

rivm

Rapport 330204001/2008

J.F. Schijven et al.

Verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie

RIVM rapport 330204001/2008

**Verwijdering van micro-organismen door
langzame zandfiltratie**

J.F. Schijven, M.Colin¹, Y. Dullemon¹, W.A.M.
Hijnen², A. Magic-Knezev³, W. Oorthuizen⁴, S.A.
Rutjes, A.M. de Roda Husman

¹Waternet

² Kiwa Research

³Het Waterlaboratorium

⁴Duinwaterbedrijf Zuid-Holland

Contactpersoon: Jack Schijven

EMI/LZO

Jack.schijven@rivm.nl

Dit onderzoek werd verricht in opdracht en ten laste van Waternet, Duinwaterbedrijf Zuid-Holland, BTO en de VROM-Inspectie, in het kader van project 330204, Waterkwaliteit.

Abstract

Removal of microorganisms by slow sand filtration

The removal of waterborne microorganisms by slow sand filtration, regularly applied in Dutch drinking water production as one of the last treatments in drinking water production, was determined. About one per hundred viruses, one per ten thousand bacteria and less than one per hundred thousand parasitic protozoa pass the sand filters. These estimates for removal of pathogens by slow sand filtration constitute some of the critical parameters for the production of safe drinking water as determined by quantitative microbiological risk assessment required by Dutch law.

By slow sand filtration, microorganisms are retained because they are not able to pass pores between the sand grains (straining), and by attachment to sand grains. Removal of viruses and bacteria was investigated in pilot plants and that of protozoa in the laboratory with small sand columns. Bacteria and protozoa (1 – 6 μm) are strained more effectively than the much smaller viruses (0.02 – 0.2 μm). The concentration of the microorganisms in the feeding water of the slow sand filters does not affect removal efficiency.

Effects of temperature and the Schmutzdecke were also studied. The Schmutzdecke is a slime layer that gradually forms on top of the sand filter. In operation the Schmutzdecke is scraped off when it clogs the filter too much. At 9 – 12 °C, scraping does not affect virus removal, but bacteria are removed a hundred times more when a Schmutzdecke is present than when it is absent. At 14 – 16 °C, all microorganisms are removed ten times more than at 9 – 12 °C. After scraping off, the efficacy of the Schmutzdecke was restored within 53 days. Finally, it was found that the sand of the two drinking water companies was almost equally effective.

Key words: slow sand filtration, Schmutzdecke, zeefwerking, bacteriophage MS2, *E. coli*, *S. faecalis*, *Clostridium perfringens* spores, *Cryptosporidium parvum* oocysts

Rapport in het kort

Verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie

Het RIVM heeft samen met Kiwa Research en de waterleidingbedrijven Duinwaterbedrijf Zuid-Holland en Waternet gemeten hoe goed ziekteverwekkende wateroverdraagbare micro-organismen worden verwijderd door langzame zandfiltratie, een veel toegepaste techniek in de drinkwaterbereiding. Ongeveer één op de honderd virussen, één op de tienduizend bacteriën en minder dan één op de honderdduizend parasitaire protozoa komt nog door de zandfilters. Dit zijn belangrijke gegevens voor de wettelijk verplichte schattingen van risico's op infectie door ziekteverwekkende micro-organismen na drinkwaterconsumptie.

Langzame zandfiltratie, één van de laatste stappen in de drinkwaterzuivering, zeeft micro-organismen uit het water. De micro-organismen blijven achter omdat ze niet door poriën tussen de zandkorrels passen (zeving) of doordat ze aan zandkorrels hechten. De verwijdering van virussen en bacteriën is onderzocht in proefinstallatiefilters, die van protozoa in het laboratorium met kleine zandkolommen. Uit het onderzoek blijkt dat voor bacteriën en protozoa zeping effectiever is dan voor de veel kleinere virussen. De concentratie van de micro-organismen in het toegevoerde water is niet van invloed.

Ook de effecten van temperatuur en Schmutzdecke zijn onderzocht. De Schmutzdecke is een slijm laag, die zich langzaam vormt op het zandfilter. Als de Schmutzdecke het zandfilter teveel verstopt, wordt deze afgeschraapt. Bij 9 – 12 °C heeft de Schmutzdecke geen effect op de verwijdering van virussen, maar bacteriën worden met Schmutzdecke honderd keer meer verwijderd dan zonder. Bij 14 – 16 °C worden alle micro-organismen ongeveer tien keer meer verwijderd dan bij 9 – 12 °C. Na afschrappen is de werking van de Schmutzdecke binnen 53 dagen hersteld.

Tenslotte wijst het onderzoek uit dat het zand van de twee onderzochte waterleidingbedrijven nagenoeg even werkzaam is.

