z$	$d_c$	$\alpha$		Zeefwerking	Hechting	Schmutzdecke	Totaal
F2W	7,5	56	45	1,15	0,50	0,0094	<b>0,573</b>	0,00091	0,426	0,0786	<b>0,505</b>
F1	9,4	4	30	1,54	0,29	0,0094	<b>1,66 - 1,88</b>	0,00277	1,86	0,00703	<b>1,87</b>
	16	553					<b>3,47</b>	0,00277	1,89	1,62	<b>3,52</b>
F2	10,6	81	30	1,44	0,29	0,0094	<b>1,82 - 2,23</b>	0,00267	1,75	0,161	<b>1,91</b>
	11,7	12					<b>1,79 - 1,82</b>	0,00267	1,75	0,0262	<b>1,78</b>
F3	13	137	30	1,24	0,53	0,0534	<b>3,40</b>	0,00135	3,21	0,333	<b>3,54</b>
	14	4					<b>2,83</b>	0,00135	3,22	0,0105	<b>3,23</b>
	16	53					<b>3,93</b>	0,00135	3,23	0,158	<b>3,39</b>

Porositeit  $n = 0,4$ ,  $\mu_{c,SD} = 1,87 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1} \text{ dag}^{-1}$ . Sticking efficiency  $\alpha$  voor F2W, F1 en F2 = 0,0094 en voor F3 = 0,0534. F2W:  $d_c = 0,50 \text{ mm}$ ;  $z = 1,15 \text{ m}$ ,  $u = 45 \text{ cm/uur}$ . F1:  $d_c = 0,29 \text{ mm}$ ;  $z = 1,54 \text{ m}$ ,  $u = 30 \text{ cm/uur}$ . F2:  $d_c = 0,29 \text{ mm}$ ;  $z = 1,44 \text{ m}$ ,  $u = 30 \text{ cm/uur}$ . F3:  $d_c = 0,53 \text{ mm}$ ;  $z = 1,24 \text{ m}$ ,  $u = 30 \text{ cm/uur}$ .

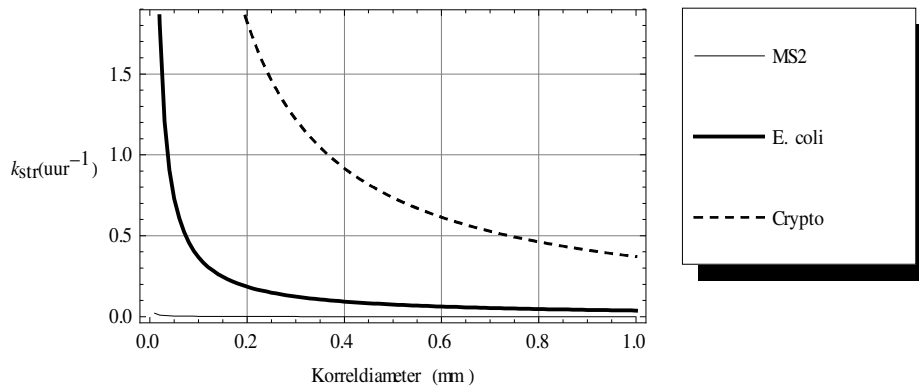
**Tabel 2 Verwijdering  $-^{10}\log(C/C_0)$  van *E. coli* WR1**

Filter	Experimentele condities						Gemeten verwijdering	Gemodelleerde verwijdering			
	Temp. °C	$a_{SD}$	$u$	$z$	$d_c$	$\alpha$		Zeefwerking	Hechting	Schmutzdecke	Totaal
F2W	7,5	56	45	1,15	0,50	0,144	<b>2,45</b>	0,162	0,415	2,01	<b>2,59</b>
F1	9,4	4	30	1,54	0,29	0,144	<b>2,07 - 2,32</b>	0,494	1,88	0	<b>2,37</b>
	9,9	1105					<b>4,77</b>	0,494	1,88	2,01	<b>4,38</b>
F2	10,6	81	30	1,44	0,29	0,144	<b>3,90 - 4,22</b>	0,475	1,75	2,01	<b>4,25</b>
	11,7	12					<b>2,04 - 2,80</b>	0,475	1,76	0	<b>2,23</b>
F3	13	137	30	1,24	0,53	0,793	<b>4,92</b>	0,240	2,96	2,01	<b>5,21</b>
	14	4					<b>3,08</b>	0,240	2,97	0	<b>3,20</b>
	16	53					<b>5,64</b>	0,240	2,98	2,01	<b>5,23</b>

Porositeit  $n = 0,4$ ,  $R_{SD} = 2,01 \text{ } ^{10}\log$ . Sticking efficiency  $\alpha$  voor F2W, F1 en F2 = 0,144 en voor F3 = 0,793. F2W:  $d_c = 0,50 \text{ mm}$ ;  $z = 1,15 \text{ m}$ ,  $u = 45 \text{ cm/uur}$ . F1:  $d_c = 0,29 \text{ mm}$ ;  $z = 1,54 \text{ m}$ ,  $u = 30 \text{ cm/uur}$ . F2:  $d_c = 0,29 \text{ mm}$ ;  $z = 1,44 \text{ m}$ ,  $u = 30 \text{ cm/uur}$ . F3:  $d_c = 0,53 \text{ mm}$ ;  $z = 1,24 \text{ m}$ ,  $u = 30 \text{ cm/uur}$ .

### 3.3 Zeefwerking

#### 3.3.1 Effect $u$ , $temp$ en $d_c$ op $k_{str}$



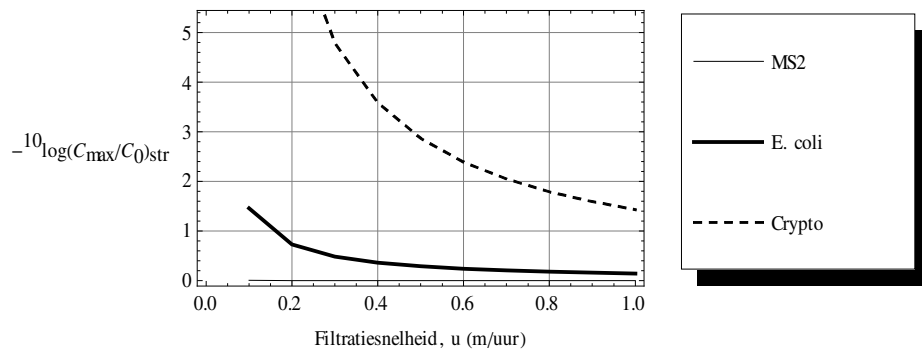
**Figuur 2** Zeefwerkingsnelheidscoëfficiënt,  $k_{str}$  ( $uur^{-1}$ ), als functie van de korreldiameter voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, filtratiesnelheid  $u$  is 0,3 m/uur, de temperatuur is 10 °C en filterdiepte  $z$  is 1,5 m.

Volgens vergelijking (2) is  $k_{str}$  onafhankelijk van  $u$  en  $temp$ , maar wel afhankelijk van de diameter van het micro-organisme  $d_p$ . Figuur 2 geeft deze relatie van  $k_{str}$  en de korrelgrootte  $d_c$ , weer. De waarde van  $k_{str}$  neemt exponentieel af met de korreldiameter. Bovendien heeft de korreldiameter een groter effect op  $k_{str}$  naarmate het micro-organisme groter is en is  $k_{str}$  groter als het micro-organisme groter is. De waarde van  $k_{str}$  en het effect van  $d_c$  daarop is voor bacteriofaag MS2 ten opzichte van de *E. coli* en *Cryptosporidium* verwaarloosbaar klein.

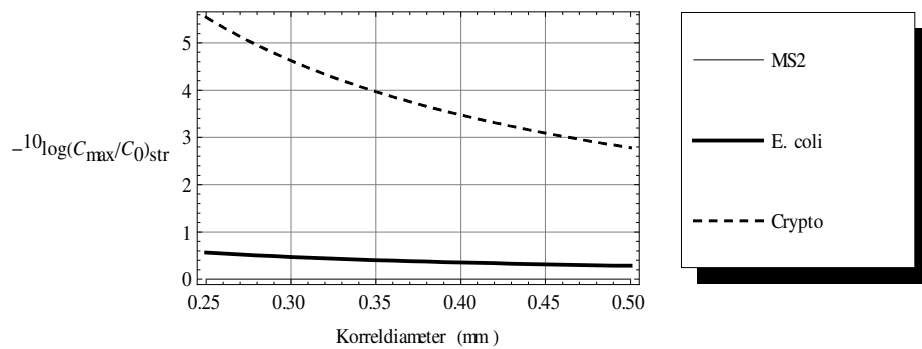
#### 3.3.2 Effect $u$ , $temp$ en $d_c$ op de verwijdering door zeefwerking

Vergelijking (9c) geeft de verwijdering door zeefwerking aan. Hierin is de verwijdering door zeefwerking afhankelijk van filtratiesnelheid  $u$ , korreldiameter  $d_c$  en filterdiepte  $z$ , maar onafhankelijk van de temperatuur.

Figuur 3 geeft de verwijdering van bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *C. parvum* als functie van de filtratiesnelheid. Ten opzichte van elkaar voorspelt het model dat zeefwerking van MS2 verwaarloosbaar klein is en dat die voor *Cryptosporidium* het grootst is, geheel in lijn met de grootte van de micro-organismen. Volgens dit model is bij grotere filtratiesnelheid de verwijdering door zeefwerking minder. Figuur 4 toont de verwijdering van deze micro-organismen als functie van de korrelgrootte. Zoals verwacht is ook hier het effect het grootst voor het grootste micro-organisme en neemt zeefwerking af met toenemende korrelgrootte. In het bereik van een korrelgrootte van 0,25 – 0,50 mm neemt de verwijdering van *Cryptosporidium* af van 5 naar 2,5  $10^1$ log, die van *E. coli* van 0,5 naar 0,2  $10^1$ log. De verwijdering van bacteriofaag MS2 door zeefwerking is verwaarloosbaar klein.



**Figuur 3** Verwijdering door zeefwerking als functie van de filtratiesnelheid voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, korreldiameter  $d_c$  is 0,29 mm, de temperatuur is 10 °C en filterdiepte  $z$  is 1,5 m.



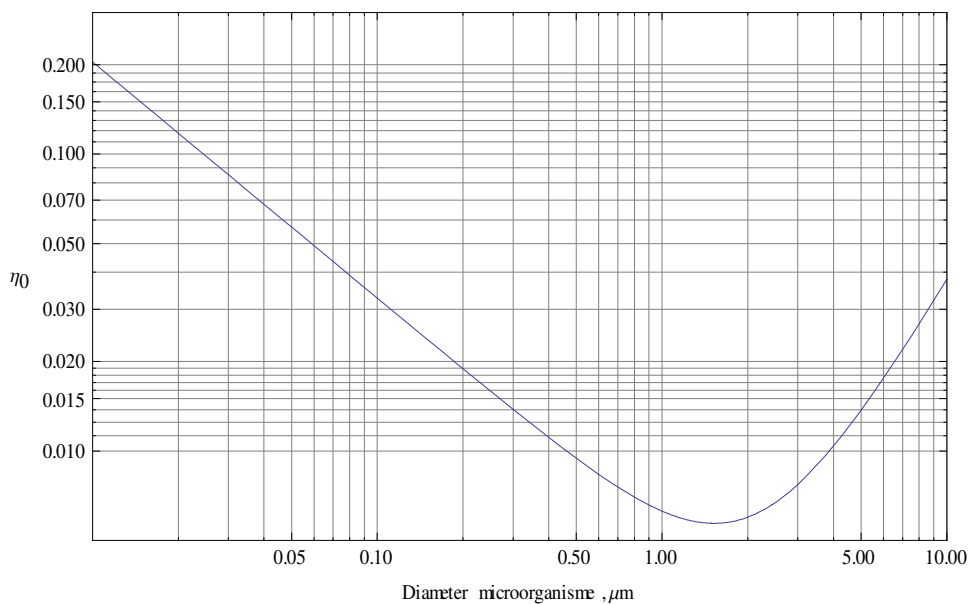
**Figuur 4** Verwijdering door zeefwerking als functie van de korreldiameter voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, filtratiesnelheid  $u$  is 0,3 m/uur, de temperatuur is 10 °C en filterdiepte  $z$  is 1,5 m.