Trefwoorden: langzame zandfiltratie, Schmutzdecke, zeefwerking, bacteriofaag MS2, *E. coli*, *S. faecalis*, *Clostridium perfringens* sporen, *Cryptosporidium parvum* oöcysten

Inhoud

Samenvatting 5

1 Inleiding 6

2 Proefinstallaties 8

- 2.1 *Proefinstallaties Leiduin* 8
- 2.2 *Proefinstallatie Weesperkarspel* 8

3 Methoden 9

- 3.1 *Micro-organismen en enumeratie* 9
- 3.2 *Dosering van proefinstallatiefilters* 11
- 3.3 *Kolomexperimenten* 11
- 3.4 *Diepteprofielen* 13
- 3.5 *Inactivatie in het water* 14
- 3.6 *Model* 14
- 3.7 *Zetapotentialmetingen aan zand en micro-organismen* 15
- 3.8 *Biologische activiteit filtermateriaal* 17

4 Resultaten 18

- 4.1 *Zoutdoorbraakexperimenten* 18
- 4.2 *Inactivatie/afsterving in de waterfase* 18
- 4.3 *Beschrijving en fitten van de doorbraakcurves* 18
- 4.4 *Diepteprofielen* 26
- 4.5 *Zetapotentialmetingen aan zand en micro-organismen* 29
- 4.6 *Biologische activiteit filtermateriaal* 31

5 Discussie en conclusies 33

- 5.1 *Verwijdering* 33
- 5.2 *Watertemperatuur* 33
- 5.3 *Schmutzdecke* 34
- 5.4 *Doseerconcentratie* 34
- 5.5 *Vergelijking DZH en Waternet* 34
- 5.6 *Kwaliteit influent* 35
- 5.7 *Verwijderingsprocessen en modellering* 35

6 Aanbevelingen 37

Dankwoord 38

Literatuur 39

Samenvatting

In dit onderzoek werd verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie onderzocht in proefinstallatiefilters en in kolomexperimenten. Langzame zandfiltratie wordt in Nederland veelvuldig toegepast door drinkwaterbedrijven in de zuivering van oppervlaktewater en dan meestal als laatste zuiveringsstap.

Bacteriofaag MS2 als conservatief modelvirus bleek het minst te worden verwijderd door de langzame zandfiltratie, ook in de aanwezigheid van een Schmutzdecke en bij lage watertemperatuur ($< 10\text{ }^{\circ}\text{C}$), namelijk $1,7 - 2,2\text{ }^{10}\log$. Daarom zijn virussen de meest kritieke pathogene micro-organismen die de verwijdering door langzame zandfilters bepalen. Bij $7\text{ }^{\circ}\text{C}$ was de verwijdering van bacteriofaag MS2 slechts $0,57\text{ }^{10}\log$.

In de aanwezigheid van een Schmutzdecke was verwijdering van *E. coli* ongeveer $2\text{ }^{10}\log$ hoger dan die van bacteriofaag MS2. *E. coli* bleek een goed conservatief modelorganisme voor *Campylobacter* te zijn. Bij ongeveer $10\text{ }^{\circ}\text{C}$ in aanwezigheid van een Schmutzdecke kan tenminste $4\text{ }^{10}\log$ -verwijdering van bacteriën worden behaald.

In kolomexperimenten werden *Cryptosporidium* oöcysten bijna geheel verwijderd (tenminste $5,3 - 6,5\text{ }^{10}\log$). In langzame zandfilters op praktijkschaal met een Schmutzdecke zal de verwijdering van oöcysten nog veel effectiever zijn.

Bij $9 - 12\text{ }^{\circ}\text{C}$ is de verwijdering van bacteriofaag MS2 $1,7 - 2,2\text{ }^{10}\log$ en bij $16\text{ }^{\circ}\text{C}$ neemt deze toe tot $3,5 - 3,9\text{ }^{10}\log$. Over dit temperatuurbereik neemt voor *E. coli* WR1 de verwijdering toe van $3,9 - 4,2\text{ }^{10}\log$ naar $5,6\text{ }^{10}\log$ in aanwezigheid van de Schmutzdecke. Door zeefwerking geeft de Schmutzdecke vooral voor bacteriën (en grotere micro-organismen) ongeveer $2\text{ }^{10}\log$ extra verwijdering, maar voor virussen is dit effect beperkt.

In de experimenten bleek dat na 53 dagen de Schmutzdecke weer hersteld was.

De diepteprofielen uit de kolomproeven wezen aan dat waarschijnlijk door zeefwerking virussen voor $30 - 45\%$ werden tegengehouden, bacteriesporen voor $51 - 59\%$, bacteriën voor $72 - 90\%$ en oöcysten voor $98 - 99\%$. Naar verwachting speelt zeefwerking een nog veel belangrijkere rol in de Schmutzdecke.

Er werd geen significant effect van de doseerconcentratie op de verwijdering door langzame zandfiltratie gevonden.

Op proefinstallatieschaal bleek dat het zand van DZH en Waternet nagenoeg even effectief micro-organismen verwijderden.

Langzame zandfiltratie kan als een robuuste en efficiënte zuiveringsstap voor drinkwaterbereiding worden gezien. De grote verschillen in verwijdering bij variabele watertemperatuur voor met name ziekteverwekkende virussen dienen echter te worden meegewogen bij de berekening van het infectierisico, zoals vereist door het Waterleidingbesluit.

1 Inleiding

Volgens het Nederlandse Waterleidingbesluit van 2001 dienen drinkwaterbedrijven die oppervlaktewater en kwetsbaar grondwater als bron gebruiken een kwantitatieve microbiologische risicoschatting uit te voeren om aan te tonen dat ze microbiologisch veilig drinkwater produceren (Anonymous, 2001). In microbiologisch veilig drinkwater mogen concentraties van ziekteverwekkende micro-organismen niet zodanig hoog zijn, dat een infectierisico van 1 per 10.000 personen per jaar wordt bereikt of overschreden. Dergelijke concentraties in drinkwater zijn te laag om te meten, daarom is het nodig om de concentraties ziekteverwekkende micro-organismen in drinkwater en het daaraan gerelateerde infectierisico te schatten uit de concentraties ziekteverwekkende micro-organismen in het ruwe water en hun verwijdering door drinkwaterzuivering (Anonymous, 2005). Op deze wijze kunnen drinkwaterbedrijven laten zien dat ze veilig drinkwater produceren.

Als onderdeel van deze risicoschatting initieerden Waternet (Amsterdam) en Duinwaterbedrijf Zuid Holland (DZH) in samenwerking met Kiwa Research en het RIVM het onderhavige onderzoek om de verwijdering van zowel pathogene micro-organismen als van indicatororganismen door langzame zandfiltratie te evalueren. Langzame zandfiltratie wordt vaak als laatste zuiveringstap in de drinkwaterproductie toegepast. 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 onderen door een zandbed. Langzame zandfiltratie is effectief in het verwijderen van troebeling, micro-organismen en, in mindere mate, 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).

Eigenschappen van micro-organismen variëren sterk, zoals grootte, elektrische lading, vorm, enzovoorts. Virussen zijn tien tot honderd keer kleiner dan bacteriën. Parasitaire protozoa zijn weer tot tien keer groter dan bacteriën. De ziekteverwekkende micro-organismen waarvoor een risicoschatting moet worden gedaan betreffen enterovirussen, *Campylobacter*, *Cryptosporidium* en *Giardia* als zogenaamde indexpathogenen voor groepen micro-organismen met overeenkomstige eigenschappen (Anonymous, 2005). *Giardia* wordt buiten beschouwing gelaten, omdat redelijkerwijs aangenomen mag worden dat de cysten van *Giardia*, omdat ze groter zijn, nog meer verwijderd worden door langzame zandfiltratie dan oöcysten van *Cryptosporidium parvum*. Op praktijkschaal en zelfs op proefinstallatieschaal is het meestal niet mogelijk of niet toegestaan experimenteel onderzoek te verrichten met ziekteverwekkende micro-organismen en is men aangewezen op het gebruik van indicatororganismen die qua eigenschappen vergelijkbaar gedrag vertonen, maar niet ziekteverwekkend zijn en waarvan concentraties makkelijk te bepalen zijn. Deze indicatororganismen zijn bacteriofagen, *E. coli* en sulfiet reducerende clostridiumsporen. Naast bepaling van de verwijdering van indicatororganismen voor de kwantitatieve microbiologische risicoschatting, was er ook de doelstelling om de effecten van verschillende bedrijfscondities voor langzame zandfiltratie op de verwijdering van micro-organismen te onderzoeken:

- Bepalen van de effectiviteit van langzame zandfilters in het verwijderen van bacteriën en virussen bij lage watertemperatuur.
- Bepalen van de effectiviteit van langzame zandfilters in het verwijderen van *Campylobacter lari* (als model voor campylobacters) en van *E. coli* (indicatororganisme voor bacteriën).

- Bepalen van de verwijdering van bacteriofaag MS2 (indicatororganisme voor virussen) en van *E.coli* met en zonder Schmutzdecke en bepalen hoe lang het duurt totdat de Schmutzdecke hersteld is.
- De concentraties micro-organismen in het influent. Deze laatste doelstelling was inbegrepen omdat piekconcentraties van doorslaggevend belang kunnen zijn voor de risicoschatting.
- Vergelijking van zand van Waternet en Duinwaterbedrijf Zuid Holland (DZH) in kolomexperimenten om verwijdering naar de praktijkschaal voor DZH te kunnen voorspellen. Het zand van DZH (duinzand) is grover dan dat van Waternet (zilverzand).

Om de verwijdering van deze micro-organismen goed te kunnen meten werden ze in proefinstallaties van langzame zandfilters te Leiduin en Weesperkarspel gedoseerd. Deze proefinstallaties zijn parallel in gebruik met de eigenlijke langzame zandfiltratie op praktijkschaal onder identieke omstandigheden. Dit onderzoek werd deels in 2002 uitgevoerd en daarover is reeds gerapporteerd in relatie tot praktijkgegevens over verwijdering van indicatororganismen door langzame zandfiltratie (Hijnen en Schijven, 2002; Hijnen et al., 2004). In aanvulling op het onderzoek in 2002 werd in 2005 ook een reeks experimenten op proefinstallatieschaal uitgevoerd. Daarnaast werden zandkolommen gevuld met zand van de proefinstallatiefilters en van zandfilters van DZH om verwijdering van indicatororganismen en pathogenen te kunnen vergelijken en voorspellen op praktijkschaal. De kolomexperimenten werden uitgevoerd met bacteriofagen, clostridiumsporen, bacteriën en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*. Al deze micro-organismen variëren onderling sterk in grootte (26 nm - 5 µm), wat van belang is om de bijdragen van hechting (adsorptie) en zeefwerking (micro-organismen blijven steken in kleine poriën in het zand) en de verwijdering door zandfiltratie in relatie tot hun grootte te identificeren en kwantificeren.

In dit rapport worden door middel van modellering van doorbraakcurven en diepteprofielen de verwijderingsprocessen nader geïdentificeerd en gekwantificeerd om fundamenteel inzicht te verkrijgen in de werking van langzame zandfiltratie. Deze modellering is ook wetenschappelijke basis voor kwantitatieve microbiologische risicoschatting. Vergelijkingen tussen micro-organismen en verschillende bedrijfscondities, zoals die tussen verschillende bedrijven kan bestaan, zijn belangrijk om inzicht te krijgen in welke mate de effectiviteit van een zuiveringsstap in de drinkwaterbereiding afhankelijk is van de locatie en in hoeverre dus voor de kwantitatieve microbiologische risicoschatting locatiespecifieke gegevens zijn vereist.