### 3.4 Hechting

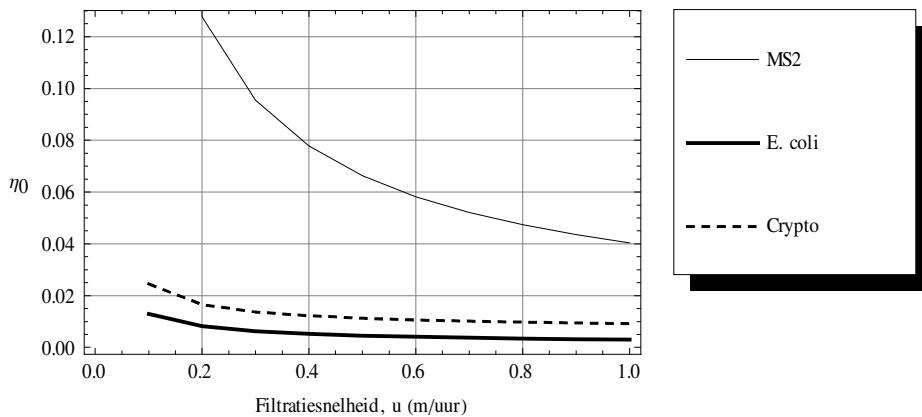
#### 3.4.1 Effect $u$ , $temp$ en $d_c$ op botsingskans $\eta_0$

Volgens vergelijkingen (4) tot en met (8) is de botsingskans  $\eta_0$  een functie van ( $u$ ,  $temp$ ,  $d_c$ ). Figuur 5 geeft de relatie van de botsingskans  $\eta_0$  en de diameter van de micro-organismen  $d_c$  weer.

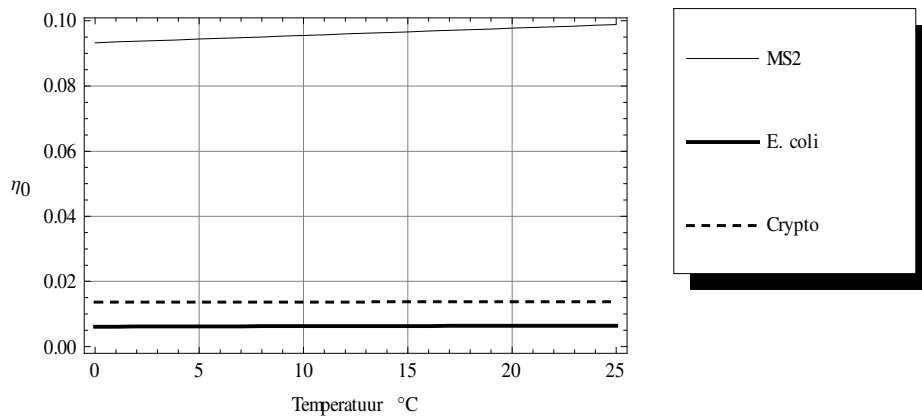
Hieruit blijkt dat  $\eta_0$  de laagste waarde heeft voor een micro-organisme met een grootte van 1 – 2  $\mu\text{m}$ , zoals een bacterie of bacteriespore. Virussen van 20 – 200 nm hebben daarentegen de hoogste  $\eta_0$ -waarde, wat hoofdzakelijk het gevolg is van diffusie (Brownse beweging). De waarde van  $\eta_0$  voor oöcysten van *Cryptosporidium* wordt vooral bepaald door interceptie en sedimentatie. Figuur 6 laat zien dat  $\eta_0$  afneemt bij hogere filtratiesnelheid. Dit effect is groter naarmate het micro-organisme kleiner is. Voor bacteriofaag MS2 is dit effect zeer sterk. Figuur 7 toont dat temperatuur een klein effect heeft op de waarde van  $\eta_0$  voor bacteriofaag MS2, en dat dit effect verwaarloosbaar is voor *E. coli* en *Cryptosporidium*. De waarde van  $\eta_0$  voor bacteriofaag MS2 wordt voornamelijk bepaald door diffusie (Brownse beweging), hetgeen een temperatuurafhankelijk proces is. Figuur 8 toont dat de korreldiameter een groot effect heeft op de waarde van  $\eta_0$  voor alle micro-organismen. Bij korreldiameters kleiner dan 0,2 mm stijgt  $\eta_0$  zeer snel in waarde. Bij grotere korreldiameters verandert  $\eta_0$  voor *E. coli* en *Cryptosporidium* weinig in waarde.



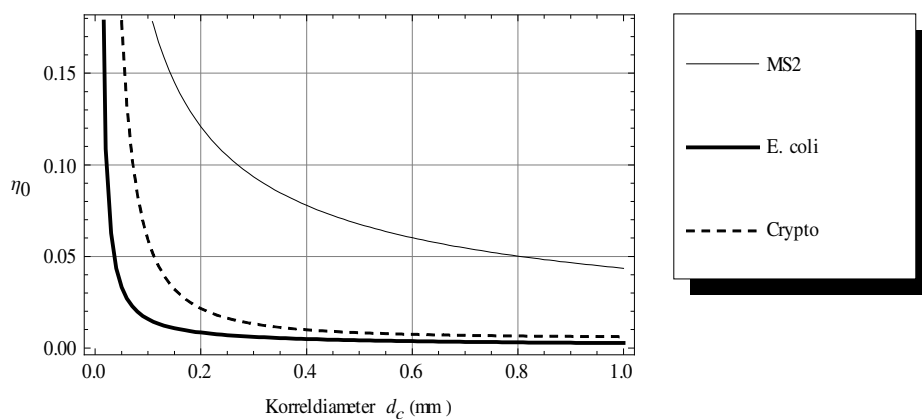
Figuur 5 Botsingskans,  $\eta_0$ , als functie van de diameter van het micro-organisme,  $d_p$ . Hierbij is korreldiameter  $d_c$  0,29 mm, de filtratiesnelheid  $u$  is 0,3 m/uur en de temperatuur is 10 °C.



**Figuur 6** Botsingskans,  $\eta_0$ , als functie van de filtratiesnelheid  $u$  voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, korreldiameter  $d_c$  is 0,29 mm en de temperatuur is 10 °C.



**Figuur 7** Botsingskans,  $\eta_0$ , als functie van de temperatuur voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, korreldiameter  $d_c$  is 0,29 mm en filtratiesnelheid  $u$  is 0,3 m/uur.

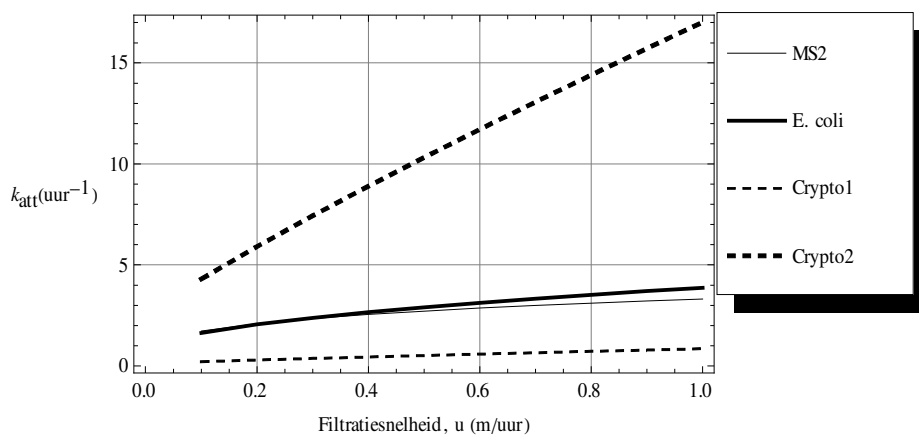


**Figuur 8** Botsingskans,  $\eta_0$ , als functie van de korreldiameter voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, filtratiesnelheid  $u$  is 0,3 m/uur en de temperatuur is 10 °C.

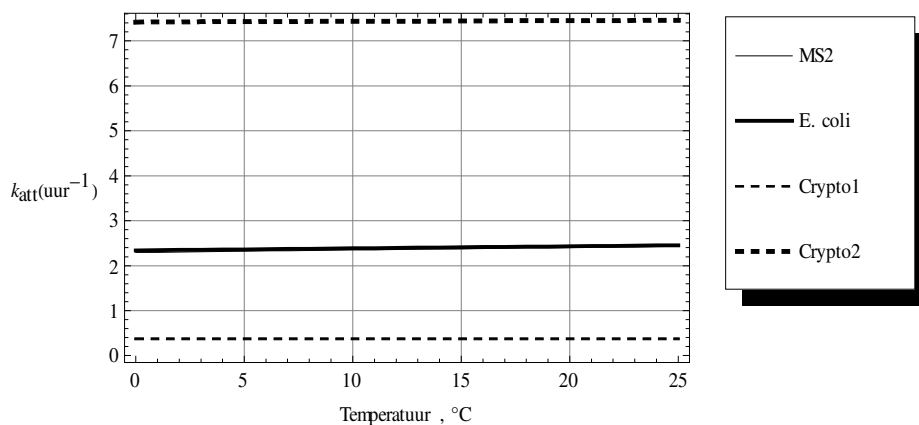
### 3.4.2 Effect $u$ , $temp$ en $d_c$ op de $k_{att}$

We hebben nu beschreven hoe volgens het colloïdfiltratiemodel de botsingskans afhangt van ( $u$ ,  $temp$ ,  $d_c$ ). Volgens het colloïdfiltratiemodel (Yao et al., 1971) zijn ( $u$ ,  $temp$ ,  $d_c$ ) verdisconteerd in de waarde van  $\eta_0$  en is daarom de sticking efficiency  $\alpha$  onafhankelijk van ( $u$ ,  $temp$ ,  $d_c$ ). In de navolgende figuren representeren Crypto 1 en Crypto 2 de twee gekozen waarden voor  $\alpha$  van 0,01 en 0,2.

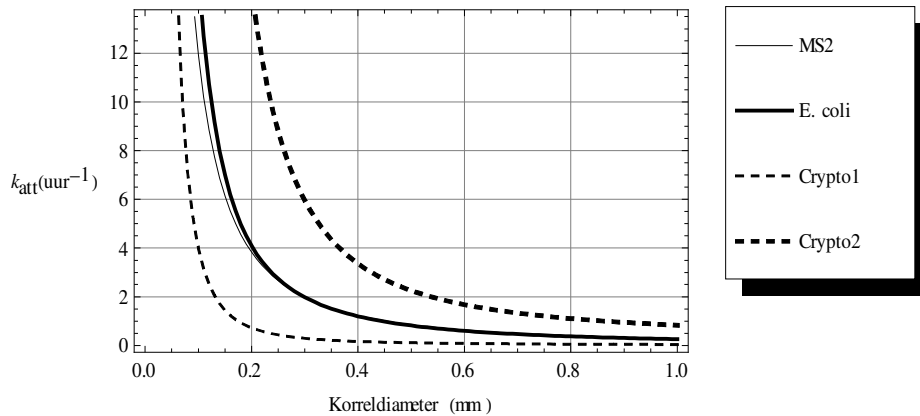
Figuur 9 laat zien dat  $k_{att}$  toeneemt met de filtratiesnelheid. Figuur 10 laat zien dat  $k_{att}$  weinig temperatuurafhankelijk is, de waarde van  $k_{att}$  voor bacteriofaag MS2 is enigszins gevoelig voor temperatuursverandering, hetgeen volgt uit de temperatuurgevoeligheid van  $\eta_0$  voor MS2. Ten slotte laat Figuur 11 zien dat voor alle micro-organismen  $k_{att}$  sterk afneemt als de korreldiameter toeneemt.