2 Proefinstallaties

2.1 Proefinstallaties Leiduin

Rijnwater wordt voorbehandeld door coagulatie en snelle zandfiltratie en via pijpleidingen getransporteerd naar de duinen ten westen van Amsterdam, waar het infiltratiekanalen voedt. Na duinpassage onder natuurlijk verval wordt het water in spaarbekkens verzameld. Omdat duinpassage zeer effectief is, zijn de concentraties pathogene micro-organismen naar verwachting zeer laag (Schijven et al., 1999). Echter, het water in de bekkens kan worden herbesmet, voornamelijk door vogels. Vooral besmetting met *Campylobacter* lijkt een probleem. Ook worden *Cryptosporidium* en *Giardia* in het bekkenwater gevonden. Het water van de bekkens wordt vervolgens behandeld door snelle zandfiltratie, ozonisatie, actief koolfiltratie en langzame zandfiltratie (7 500 – 10 000 m³ per uur).

Ten behoeve van onderzoek en ontwikkeling heeft Waternet een proefinstallatie in gebruik die parallel aan de volledige zuiveringstrein in gebruik is. De ene helft van het water, dat de proefinstallatie ingaat, ondergaat dezelfde behandeling als het water op praktijkschaal, uitgezonderd ontharding en passeert de langzame zandfilters F1 en F3. De andere helft wordt alleen behandeld met snelfiltratie en passeert de langzame zandfilters F2 en F4.

Elk filter heeft een oppervlak van 1,6 × 1,6 m². F1 heeft een beddiepte van 1,54 m, F3 van 1,24 m. Een laag van ongeveer 1,2 m influent (3072 liter) ligt op de zandfilters en het debiet is 0,78 m³ uur⁻¹. Leidingen zijn van PVC.

2.2 Proefinstallatie Weesperkarspel

Kwelwater uit de Bethunepolder wordt via een 8 km lang kanaal richting opslagbekken gepompt. Het aangevoerde water wordt na coagulatie en bezinking in het opslagbekken geleid, alwaar het 90 dagen verblijftijd heeft. Hier kan het water voornamelijk door vogels worden herbesmet met zoönotische pathogenen, met name *Campylobacter*. Vervolgens vindt snelfiltratie plaats en wordt het water via een 10 km lange pijpleiding naar de productielocatie Weesperkarspel geleid. De nabehandeling bestaat uit ozonisatie, ontharding, actief koolfiltratie en langzame zandfiltratie (3 000 – 3 500 m³ per uur). Bij WLB-Weesperkarspel heersen lagere bedrijfstemperaturen in de winter (2-5 °C) dan bij Leiduin (5-10 °C).

Elk proefinstallatiefilter heeft een oppervlak van 1,6 × 1,6 m². F2 heeft een beddiepte van 1,10 m. Het debiet is 1,15 m³ uur⁻¹. Leidingen zijn van PVC.

3 Methoden

3.1 Micro-organismen en enumeratie

De experimenten werden uitgevoerd met bacteriofaag MS2, sporen van *Clostridium perfringens* D10, *Escherichia coli* WR1, *Streptococcus faecalis* WR63, *Campylobacter lari* en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*.

Bacteriofaag MS2 is een icosahedrische faag met een diameter van 26 nm en een laag isoelectrisch punt (pI) van 3.5 (Penrod et al., 1996) en mag worden beschouwd als een conservatief modelvirus omdat het minder goed hecht aan zand dan de meeste pathogene virussen (Schijven et al., 2003). Een hoog geconcentreerde suspensie van MS2 werd bereid zoals beschreven door Schijven et al. (1999). MS2 werd bepaald met gebruik van gastheerstam WG49 (Havelaar et al., 1984) en een dubbellaagsagarmethode (ISO, 2000). Een hoog geconcentreerde suspensie van sporen van *Clostridium perfringens* strain D10 werd bereid door Kiwa Research, zoals beschreven door Hijnen et al. (2002). Om veranderingen van de oppervlakte-eigenschappen van de sporen te verhinderen werd de suspensie niet gepasteuriseerd en bevatte daarom ook vegetatieve cellen. Analyse van monsters met en zonder pasteurisatie gaf aan dat de suspensie voor meer dan 95% uit sporen bestond. Voor de kwantitatieve bepaling van sporen van *C. perfringens*, werden monsters gepasteuriseerd gedurende 30 minuten bij 75 °C en gefiltreerd over een 47 mm 0,45 µm nitrocellulosefilter (Hijnen et al., 1997). De filters werden in het deksel van een petrischaal geplaatst en overgoten met PABM van 45 °C. Het medium werd afgesloten met de petrischaal bij 44 °C geïncubeerd. Na 24 en 48 uur werd het aantal zwarte kolonies geteld.

Hoog geconcentreerde suspensies van *E. coli* WR1 en *S. faecalis* WR63 werden bereid door kweek in gebufferd peptonwater gedurende 18 uur bij 37 °C, gevolgd door centrifugatie en wassen in steriel water. *E. coli* WR1 werd kwantitatief bepaald door membraanfiltratie en incubatie op Lauryl Sulfaat Agar gedurende 5 uur bij 25 °C en 14 uur bij 44 °C.

S. faecalis WR63 werd kwantitatief bepaald door membraanfiltratie en incubatie op Kenner Faecal Agar. Typische roze tot bruine kolonies werden bevestigd door groei bij 44 °C en op esculinehydrolyse op Gal-Esculine-Azide Agar platen (NEN 6564, 1982).

Campylobacter lari werd gekozen als representatief voor de groep van campylobacters omdat *C. lari* minder pathogeen is dan *Campylobacter jejuni*. Bovendien werd een aantal maatregelen getroffen om eventuele gezondheidseffecten te voorkomen. Aan het einde van het experiment werden het filter en het filtraat met chloor gedesinfecteerd. Omdat ook *C. lari* in principe pathogeen is, werd een doseersuspensie van 50 ml met ongeveer 10⁵ per ml bereid. Dit is duizend keer lager dan *E. coli*. Hierdoor werd het lozen van besmet materiaal beperkt en bleef naar verwachting de effluentconcentratie lager dan 100 kve/l. Vooraf aan elke dosering werd *C. lari* vers microaërofiel gekweekt gedurende 48 uur in 50 ml Brain Heart Infusion Broth 37 °C onder schudden. Vervolgens werden de bacteriën gecentrifugeerd (Heraeus Megafuge 1.0 LWLO-013; 2500 rpm) en geresuspendeerd in 50 ml BHI. Dit wassen werd nog twee keer herhaald met leidingwater. Het pellet werd gewogen en geresuspendeerd in 50 ml BHI en bij 5 ± 3 °C microaërofiel bewaard.

Monsters water werden onderzocht op *Campylobacter lari* door membraanfiltratie van de monsters, groei in Preston-ophopingsmedium gedurende 48 uur bij 42 °C onder microaërofiële condities, gevolgd door kweek op een selectieve Bolton-agarplaat volgens

NEN 6269 (1995) gedurende 48 uur bij 42 °C onder microaërofiële condities en bevestiging met een hangende druppelpreparaat.

Tijdens dosering van *C. lari* werd de bovenzijde van de filters afgedekt met platen en vond dosering plaats door een kleine opening om aerosolvorming te voorkomen. Het effluentwater en het overstortwater werden samen opgevangen in een container van 1000 liter, waaraan 0,2 mg/l vrij beschikbaar chloor werd gedoseerd met een contacttijd van tenminste 10 minuten. Na afloop van een geheel doseringsexperiment werd aan het bovenwater op het filter gedurende enkele uren ook 0,2 mg/l vrij beschikbaar chloor gedoseerd om het bovenwater en het zand te desinfecteren.

Cryptosporidium parvum oöcysten (Moredun; geoogst door sedimentatie en differentiële centrifugatie) werden gedoseerd vanuit een suspensie met 10^8 oöcysten per ml. Voor telling van de oöcysten werden monsters van 1 – 200 ml direct geanalyseerd (dat wil zeggen zonder concentrering) met behulp van de Directe Fluorescentie Assay met de Chemscan (Chemunex). Monsters werden gefiltreerd en bereid voor scanning met de Chemscankit (Chemunex 200 k0009-01 met IMS). De membranen werden gemerkt met 100 µl monoklonaal antilichaam reagens (Oxoid) in gedeïoniseerd water (1:1 v/v) gedurende 30 minuten bij 37 °C. De filters werden gescand en de getelde spots werden microscopisch bevestigd op kleur, vorm en grootte.

3.2 Dosering van proefinstallatiefilters

Tabel 1 vat de experimentele condities van de langzame zandfilters in de proefinstallatie samen. Filters F1 (snelfiltratie, ozonisatie en actief koolfiltratie) en F2 en F3 (snelfiltratie) werden gebruikt voor de experimenten op proefinstallatieschaal te Leiduin (Waternet). Filter F2W (ozonisatie en actief koolfiltratie) was in gebruik op proefinstallatieschaal te Weesperkarspel (Waternet).

Teneinde de poriewatersnelheid en dispersiviteit te bepalen werd aan F1 550 mg/l NaCl oplossing gedoseerd. Gedurende 24 uur werd zoutdoorbraak gemeten op grond van elektrische geleidbaarheid. Tabel 1 toont de gedoseerde concentraties micro-organismen, C_0 . Experimenten A – D betreft de proefinstallatiedoseringen in 2002. Allereerst werd MS2 gedoseerd op filter F1 toen het filter 553 dagen in gebruik was (Experiment A, Tabel 1). Op dat moment was de watertemperatuur 16 °C. Ongeveer vijf maanden later in de winter werd de Schmutzdecke van F1 voor de eerste keer geschraapt. Twaalf dagen later werden bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 tegelijk gedoseerd op F1 en F2 (Experimenten B en C). F2 bevatte een 81 dagen oude Schmutzdecke. Omdat filter F2 direct water ontvangt van de snelle zandfilters, zonder ozonisatie en actief koolfiltratie, moet de Schmutzdecke van dit filter ongeveer elke drie maanden worden afgeschraapt. Dit weerspiegelt het verschil tussen F1 en F2 voor wat betreft de kwaliteit van influent. Weer tien dagen later werd de Schmutzdecke van F2 afgeschraapt en vier dagen later werd de dosering van MS2 en WR1 herhaald (Experiment D). In alle experimenten werd drie liter met ongeveer 10^5 micro-organismen per liter direct op de toplaag water op de zandfilters gebracht en rustig gemengd met een rotor op een elektrische boormachine teneinde direct de gewenste C_0 -waarde te bereiken van ongeveer 100 micro-organismen per liter. Dit niveau werd constant gehouden gedurende 24 uur door toevoeging 19 liter van de doseersuspensie met een debiet van $0,78 \text{ l uur}^{-1}$. Deze dosering werd na 24 uur herhaald met 1000 keer hoger geconcentreerde suspensies. Elk uur tijdens kantoortijden werden monsters van 100 ml genomen van het influent en het effluent.