Figuur 9 Hechtingsnelheidscoëfficiënt  $k_{att}$  ( $uur^{-1}$ ), als functie van de filtratiesnelheid voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*,  $d_c$  is 29  $\mu m$ , de temperatuur is 10 °C,  $\alpha$  is 0,0094 voor MS2, 0,144 voor *E. coli* en 0,01 en 0,2 voor *Cryptosporidium* 1 en 2, respectievelijk.



Figuur 10 Hechtingsnelheidscoëfficiënt  $k_{att}$  ( $uur^{-1}$ ), als functie van de temperatuur voor drie micro-organismen (bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*),  $d_c$  is 0,29  $\mu m$ ,  $u$  is 0,3  $m/uur$ ,  $\alpha$  is 0,0094 voor MS2, 0,144 voor *E. coli* en 0,01 en 0,2 voor *Cryptosporidium* 1 en 2, respectievelijk.

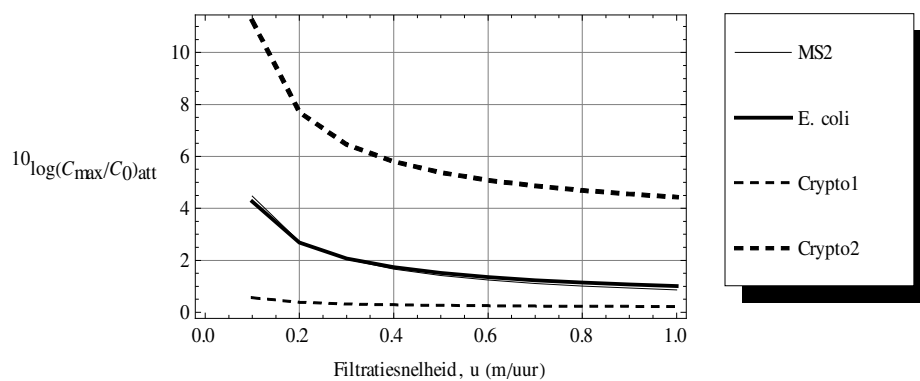


**Figuur 11** Hechtingssnelheidscoëfficiënt  $k_{att}$  ( $\text{uur}^{-1}$ ), als functie van de korrel diameter voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, filtratiesnelheid  $u$  is 0,3 m/uur, de temperatuur is 10 °C,  $\alpha$  is 0,0094 voor MS2, 0,144 voor *E. coli* en 0,01 en 0,2 voor *Cryptosporidium* 1 en 2, respectievelijk.

### 3.4.3 Effect $u$ , temp en $d_c$ op de verwijdering door hechting

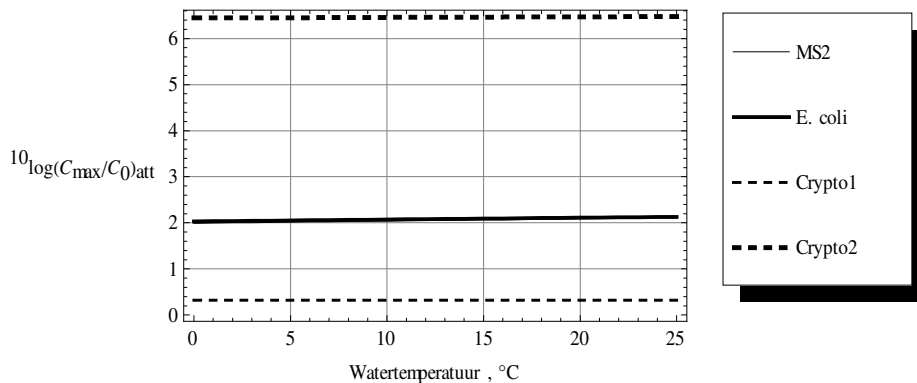
Vergelijking (9d) geeft de verwijdering door hechting aan. Figuur 12 laat zien dat de verwijdering door hechting afneemt met toenemende filtratiesnelheid.

Voor MS2, *E. coli* is de afname ongeveer 3 logeenheden over het bereik van de filtratiesnelheid, voor Crypto 1 en Crypto 2 is dit respectievelijk 7 en 0,2 logeenheden. Figuur 13 toont eenzelfde lage temperatuurafhankelijkheid van hechting als al was gegeven voor  $k_{att}$  in Figuur 9. Hechting neemt sterk af met toenemende korrelgrootte (Figuur 14).

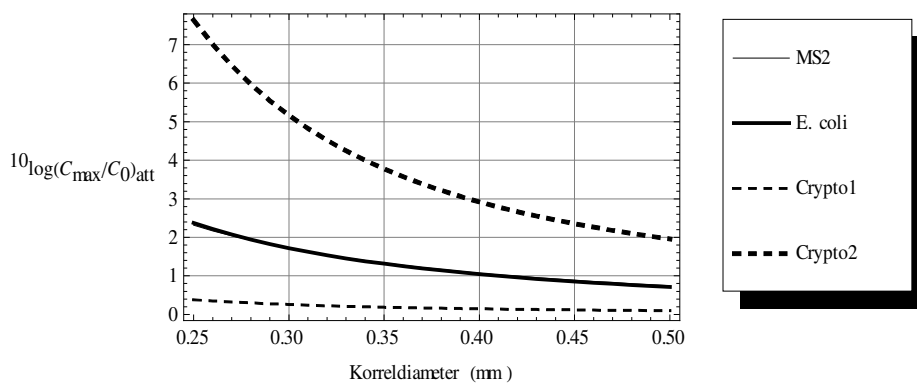


**Figuur 12** Verwijdering door hechting als functie van de filtratiesnelheid voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, korrel diameter  $d_c$  is 0,29 mm, de temperatuur is 10 °C,  $\alpha$  is 0,0094 voor MS2, 0,144 voor *E. coli* en 0,01 en 0,2 voor *Cryptosporidium* 1 en 2, respectievelijk en  $z$  is 1,5 m.





**Figuur 13** Verwijdering door hechting als functie van de temperatuur voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, korreldiameter  $d_c$  is 0,29 mm,  $u$  is 0,3 m/uur,  $\alpha$  is 0,0094 voor MS2, 0,144 voor *E. coli* en 0,01 en 0,2 voor *Cryptosporidium* 1 en 2, respectievelijk en  $z$  is 1,5 m.



**Figuur 14** Verwijdering door hechting als functie van de korreldiameter voor bacteriofaag MS2, *E. coli* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*, filtratiesnelheid  $u$  is 0,3 m/uur, de temperatuur is 10 °C,  $\alpha$  is 0,0094 voor MS2, 0,144 voor *E. coli* en 0,01 en 0,2 voor *Cryptosporidium* 1 en 2, respectievelijk en  $z$  is 1,5 m.

### 3.5 Voorspelling verwijdering op vier locaties

Verwijdering van bacteriofaag MS2, *E. coli* en *Cryptosporidium* werd voorspeld voor vier locaties voor drinkwaterbereiding, namelijk Weesperkarspel en Leiduin van Waternet, Scheveningen van DZH en De Punt van Waterbedrijf Groningen.

Tabel 3 geeft een overzicht van de parameterwaarden, dat wil zeggen de locatiespecifieke waarden voor  $\alpha$ , alsmede de grootte van de micro-organismen en de bedrijfscondities filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte, op basis waarvan verwijdering van bacteriofaag MS2, *E. coli* en *Cryptosporidium* werd voorspeld. Zoals in Tabel 3 is aangegeven, werd in alle gevallen de filtratiesnelheid en de temperatuur gevarieerd tussen 10 en 100 cm/uur, respectievelijk 2 en 20 °C. De voorspellingen zijn steeds gedaan voor bacteriofaag MS2 en voor *E. coli* voor zandfilters zonder Schmutzdecke en met een 53 dagen oude Schmutzdecke.

De resultaten van de gesimuleerde verwijderingen zijn weergegeven in Figuren 15 tot en met 26. Figuren 15 tot en met 18 tonen de voorspelde verwijdering van bacteriofaag MS2 voor de vier locaties van de drinkwaterbedrijven. In alle gevallen, als de Schmutzdecke afwezig is, is de verwijdering het laagst en is het effect van temperatuur verwaarloosbaar. Echter in aanwezigheid van de Schmutzdecke speelt de temperatuur een grote rol bij de verwijdering van bacteriofaag MS2 en dan bedraagt tussen 2 en 20 °C het verschil in verwijdering 0,3 <sup>10</sup>log. Dit verschil neemt toe als de Schmutzdecke ouder is, bij een jaar oude Schmutzdecke bedraagt dit 1,3 <sup>10</sup>log. In het geval *E. coli* is er het verschil van ongeveer 2 <sup>10</sup>log tussen aan- en afwezigheid van de Schmutzdecke, en speelt de temperatuur nauwelijks een rol. Bij de voorspelde verwijderingen van *Cryptosporidium* is geen effect van de Schmutzdecke weergegeven. De voorspellingen zijn uitsluitend gebaseerd op zeefwerking en voor een deel door hechting. Temperatuur speelt volgens de voorspellingen geen rol. De voorspellingen voor *Cryptosporidium* zijn met een lage en een twintig keer hogere waarde voor de sticking efficiency berekend, om de onzekerheid in die waarde uit te drukken. De gemeten verwijdering van 4,7 <sup>10</sup>log door Hijnen et al. (2007) was in aanwezigheid van een Schmutzdecke bepaald en komt overeen met de modelvoorspelling met een  $\alpha$  van 0,01, waarbij dan hechting veel minder belangrijk is dan zeefwerking. Dat er zoals bij *E. coli* een effect is van de Schmutzdecke is waarschijnlijk, aangenomen dat de Schmutzdecke voor extra zeefwerking kan zorgen. Voor alle micro-organismen voorspelt het model een afname van de verwijdering door langzame zandfiltratie als de filtratiesnelheid toeneemt. Volgens de voorspellingen worden de micro-organismen het minst verwijderd bij Weesperkarspel en De Punt. Bij deze locaties bedraagt  $d_c$  0,5 mm, derhalve minder zeefwerking en hechting en is ook de waarde van de sticking efficiency  $\alpha$  het laagst, derhalve minder hechting. De waarde van  $\alpha$  voor Weesperkarspel volgde uit het fitten van experimentele gegevens van het proefinstallatieonderzoek (Schijven et al., 2008). Voor De Punt werden dezelfde lage  $\alpha$ -waarden verondersteld. Het is mogelijk dat dit zelfs nog is overschat. Praktijkgegevens met betrekking tot *E. coli* gaven slechts een verwijdering van 1,8 <sup>10</sup>log.