Experimenten G – K betreffen de proefinstallatiedoseringen in 2005, waarbij alleen maar met een hoge C_0 werd gedoseerd. Experiment G werd op de proefinstallatie te Weesperkarspel uitgevoerd in de winterperiode om verwijdering van micro-organismen bij zo laag mogelijke watertemperatuur (0 – 2 °C) te kunnen uitvoeren, maar in 2005 kwam deze niet lager dan 7,0 °C.

In experiment H werd hetzelfde F1-filter gebruikt als in experimenten A en B, maar dit keer werd ook gedoseerd met *C. lari*. Experimenten I, J en K betroffen filter F3, welke zand van een praktijkfilter van DZH bevatte. In experiment I was op dit filter een Schmutzdecke aanwezig, die er vervolgens was afgeschraapt in experiment J. Experiment K werd tenslotte uitgevoerd om na te gaan in hoeverre de Schmutzdecke weer hersteld was na 53 dagen.

3.3 Kolomexperimenten

Kolomexperimenten werden door Kiwa Water Research uitgevoerd bij 8,3 en 14 °C (Tabel 1). Ongeveer 700 liter influent van filter F1 (actief koolfiltraat) werd opgeslagen in een roestvrij stalen tank en gebruikt voor de kolomexperimenten. Er werden twee kolommen gemaakt: C1 en C2 (Tabel 2). C1 bevatte zand van bemonstering van F1 op vijf verschillende diepten. C2 bevatte zand van een praktijkfilter van DZH, ook met zand van vijf verschillende diepten. Dit zand was grover en bevatte meer metaaloxiden (Tabel 3). Plexiglas kolommen met binnendiameter van 9 cm werden stapsgewijs gevuld, waarbij het zand verzadigd met water werd gehouden. Elk van de vijf zandmonsters werd gebruikt om 8 - 10 cm van de

kolom te vullen, zoals aangegeven in Tabel 2 tot een totale kolomlengte van 40 cm. Materiaal van de Schmutzdecke werd niet gebruikt. De kolommen werden door 4 cm gravel (1 - 2 mm diameter) ondersteund. Tijdens de experimenten was de waterstroom door de kolommen neerwaarts. Het water werd aangevoerd door roestvrijstalen leidingen en het effluent werd bemonsterd met behulp van Teflon slangen. De kolommen werden twee tot drie weken vooraf aan de experimenten gespoeld met het influent met een stroomsnelheid van 0,08 m uur⁻¹ en vanaf twee dagen voor de experimenten met een stroomsnelheid van 0,3 m uur⁻¹ een oplossing met 550 mg/l NaCl werd eerst gedoseerd om de poriewatersnelheid en de dispersiviteit te bepalen.

Suspensies van 5 liter met micro-organismen werden bereid in een roestvrij stalen tank van 30 liter. De micro-organismen werden gedoseerd gedurende twee uren, waarna werd overgeschakeld op water zonder micro-organismen. Monsters van 100 ml werden iedere 12 minuten genomen gedurende de eerste 4 uren en daarna om de paar uur. De complete cocktail van micro-organismen werd aan beide kolommen gedoseerd (Tabel 1).

Tabel 1 Experimentele condities

| Experimenten 2002 | Filter | | | | Kolom | |
|-------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| | F1 | F1 | F2 | F2 | C1 | C2 |
| Experiment | A | B | C | D | E | F |
| Datum experiment | 100901 | 040302 | 040302 | 180202 | 050402 | 050402 |
| Leeftijd Schmutzdecke (dagen) | 553 | 12 | 81 | 4 | | |
| Watertemperatuur °C | 16 | 12 | 11 | 9,4 | 8,3 | 14 |
| Influent | A | A | B | B | A | A |

Micro-organismen, C_0 (N/ml)

| | | | | | | | |
|-----------------------------------|------|-------|-------|-------|--------|--------|-------|
| Bacteriofaag MS2 | Laag | 15 | 27 | 24 | 180 | | |
| | Hoog | 26000 | 21000 | 29000 | 280000 | 210000 | 74000 |
| <i>E. coli</i> WR1 | Laag | | 27 | 22 | 25 | | |
| | Hoog | | 27000 | 33000 | 43000 | 76000 | 52000 |
| <i>S. faecalis</i> WR63 | | | | | | 2200 | 990 |
| <i>Cl. Perfringens</i> sporen D10 | | | | | | 22000 | 4400 |
| Oöcysten van <i>C. parvum</i> | | | | | | 1000 | 16000 |

Experimenten 2005

| Experimenten 2005 | Filter | | | | |
|-------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|
| | F2W | F1 | F3 | F3 | F3 |
| Experiment | G | H | I | J | K |
| Datum experiment | 170105 | 310105 | 210205 | 040405 | 230505 |
| Leeftijd Schmutzdecke (dagen) | 56 | 1105 | 137 | 4 | 53 |
| Watertemperatuur °C | 7,0 | 9,9 | 13 | 14 | 16 |
| Influent | C | A | A | A | A |

Micro-organismen, C_0 (N/ml)

| | | | | | |
|---------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|
| Bacteriofaag MS2 | 71000 | | 54000 | 62000 | 49000 |
| <i>E. coli</i> WR1 | 13000 | 15000 | 8200 | 11000 | 7600 |
| <i>Campylobacter lari</i> | 360 | 540 | | | |

Afschrapen: verwijdering van de Schmutzdecke (1,5 cm).