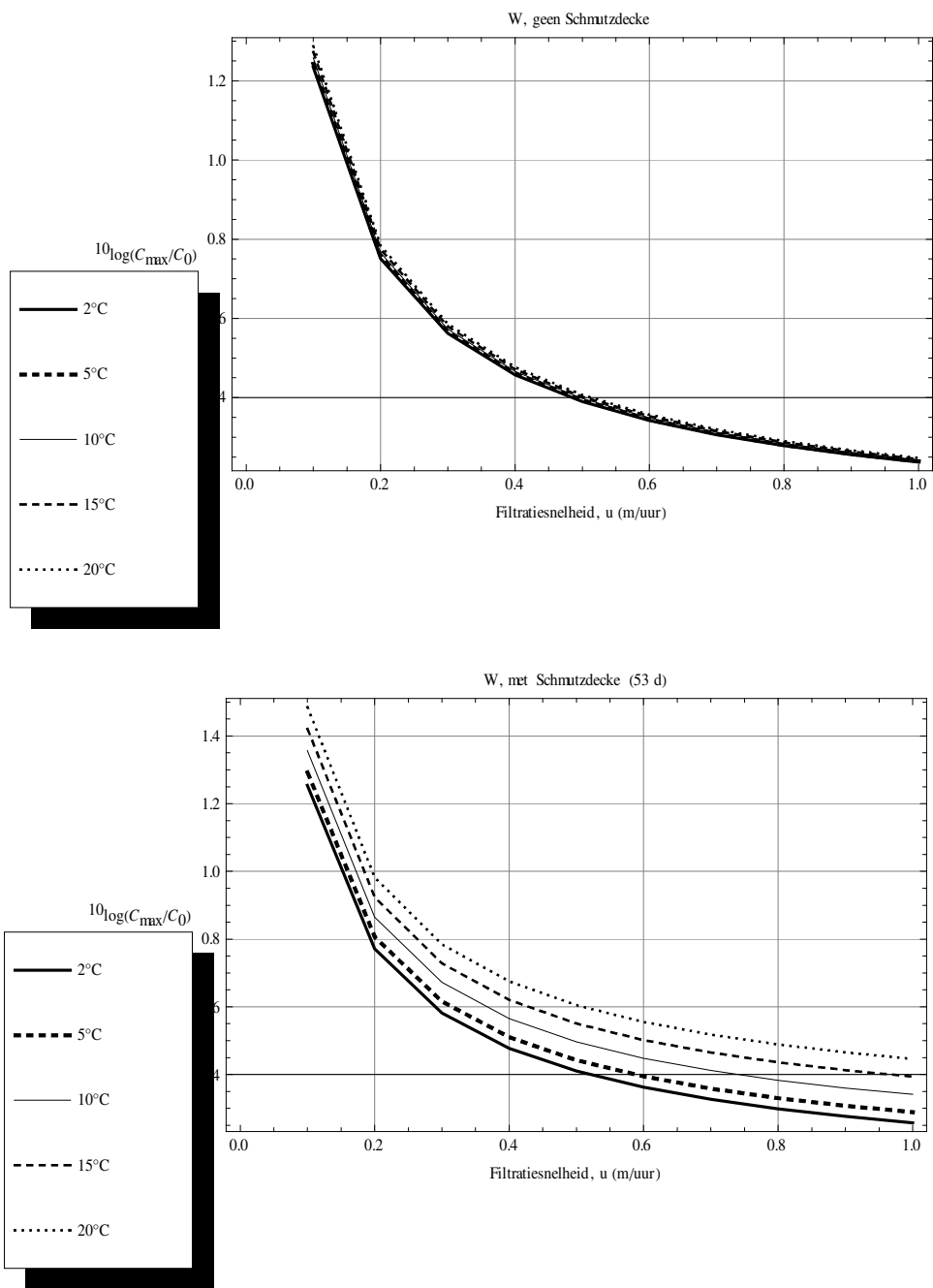
**Tabel 3 Modelparameters voor voorspelling verwijdering door langzame zandfiltratie**

	Weesperkarspel	Leiduin	DZH	De Punt
$\alpha$ MS2	0,0094	0,0094	0,0534	0,0094
$\alpha$ <i>E. coli</i>	0,144	0,144	0,793	0,144
$\alpha$ <i>Cryptosporidium</i>	0,01 en 0,2	0,01 en 0,2	0,05 en 1	0,05 en 1
$z$ (m)	1,1	1,1	1,1	1
$d_c$ (mm)	0,50	0,29	0,53	0,50

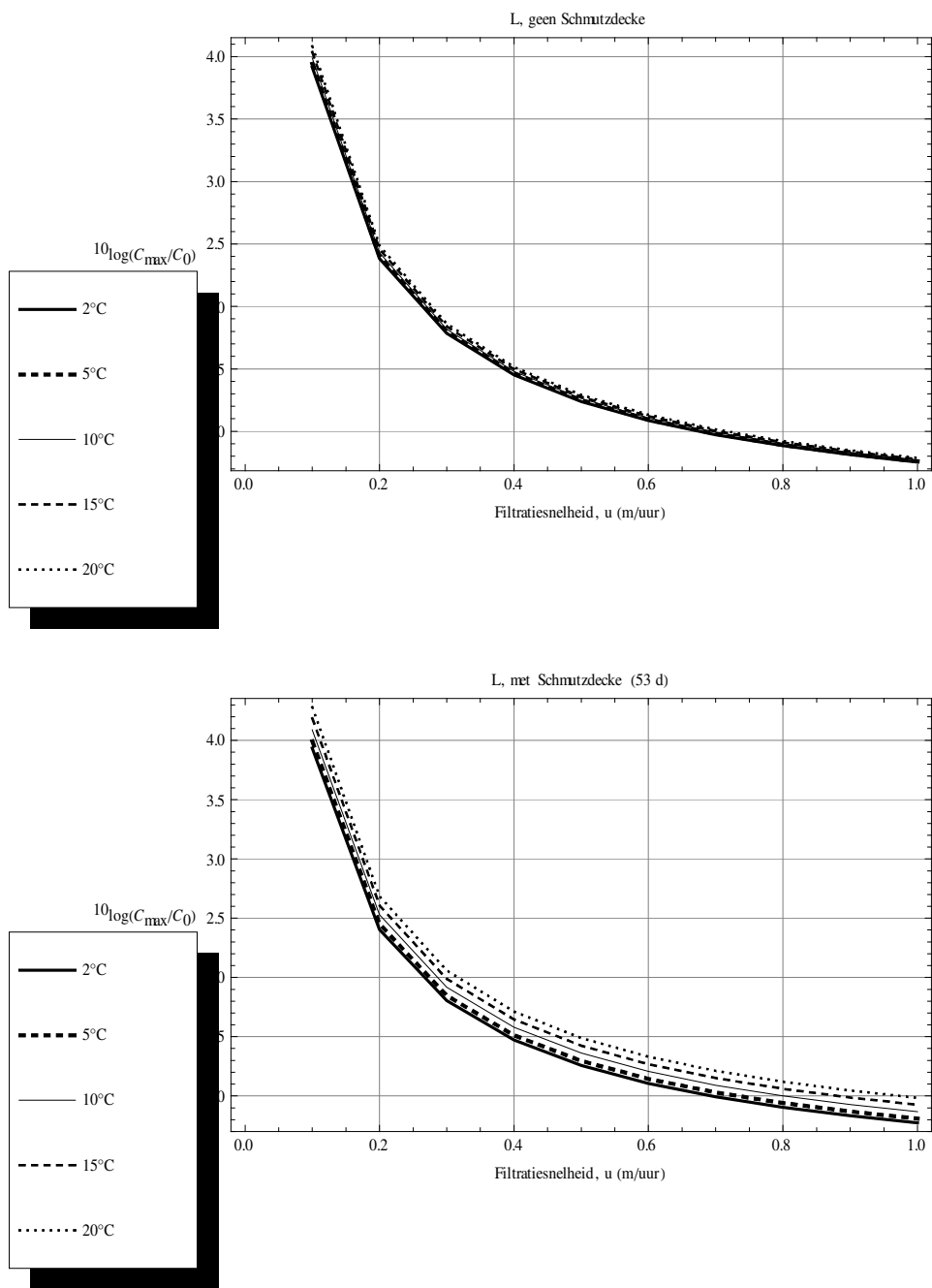
$d_p$  MS2 = 26 nm;  $d_p$  *E. coli* = 1  $\mu$ m;  $d_p$  *Cryptosporidium* = 5  $\mu$ m;

$\mu_{\text{C} \times \text{SD}}$  MS2 =  $1,95 \times 10^{-4} \text{C}^{-1} \text{dag}^{-1}$ ;  $R_{\text{SD}}$  *E. coli* = 1,98 <sup>10</sup>log;

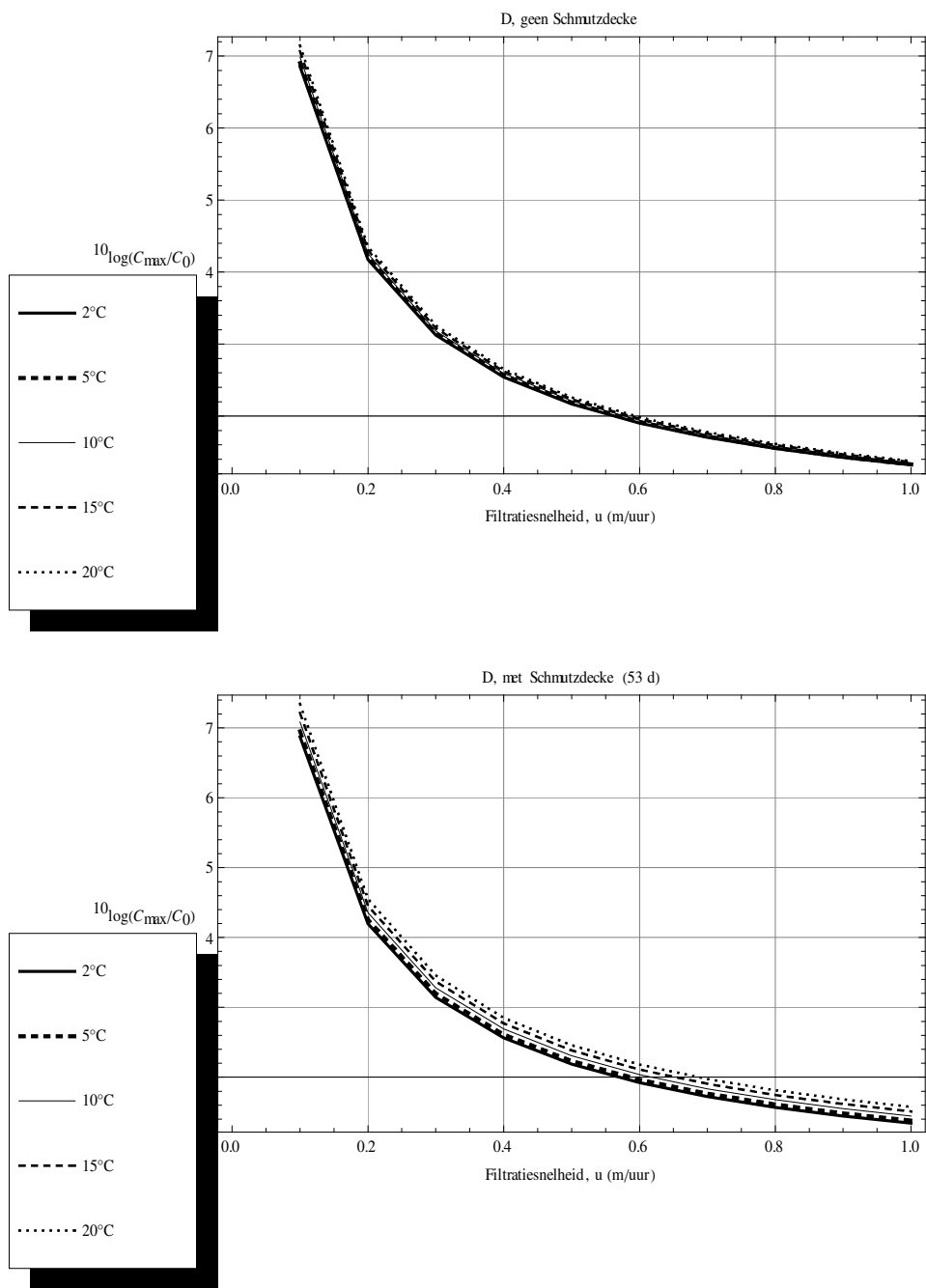
$u$  = 10 – 100 cm/uur en temperatuur is 2-20 °C.



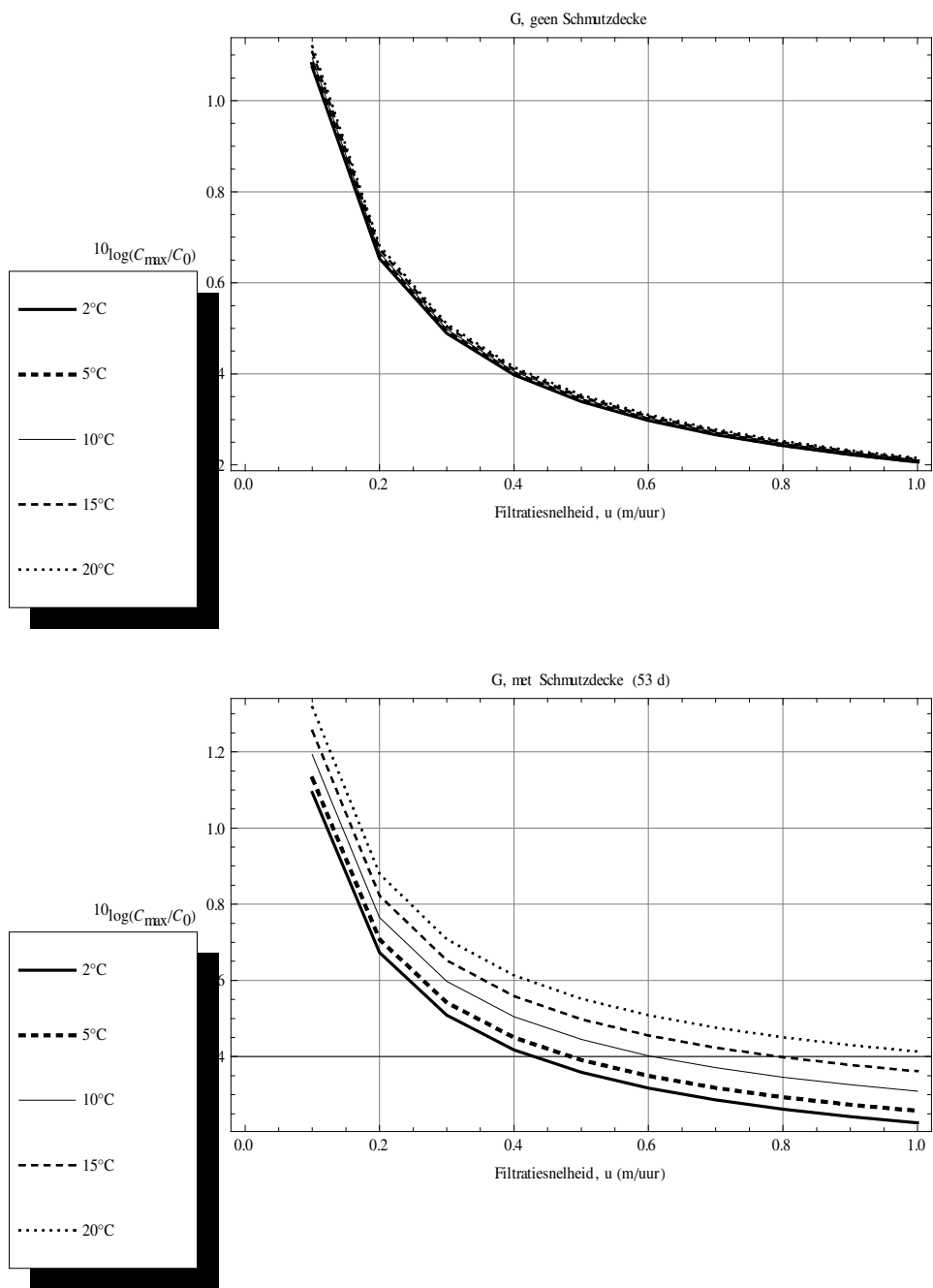
Figuur 15 Verwijdering van MS2, Weesperkarspel (-/+ = aanwezigheid Schmutzdecke).



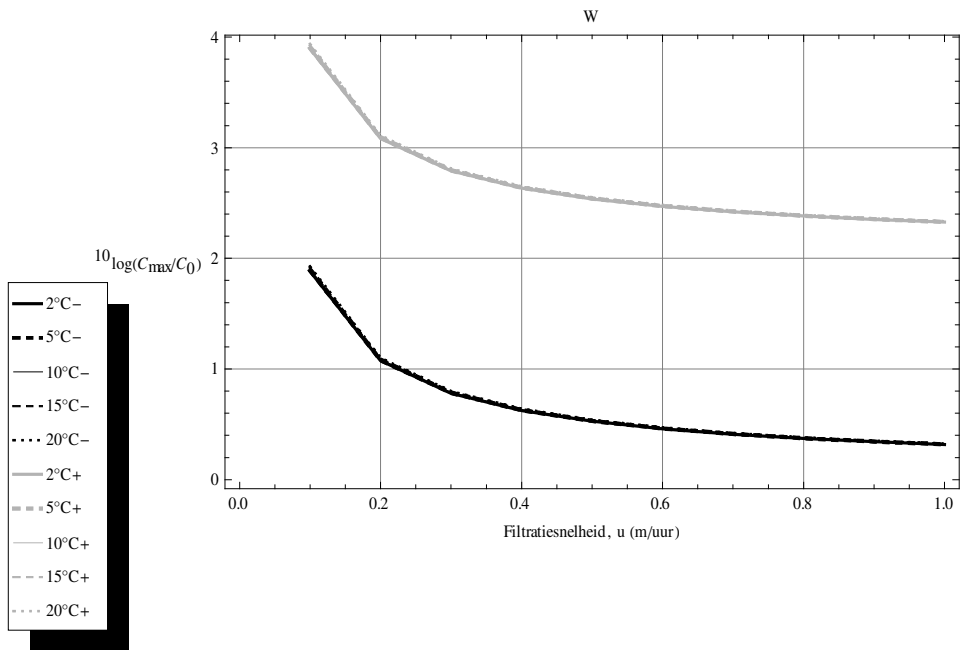
**Figuur 16** Verwijdering van MS2, Leiduin.



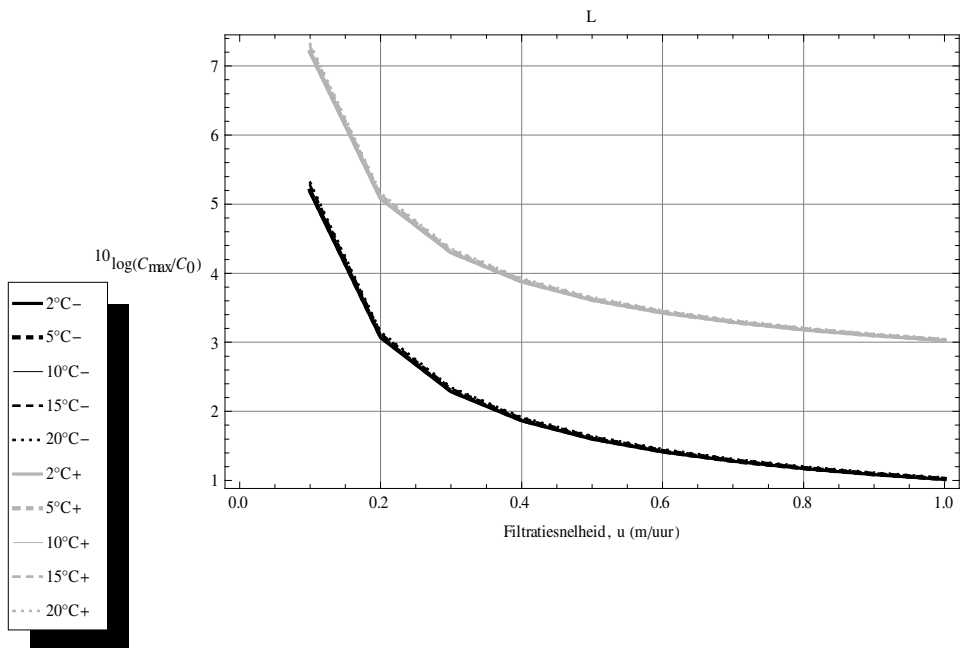
Figuur 17 Verwijdering van MS2, DZH.



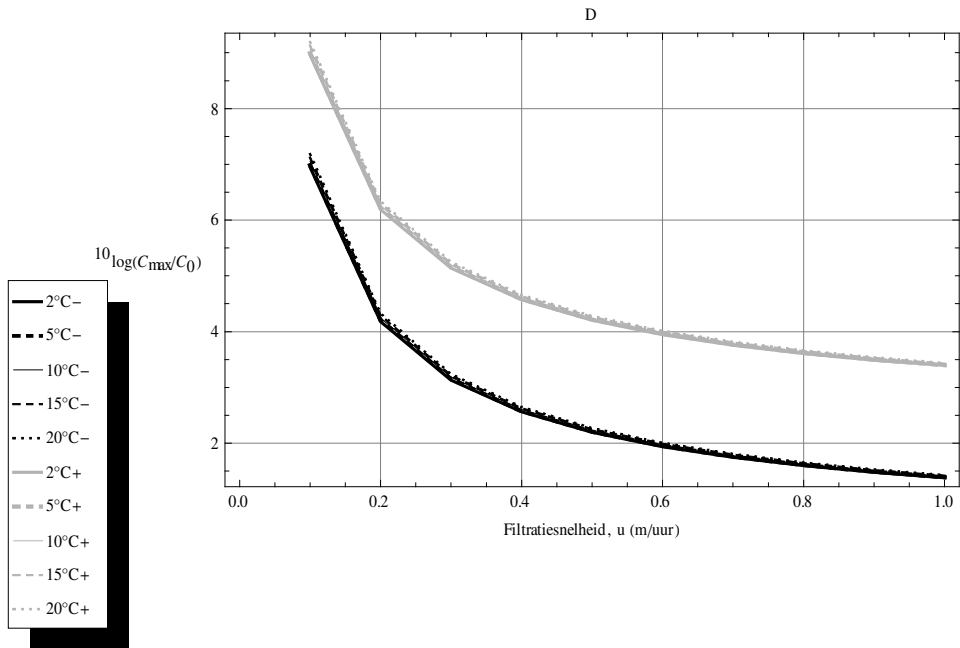
**Figuur 18** Verwijdering van MS2, De Punt.