Influent A, proefinstallatie Leiduin: snelfiltratie / ozon / actief koolfiltratie, DOC 1,5 (1,3 – 1,8) mg/l, troebelheid 0,1 (0,008 – 0,26) FTE.

Influent B, proefinstallatie Leiduin: snelfiltratie, DOC 2,1 (1,7 – 2,7) mg/l, troebelheid 0,7 (0,2 – 4,0) FTE.

Influent C, proefinstallatie Weesperkarspel: snelfiltratie / ontharding / ozon / actief koolfiltratie,

DOC 3,0 (1,7 – 3,4) mg/l, troebelheid 0,31 (0,10 – 1,9) FTE. pH van alle influenten and effluenten was 8.

Tabel 2 Filter en kolomdiepten (cm) voor constructie van kolommen C1 met zand van filter F1 en van C2 met zand van het praktijkfilter van DZH.

| C1 | F1 | C2 | Praktijkfilter |
|-------------|-----------|--------------|----------------|
| 0 - 8 (top) | 20 - 40 | 0 - 10 (top) | 20 - 40 |
| 8 - 16 | 50 - 70 | 10 - 20 | 40 - 60 |
| 16 - 24 | 80 - 100 | 20 - 30 | 60 - 80 |
| 24 - 32 | 110 - 130 | 30 - 40 | 80 - 100 |
| 32 - 40 | 130 - 150 | | |

Tabel 3 Chemische en fysische eigenschappen van de gebruikte zanden

| | F1, F2, C1 | F2W | C2 | F3 |
|--|------------|---------------|------|------|
| Korrelgrootte (d_{50} , mm) | 0,27 | 0,54 | 0,53 | 0,56 |
| Uniformiteitscoëfficiënt (d_{60}/d_{10}) | 2,5 | 1,7 | 2,5 | 1,75 |
| Al-oxalaat (mg/kg drooggewicht) | 80 | 280-350 | 160 | 395 |
| Fe-oxalaat (mg/kg drooggewicht) | 27 | 1170- 1305 | 700 | 3035 |
| Mn-oxalaat (mg/kg drooggewicht) | 0,25 | 27-39 | 20 | 127 |
| f_{oc} (%) | 0,30 | 0,04- 0,08 | 0,50 | 0,20 |
| CaCO ₃ (mg/kg drooggewicht) | 0 | 165-865 | 0,80 | 800 |

3.4 Diepteprofielen

Nadat doorbraakcurven waren gemeten, werd het zand van de kolommen genomen om de diepteprofielen van de micro-organismen in de kolommen te bepalen. Deze diepteprofielen geven de verdeling van de micro-organismen, die door hechting en zeefwerking in de kolom zijn achtergebleven, als functie van de kolomdiepte. Voor het bepalen van een diepteprofiel werd een roestvrijstalen halve pijp met een diameter van 1 cm in de kolom gestoken. Vervolgens werd het water uit de kolom gelaten en werd de pijp uit de kolom getrokken met een kern van de kolom van 40 cm lengte. Segmenten van het zand van ongeveer een centimeter werden bemonsterd van de kern op verschillende diepten (1, 5, 10, 20 en 35 cm). Elk zandmonster werd in een glazen buis gebracht die gevuld was met 40-50 ml van hetzelfde water als was gebruikt voor de kolomexperimenten. Het zand viel uiteen zodra het in het water kwam, waarbij direct micro-organismen vrij konden komen die vermoedelijk door zeefwerking waren achtergebleven. Dit water bevatte eveneens micro-organismen van residuwater in het zandmonster. Het zand zakte direct naar de bodem van de buis. Het meeste van het heldere supernatans werd gedecanteerd en de concentraties micro-organismen werden geanalyseerd.

Ongeveer 40 ml beeffextract pH 9 werd aan het resterende zand gevoegd en de buizen werden een minuut met de hand geschud. Een monster van 20 ml werd genomen voor microbiologische analyse. De monsters met beeffextract werden geneutraliseerd.

Verondersteld werd dat de monsters beeffextract de fractie van de micro-organismen bevatten die in de kolom aan de zandkorrels waren gehecht en die loskwamen door de behandeling met beeffextract.

De zandmonsters werden gedroogd bij 105 °C voor de bepaling van het drooggewicht. De dichtheid van het gedroogde zand werd berekend uit het volume en gewicht van het gedroogde zand in een maatcilinder (droog zand plus lucht) en bedroeg 1,5 g/ml.

3.5 Inactivatie in het water

Parallel aan de doseringen van de proefinstallatiefilters, werd een deel van de doseersuspensies van experimenten A – G bij 5 ± 3 °C en experimenten H – K bij dezelfde temperatuur als het doseerexperimenten opgeslagen en bemonsterd om de afnamesnelheid van de micro-organismen in de waterfase te bepalen.

3.6 Model

De belangrijkste processen die het transport en de verwijdering van micro-organismen in een verzadigd poreus medium (zand) bepalen zijn advection, dispersie, sorptie (hechting en onthechting), inactivatie van vrije en gehechte micro-organismen en zeefwerking. Het model dat dit beschrijft is beschikbaar in het softwarepakket HYDRUS-1D versie 2.01 gebruikt (US Salinity Laboratory, USDA, ARS). Daarbij kan worden gekozen voor een model met hechting aan twee verschillende depositieplaatsen of voor een model met hechting aan één type depositieplaats en met zeefwerking. Deze beide modellen kunnen worden gebruikt voor het fitten van de doorbraakcurves.