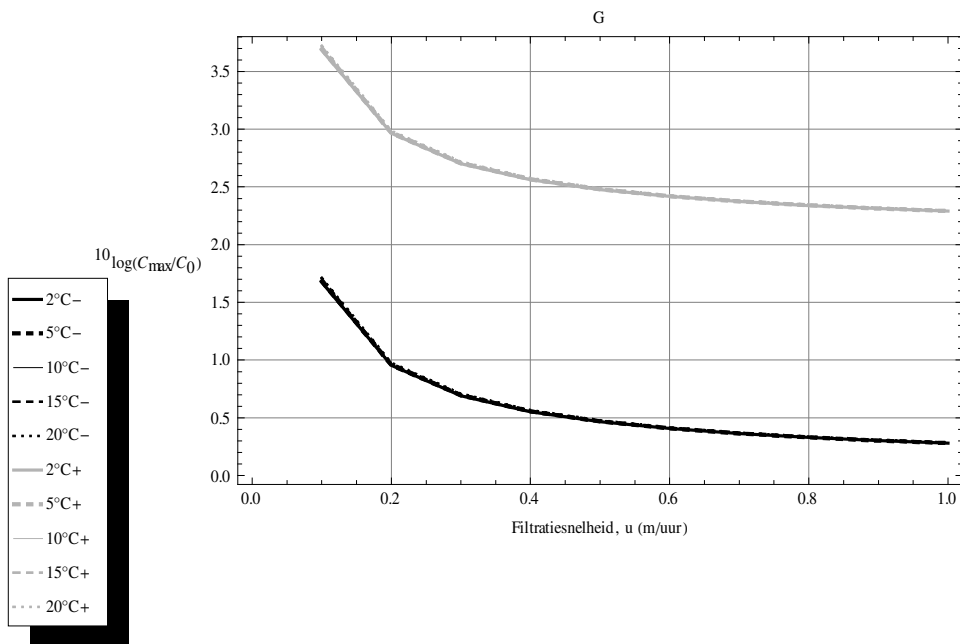
Figuur 19 Verwijdering van *E. coli*, Weesperkarspel.



Figuur 20 Verwijdering van *E. coli*, Leiduin.

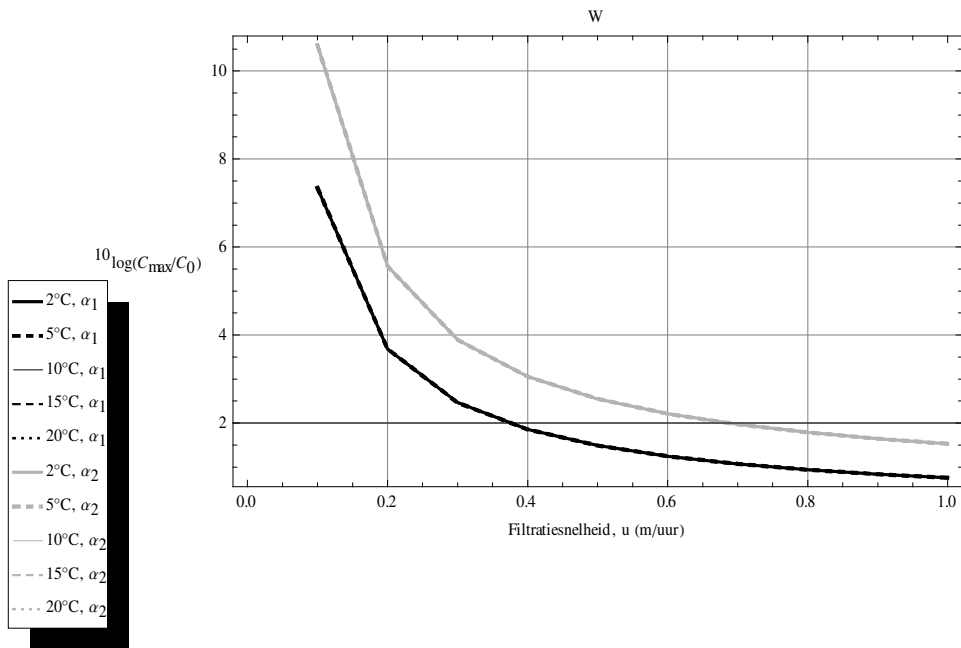


**Figuur 21** Verwijdering van *E. coli*, DZH.

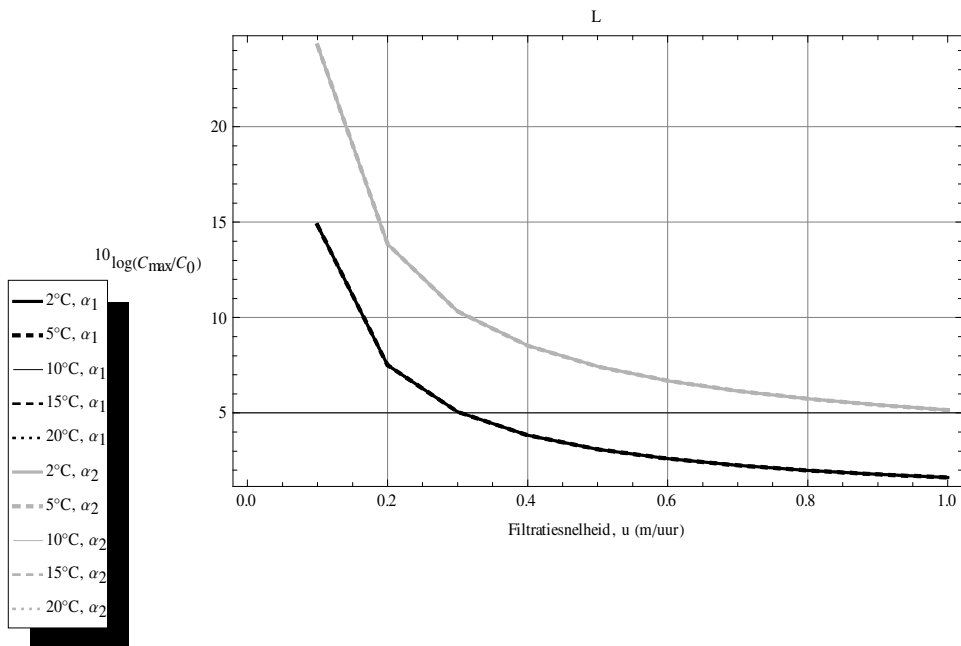


**Figuur 22** Verwijdering van *E. coli*, De Punt.

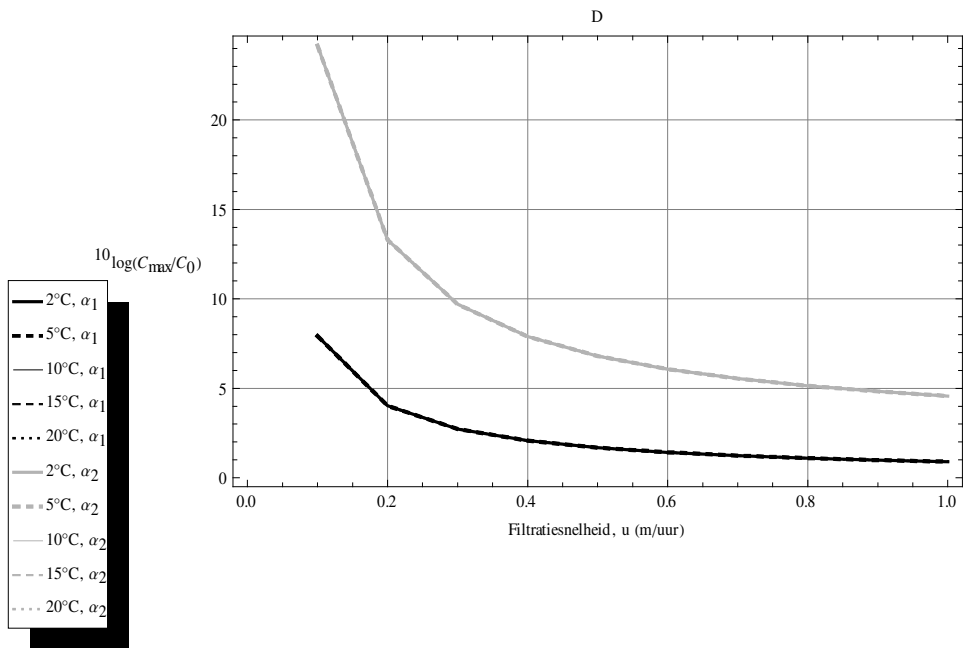




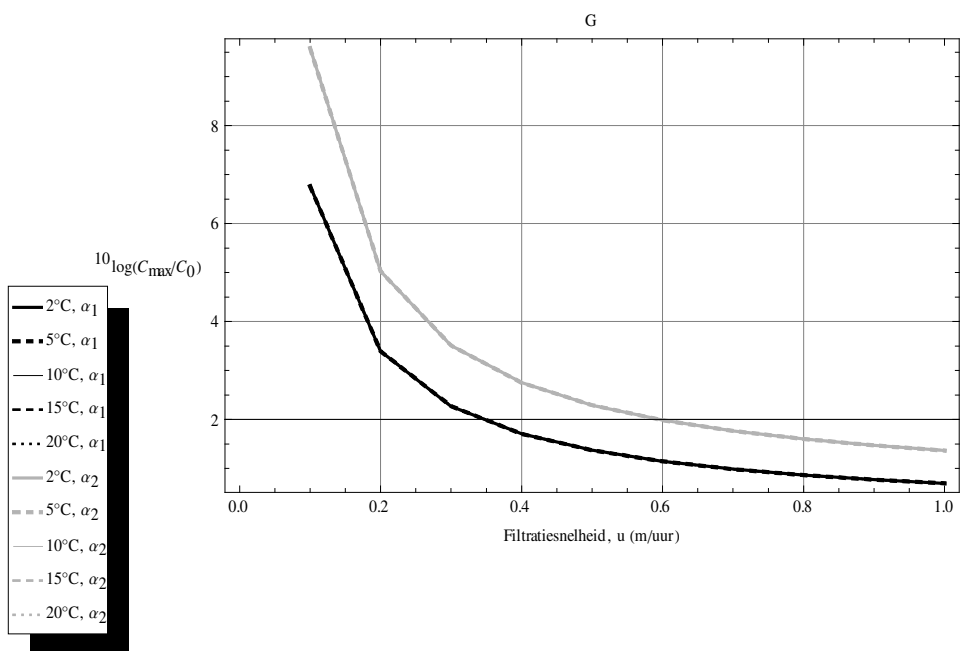
Figuur 23 Verwijdering van *Cryptosporidium*, Weesperkarspel.  $\alpha_1 = 0,01$  en  $\alpha_2 = 0,2$ .



Figuur 24 Verwijdering van *Cryptosporidium*, Leiduin, temperatuurgrafieken vallen samen.  $\alpha_1 = 0,01$  en  $\alpha_2 = 0,2$ .



Figuur 25 Verwijdering van *Cryptosporidium*, DZH.  $\alpha_1 = 0,05$  en  $\alpha_2 = 1$ .



Figuur 26 Verwijdering van *Cryptosporidium*, De Punt.  $\alpha_1 = 0,01$  en  $\alpha_2 = 0,2$ .

## 4 Discussie

In dit rapport werden meetgegevens over verwijdering van bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 door langzame zandfiltratie op proefinstallatieschaal gebruikt om een model te ontwikkelen om verwijdering van micro-organismen onder verschillende bedrijfscondities (filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte) te voorspellen. De processen die de verwijdering bepalen, zijn hechting en zeefwerking, waarbij vooral hechting belangrijk is. Ook het effect van de Schmutzdecke werd geëvalueerd. Voor MS2 bleek een model, wat naast hechting extra verwijdering door de Schmutzdecke meeneemt op basis van de leeftijd van de Schmutzdecke en de watertemperatuur, de beste beschrijving van de verwijdering te geven. Voor *E. coli* was er geen significant effect van de temperatuur en neemt de verwijdering met  $2^{10}$  log toe door de aanwezigheid van een Schmutzdecke. De betere verwijdering van bacteriofaag MS2 bij hogere temperatuur in combinatie met de aanwezigheid van de Schmutzdecke wijst op predatie. Predatie van *E. coli* vindt waarschijnlijk evengoed plaats maar is niet zichtbaar, mogelijk vanwege het effect van zeefwerking in de Schmutzdecke.

Beide vergelijkingen werden op zowel de verwijderingsgegevens van bacteriofaag MS2 als van *E. coli* WR1 getoetst met behulp van twee loglikelihoodfuncties (vergelijkingen 10 en 11).

De mogelijkheid dat een deel van de MS2-bacteriofagen en een deel van de *E. Coli*-bacteriecellen sneller en een deel langzamer hechten, werd daarmee ook getoetst, maar de likelihood van dat model was hetzelfde als voor één constante waarde voor  $\alpha$ . Dit betekent dat de gegevens geen onderscheid in populaties met verschillende sticking efficiëncies mogelijk maken. Daartoe zijn gegevens van de concentraties als functie van de diepte in het filter nodig.

Afgezien van het effect van de Schmutzdecke vindt volgens het model verwijdering van zowel *E. coli* als van bacteriofaag MS2 voornamelijk door hechting plaats. Om die reden kan worden verwacht dat effecten van filtratiesnelheid en korrelgrootte voor ten minste het grootste deel worden verklaard door de daaraan gerelateerde veranderingen in hechting.

De sticking efficiency van een micro-organisme en zandfilter dient locatiespecifiek te worden vastgesteld. Het model kan worden uitgebreid met een sticking efficiency als functie van pH, ionsterkte, ionsamenstelling, organischestofgehalte op basis van literatuur, de voorgestelde experimenten met langzame zandfiltratie op proefinstallatieschaal (zie volgend hoofdstuk) en kolomexperimenten.

DeLoyde (2007) onderzocht de verwijdering van bacteriofaag MS2 en van oöcysten van *Cryptosporidium* in een proefopstelling voor langzame zandfiltratie bij verschillende temperaturen, verschillende leeftijden van de Schmutzdecken en verschillende filtratiesnelheden. De resultaten van dat onderzoek zijn samengevat in Tabellen 4 en 5. DeLoyde (2007) rapporteerde dat de filtratiesnelheid een marginaal effect had op de verwijdering van *Cryptosporidium*. Dit is in overeenstemming met de modelberekeningen in het bereik van 0,4 – 0,8 cm/uur (zie Figuren 3 en 6). Volgens DeLoyde (2007) is de beddiepte voor de verwijdering van *Cryptosporidium* van weinig belang, terwijl de modelberekening een groot verschil laat zien. In Tabel 4 is dit het grote verschil van test 1. Bij de andere tests is er een redelijke overeenstemming tussen literatuur en modelberekening, indien de sticking efficiency van *Cryptosporidium* 0,4 bedraagt. Tabel 5 toont de verwijderingsgegevens van DeLoyde (2007) voor bacteriofaag MS2 en die volgens de modelberekeningen. Aangenomen dat de sticking efficiency voor bacteriofaag MS2 0,022 bedraagt, variëren de verschillen tussen gemeten en berekende verwijderingen  $0,1 - 0,4^{10}$  log en bedraagt de correlatiecoëfficiënt 95%. Dit is een goede overeenstemming. Toch overschat de modelberekening de meetwaarde bij de lagere temperaturen.

**Tabel 4** Vergelijking literatuurgegevens (DeLoyde, 2007) en modelberekeningen voor verwijdering van *Cryptosporidium* door langzame zandfiltratie.

Test	Beddiepte $z$ (m)	Filtratiesnelheid $u$ (m/uur)	Temperatuur °C	$-^{10}\log(C_{\max}/C_0)$	
				DeLoyde (2007)	Model $\alpha = 0,4$
1	1,5	0,40	10,8	2,9	9,6
2	0,40	0,40	18,9	2,6	3,2
3	0,40	0,80	21,8	2,6	2,1
4	0,43	0,40	23,6	>4,4	3,4
5	0,37	0,80	17,4	3,3	1,9

Korrelgrootte  $d_c = 0,35$  mm

**Tabel 5** Vergelijking literatuurgegevens (DeLoyde, 2007) en modelberekeningen voor verwijdering van bacteriofaag MS2 door langzame zandfiltratie.

Test	Beddiepte $z$ (m)	Filtratiesnelheid $u$ (m/uur)	Temperatuur °C	Leeftijd Schmutzdecke (dag)	$-^{10}\log(C_{\max}/C_0)$	
					DeLoyde (2007)	Model $\alpha = 0,022$
1	0,40	0,40	4	11	0,40	0,68
2	0,38	0,40	3	7	0,20	0,64
4	0,38	0,10	7	17	2,2	1,7
5	0,38	0,10	6	28	1,5	1,7
7a	0,38	0,10	9	35	2,2	1,8
7b	0,36	0,10	10	1	1,8	1,6
8	0,36	0,40	8	12	0,50	0,63
10	0,36	0,10	21	47	2,1	1,9
11	0,36	0,10	22	50	2,0	1,9
12	0,36	0,40	23	64	0,90	0,90
13	0,36	0,40	22	67	1,0	0,90
15	0,36	0,40	24	70	1,3	0,95

Korrelgrootte  $d_c = 0,35$  mm

## 5 Aanbevelingen

Op basis van de in dit rapport ontwikkelde modellen voor de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie onder verschillende bedrijfscondities (filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte) werden de verwijderingen van bacteriofaag MS2, *E. coli* en *Cryptosporidium* bij de vier drinkwaterbedrijven (Waternet Weesperkarspel en Leiduin, DZH Scheveningen en Waterbedrijf Groningen, De Punt) voor de voor deze relevante bedrijfscondities, met name de variatie in temperatuur en filtratiesnelheid, voorspeld.

Het doel van deze specifieke voorspellingen is om te komen tot voorstellen voor experimenteel vervolgonderzoek vanaf 2008 op proefinstallatieschaal.

Die experimenten hebben vervolgens als doelstellingen:

- De effecten van filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte te onderzoeken en de modelvoorspellingen te verifiëren.
- Verkleinen van de onzekerheden van de modelvoorspellingen en daarmee de toepasbaarheid van het model vergroten.
- De modellen zo nodig aanpassen en verder ontwikkelen.
- Koppeling van waterkwaliteitsgegevens (pH, ionsterkte, ionsamenstelling, organische stof) aan de waarden van de (locatiespecifieke) sticking efficiencies.
- Aanvullen gegevens voor risicoanalyse volgens de Inspectierichtlijn.

Tabel 6 geeft een overzicht van de voorspelde verwijderingen door langzame zandfiltratie van bacteriofaag MS2, *E. coli* en *Cryptosporidium* bij de vier drinkwaterproductielocaties onder de relevante bedrijfscondities, met name voor de variatie in temperatuur en filtratiesnelheid. De korrelgrootte van de zandfilters is per bedrijf constant. Voor verwijdering van bacteriofaag MS2 zijn de voorspellingen gedaan met een 53 en een 365 dagen oude Schmutzdecke. Kort voor het uitvoeren van een dosering op een proefinstallatie zullen de voorspellingen worden herberekend met de dan geldende leeftijd van de Schmutzdecke en de ook met de dan geldende temperatuur. De verwijdering van *Cryptosporidium* werd voorspeld op basis van een hoge en lage  $\alpha$ -waarde.

Voor alle experimenten geldt een aantal algemene activiteiten:

- De proeffilters dienen een voldoende lange inlooptijd te hebben gehad om voldoende te zijn gerijpt en een effectieve Schmutzdecke te hebben. Dit heeft zijn weerslag op de planning van de experimenten. De experimenten worden gepland in 2008 en 2009.
- Vooraf aan de dosering van micro-organismen moet een dosering van NaCl worden uitgevoerd om de filtratiesnelheid en de bijbehorende dispersiecoëfficiënt te bepalen.
- Monitoring van waterkwaliteitsgegevens (pH, ionsterkte, ionsamenstelling, organische stof) gedurende een jaar, om deze gegevens te kunnen koppelen aan de waarden van de (locatiespecifieke) sticking efficiencies en om variaties in de waterkwaliteitsgegevens te analyseren.
- De experimenten dienen tevens ter aanvulling van ontbrekende gegevens voor de wettelijk verplichte microbiologische risicoschattingen. Omdat volgens Hijnen et al. (2007) *Clostridium*-sporen geen goede surrogaat zijn voor de parasitaire protozoa bij langzame zandfiltratie, wordt voorgesteld voor alle locaties ook *Cryptosporidium* te doseren en niet *Clostridium*-sporen.

De experimenten worden op vier locaties op proefinstallaties uitgevoerd: Weesperkarspel, Leiduin, DZH, De Punt (Tabel 6). Te Weesperkarspel ligt de nadruk op het effect van temperatuur, omdat daar tijdens de winterperiode, de bedrijfstemperatuur het laagst is. Bij DZH ligt de nadruk op variatie in

filtratiesnelheid en bij De Punt op combinatie van temperatuur- en filtratiesnelheidsvariatie. Op deze wijze worden deze factoren goed gebalanceerd binnen de parameterruimte van 2 – 20 °C en 8 – 44 cm/uur filtratiesnelheid. Door vergelijking tussen deze locaties kunnen ook locatiespecifieke verschillen, met name verschillen in sticking efficiencies in relatie tot waterkwaliteitsgegevens worden geëvalueerd. Dit kan de vertaalbaarheid tussen bedrijven ten goede komen en tot verdere toepasbaarheid van het model leiden.

De locaties Weesperkarspel, DZH en De Punt hebben gemeen dat de korrelgrootte ongeveer 0,5 mm bedraagt. Op de locatie Leiduin is het zand fijner, namelijk 0,25 mm. De experimenten te Leiduin dienen derhalve tot aanvulling van de gegevens voor fijner zand. Bovendien is het voorstel om daar een groter bereik van de filtratiesnelheid te onderzoeken. Bij fijner zand is naar verwachting het effect van variatie in filtratiesnelheid groter.

De planning en volgorde van de experimenten zijn afhankelijk van de benodigde inlooptijden van de proeffilters, van de heersende (of mogelijk beheerste) temperatuur. Vanzelfsprekend kunnen de bevindingen van een experiment bepalend zijn voor aanpassingen van daaropvolgende experimenten (op andere locaties). De gekozen waarden voor de filtratiesnelheden zijn vooral locatiespecifieke keuzes.

Op grond van Tabel 6 kunnen we aldus de volgende experimenten voorstellen:

#### **Experiment W1 te Weesperkarspel**

Doel: verwijdering vaststellen bij de laagste bedrijfstemperatuur.

Uitvoering: dosering van MS2, *E. coli* WR1, *Campylobacter jejuni* bij een lage temperatuur van 2-5 °C. Dit is een herhaling van het experiment bij 7,5 °C in 2005.

Resultaat: verwijderingsgegevens voor risicoschatting onder worstcaseconditie voor temperatuur.

#### **Experiment W2 te Weesperkarspel**

Doel: effect van temperatuur op verwijdering. Vooral voor bacteriofaag MS2 is naar verwachting het effect sterk, en minder voor *E. coli* en *Cryptosporidium*.

Uitvoering: in aanvulling op de gegevens van experiment W1, herhaling van experiment W1, maar dan bij een temperatuur van 20 °C.

Resultaat: effect temperatuur op verwijdering van bacteriofaag MS2, *E. coli* en *Cryptosporidium*.

#### **Experiment D1 te DZH**

Doel: effect filtratiesnelheid en locatiespecifieke sticking efficiency. Tevens: In 2005 werd verwijdering door DZH-zand te Leiduin met water van Leiduin onderzocht. Echter de sticking efficiency is een locatiespecifieke waarde en is afhankelijk van de waterkwaliteit. Het water van DZH heeft een hogere pH waarde dan dat van Waternet te Leiduin. Bij hogere pH is de sticking efficiency kleiner.

Uitvoering: als experiment W1 bij 10 °C en variatie van de filtratiesnelheid van 32 naar 44 cm/uur.

Resultaat: effect filtratiesnelheid. Effect waterkwaliteit (vergelijking met experiment met DZH-zand te Leiduin, vergelijking met W1, W2, P1).

#### **Experiment P1 te De Punt**

Doel: effect temperatuur en effect filtratiesnelheid voor deze locatie.

Uitvoering: zie experiment D1. Experiment bij 2 °C en drie filtratiesnelheden, namelijk achtereenvolgens 8, 15 en 20 cm/uur.

Resultaat: vaststelling temperatuur- en filtratiesnelheidseffect (in combinatie met P2 en P3). Keuze beste filtratiesnelheid. Locatiespecifieke gegevens.

**Experimenten P2 en P3 te De Punt**

Doel: effect temperatuur en effect filtratiesnelheid voor deze locatie.

Uitvoering: zie experiment P1. Experiment P2 bij 10 °C en drie filtratiesnelheden en experiment P3 bij 10 °C en drie filtratiesnelheden.

Resultaat: Zie P1.

**Experiment L1 te Leiduin**

Doel: effect filtratiesnelheid voor deze locatie met fijner zand dan de andere locaties.

Uitvoering: zie experiment D1. Experiment bij 10 °C en drie filtratiesnelheden, namelijk achtereenvolgens 10, 26 en 70 cm/uur.

Resultaat: filtratiesnelheidseffect en rol korrelgrootte (in combinatie met bovenstaande experimenten).

**Tabel 6 Voorspelde verwijderingen van micro-organismen onder verschillende bedrijfscondities.**

	<i>u</i> cm/u	°C	<b>Bacteriofaag MS2</b>			<b><i>E. coli</i></b>		<b><i>Cryptosporidium</i></b>	
			$\alpha$	<i>a</i> <sub>SD</sub> dagen	$-^{10}\log(C/C_0)$	$\alpha$	$-^{10}\log(C/C_0)$	$\alpha$	$-^{10}\log(C/C_0)$
<u>Weesperkarspel</u>	35	2	0,0112	53	0,59	0,178	2,8	0,01	2,1
				365	0,71			0,2	3,3
<u><i>d<sub>c</sub></i> = 0,5 mm</u>	35	5	0,0112	53	0,63	0,178	2,8	0,01	2,1
				365	0,93			0,2	3,3
<u><i>z</i> = 1,1 m</u>	35	20	0,0112	53	0,80	0,178	2,8	0,01	2,1
				365	2,0			0,2	3,3
	45	2	0,0112	53	0,59	0,178	2,6	0,01	1,8
				365	0,71			0,2	3,3
	45	5	0,0112	53	0,63	0,178	2,6	0,01	1,8
				365	0,93			0,2	3,3
	45	20	0,0112	53	0,80	0,178	2,6	0,01	1,8
				365	2,0			0,2	3,3
<u>Leiduin</u>	10	10	0,0112	53	4,0	0,178	7,1	0,01	13
				365	4,6			0,2	21
<u><i>d<sub>c</sub></i> = 0,29</u>	26	10	0,0112	53	2,1	0,178	4,5	0,01	5,2
				365	2,7			0,2	9,8
<u><i>z</i> = 1,1m</u>	70	10	0,0112	53	1,1	0,178	3,3	0,01	2,0
				365	1,7			0,2	5,2
<u>DZH</u>	32	10	0,0533	53	3,1	0,799	5,0	0,05	2,6
				365	3,7			1	9,3
<u><i>d<sub>c</sub></i> = 0,53 mm</u>	35	10	0,0533	53	2,9	0,799	4,9	0,05	2,4
				365	3,6			1	8,7
<u><i>z</i> = 1,24 m</u>	38	10	0,0533	53	2,8	0,799	4,7	0,05	2,2
				365	3,4			1	8,2
	41	10	0,0533	53	2,6	0,799	4,6	0,05	2,0
				365	3,3			1	7,8
	44	10	0,0533	53	2,5	0,799	4,4	0,05	1,9
				365	3,1			1	7,4
<u>De Punt</u>	8	2	0,0112	53	1,5	0,178	4,3	0,01	8,5
				365	1,6			0,2	12
<u><i>d<sub>c</sub></i> = 0,5 mm</u>	15	2	0,0112	53	0,98	0,178	3,4	0,01	4,5
				365	1,1			0,2	6,5
<u><i>z</i> = 1 m</u>	20	2	0,0112	53	0,80	0,178	3,1	0,01	3,4
				365	0,92			0,2	5,0
	8	10	0,0112	53	1,6	0,178	4,3	0,01	8,5
				365	2,2			0,2	12
	15	10	0,0112	53	1,1	0,178	3,4	0,01	4,5
				365	1,7			0,2	6,5
	20	10	0,0112	53	0,90	0,178	3,1	0,01	3,4
				365	1,5			0,2	5,0
	8	20	0,0112	53	1,8	0,178	4,3	0,01	8,5
				365	3,0			0,2	12
	15	20	0,0112	53	1,2	0,178	3,4	0,01	4,5
				365	2,4			12	6,6
	20	20	0,0112	53	1,0	0,178	3,1	0,01	3,4
				365	2,2			12	5,0



## Literatuur

- Anonymous, Inspectierichtlijn – Analyse microbiologische veiligheid drinkwater, VROM-Inspectie, 2005, Artikelcode 5318.
- Amy, G., Carlson K, Collins, MR, Drewes J, S. Gruenheid S., Jekel M. Intergrated comparison of biofiltration in engineered versus natural systems.. In: Recent progress in slow sand and alternative biofiltration processes. Eds.: Gimbel R, Graham JD, Collins MR. I.W.A., Mülheim, 2006, 1, p.p 3-11.
- Bradford SA, Bettahar M, Simunek J, Genuchten M Th van. Straining and attachment of colloids in physically heterogeneous porous media. *Vadose Zone Journal*, 2004, 3, 384-394.
- Bradford, SA, Simunek J, Bettahar M, Van Genuchten MT, Yates SR. Modeling colloid attachment, straining and exclusion in saturated porous media. *Environ Sci Technol*, 2003, 37:, p.2242-2250.
- Bradford, SA, Simunek J., Walker SL. Transport and straining of *E. coli* O157:H7 in saturated porous media. *Water Resources Research*, 2006, 42, W12S12, doi:10.1029/2005WR4805.
- DeLoyde, JL.), Removal of MS2 bacteriophage, *Cryptosporidium*, *Giardia* and turbidity by pilot-scale multistage slow sand filtration. 2007, Proefschrift University of Waterloo, Waterloo, Ontario Canada.
- Dullemont, Y, Visser A, Schijven J, Hijnen W, Eliminatiecapaciteit van langzame zandfiltratie voor micro-organismen bepaald met doseerproeven, H2O, 2004, 13, 22-24.
- Dullemont YJ, Schijven JF, Hijnen WAM, Colin M, Magic-Knezev A, Oorthuizen. WA, Removal of microorganisms by slow sand filtration, Recent progress in slow sand and biofiltration processes., eds. Gimbel R, Graham NJD, Collins MR, IWA, Mülheim, 2006, chapter 2, 12-20.
- Dullemont, Y., A. Visser, J. Schijven en W. Hijnen .Eliminatiecapaciteit van langzame zandfiltratie voor micro-organismen bepaald met doseerproeven, H2O, 2004,13: p.22-24.
- Foppen JW, Mporokoso A, Schijven JF. Determining straining of *Escherichia coli* from breakthrough curves. *J Contam Hydrol*. 2005,76(3-4):191-210.
- Foppen JW, van Herwerden M, Schijven J. Measuring and modelling straining of *Escherichia coli* in saturated porous media. *J Contam Hydrol*. 2007, 93(1-4), 236-254.
- Foppen JW, Schijven JF. Transport of *E. coli* in columns of geochemically heterogeneous sediment. *Water Res*, 2005, 39(13),3082-3088.
- Hijnen et al. H2O, 2006 BTO workshop.
- Hijnen, WAM, Dullemont YJD, Schijven JF, Hanzens-Brouwer AJ, Rosielle M en, Medema G. Removal and fate of *Cryptosporidium parvum*, *Clostridium perfringens* and small-sized centric diatoms (*Stephanodiscus hantzschii*) in slow sand filters. *Water Res*, 2007, 41, 2151-2161.
- Hijnen, WAM en JF Schijven. De eliminatiecapaciteit van langzame zandfiltratie voor micro-organismen, Proefinstallatie en laboratoriumonderzoek. Kiwa/RIVM-rapport BTO 2003, 2002.133.
- Hijnen, WAM, Schijven JF, Bonne P, Visser A, Medema GJ. Elimination of viruses, bacteria and protozoan oocysts by slow sand filtration *Water Sci Technol*, 2004, 50 (1): p., 147-54.
- Hogg and Craig, (1978).
- Johnson PR, Elimelech M. Dynamics of Colloid Deposition in Porous Media: Blocking Based on Random Sequential Adsorption, *Langmuir* 1995, 11, 801-812.
- Pedley S, Yates MV, Schijven JF, West J, Howard G en, Barrett M. (2006) Pathogens: Health relevance, transport and attenuation., Chapter 3, Groundwater Monograph, WHO, Ed. Oliver O. Schmoll, 2006. Hfdst.3..
- Redman JA, Grant SB, Olson TM, Estes MK. Pathogen filtration, heterogeneity, and the potable reuse of wastewater. *Environ Sci Technol*, 2001, 35(9),1798-1805.
- Ryan, J N and Elimelech, M. 1996. Colloid mobilization and transport in groundwater. *Colloids and Surfaces. A: Physicochemical and Engineering Aspects* 107:, p.1-56.

- Schijven JF , Colin M, Dullemont Y, Hijnen WAM, Magic-Knezev A, Oorthuizen W, Verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie, RIVM- rapport 330204001, 2008.
- Schijven JF, Hassanizadeh SM.) Removal of viruses by soil passage: overview of modeling, processes and parameters, Crit Rev Environ Sci Tech 2000, 31:, p.49-125.
- Teunis PFM, Heijden OG van der, Giessen JWB van der, Havelaar AH. The dose-response relation in human volunteers for gastro-intestinal pathogens. RIVM Report 284550002, 1996.
- Tufenkji, N en Elimelech, M. (2004) "Deviation from the Classical Colloid Filtration Theory in the Presence of Repulsive DLVO Interactions," Langmuir, 20:, p.10818-10828.
- Tufenkji N, Dixon, DR, Considine RF, Drummond CJ. Multi-Scale Cryptosporidium/Sand Interactions in Water Treatment, Water Res, 2006, 40, 3315-3331.
- VROM, Inspectierichtlijn (2005) Analyse microbiologische veiligheid drinkwater, VROM-Inspectie, Artikelcode 5318.
- Yao, KM , Habibian, MT and O'Melia, CR (1971). Water and waste water filtration: concepts and applications. Environ Sci Technol 5,1105-1112.

**RIVM**

Rijksinstituut  
voor Volksgezondheid  
en Milieu

Postbus 1  
3720 BA Bilthoven  
[www.rivm.nl](http://www.rivm.nl)