De vergelijking voor ééndimensionaal transport is als volgt:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\rho_B}{n} \frac{\partial S_1}{\partial t} + \frac{\rho_B}{n} \frac{\partial S_2}{\partial t} = \alpha_L v \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} - \mu_1 C - \mu_{s1} \frac{\rho_B}{n} S_1 - \mu_{s2} \frac{\rho_B}{n} S_2 \quad (1)$$

hierin is C de concentratie van vrije micro-organismen [L^{-3}]; S de concentratie gedeponeerde micro-organismen [M^{-1}]; t de tijd [T]; x de afstand [L]; α_L de dispersiviteit [L]; v de gemiddelde poriewatersnelheid [$L T^{-1}$]; ρ_B het soortelijk gewicht [$M L^{-3}$]; n de porositeit [-]; μ_1 en μ_s zijn de inactivatiesnelheidscoëfficiënten van respectievelijk vrije en gedeponeerde micro-organismen [T^{-1}]. Subscripten 1 en 2 verwijzen naar twee verschillende kinetische depositieplaatsen.

Schijven et al. (2002, 2003) toonden dat een model met twee typen kinetische hechtingsplaatsen de doorbraakcurves van de micro-organismen van kolom- en veldexperimenten beter fite dan een model met één type kinetische hechtingsplaats. In het model met twee typen hechtingsplaatsen is interactie met één hechtingsplaats gekarakteriseerd door een relatief snelle hechting en langzaam onthechten, terwijl interactie met de tweede kinetische hechtingsplaats gekenmerkt wordt door zowel snelle hechting als snelle onthechting. Wanneer depositie wordt bepaald door hechting dan is de vaste fase massa balansvergelijking voor plaatsen van type één:

$$\frac{\rho_B}{n} \frac{\partial S_1}{\partial t} = k_{att1} C - k_{det1} \frac{\rho_B}{n} S_1 - \mu_{s1} \frac{\rho_B}{n} S_1 \quad (2)$$

hierin zijn k_{att} en k_{det} respectievelijk hechtings- en onthechtingsnelheidscoëfficiënten [T^{-1}]. Dezelfde vergelijking, maar waarin het subscript 1 in vergelijking (2) is vervangen door subscript 2 beschrijft hechtingsplaatsen van type twee.

Onder steady state condities en in het geval van twee typen hechtingsplaatsen kan de verwijdering van micro-organismen door zandfiltratie als volgt worden berekend (Schijven et al., 2002):

$${}^{10}\log\left(\frac{C}{C_0}\right) = \frac{x}{2.3} \frac{\left(1 - \sqrt{1 + 4\alpha_L \frac{\lambda}{v}}\right)}{2\alpha_L} \quad (3)$$

hierin is C_0 de concentratie op $x = 0$, en ${}^{10}\log(C/C_0)$ een maat voor de verwijdering van micro-organismen.

De term λ in vergelijking (3) is equivalent aan de totale verwijderingssnelheidscoëfficiënt:

$$\lambda = \mu_l + \frac{k_{att1}}{1 + k_{det1}/\mu_{s1}} + \frac{k_{att2}}{1 + k_{det2}/\mu_{s2}} \quad (4)$$

In vergelijking (4) dragen drie termen bij aan de totale verwijdering. De eerste term is inactivatie van vrije micro-organismen. De tweede en laatste termen geven de verwijdering van micro-organismen door interactie met de twee hechtingsplaatsen. Interactie betekent de combinatie van hechting, onthechting en inactivatie van gehechte micro-organismen.

In de bovenstaande modelbeschrijving werd aangenomen dat zeefwerking geen significante rol speelde in de verwijdering van de micro-organismen. Dit is waarschijnlijk een valide aanname voor de kleine bacteriofagen, maar niet voor grotere micro-organismen. Gegevens gepresenteerd door Bradford et al. (2003, 2004) en Bradford en Bettahar (2005) veronderstellen dat zeefwerking een belangrijk depositiemechanisme kan zijn als de verhouding van de colloïde-diameter en mediane korreldiameter groter is dan ongeveer 0,005. De verhouding van effectieve diameter van WR1 (1,5 μm) en de gemiddelde korrelgrootte van F1 en F2 (268 μm) is 0,006. In de Schmutzdecke neemt naar verwachting de poriegrootte significant af, wat zeefwerking verder doet toenemen. Zeefwerking kan worden gemodelleerd volgens de benadering van Bradford et al. (2003). Zeefwerking neemt toe bij toenemende grootte van het micro-organisme en afnemende korrelgrootte en wordt door Bradford et al. (2003) verwacht diepteafhankelijk te zijn, dat wil zeggen dat er relatief meer zeefwerking in het begin van de kolom is. In het geval van zeefwerking wordt depositie op plaats 2 beschreven door de volgende vergelijking:

$$\frac{\rho_B}{n} \frac{\partial S_2}{\partial t} = k_{str} \left(\frac{d_{50} + z}{d_{50}} \right)^{-\beta} C \quad (5)$$

hierin is k_{str} de zevingscoëfficiënt [T^{-1}], d_{50} de mediane korreldiameter [L] en β de parameter die vorm van de ruimtelijke verdeling van de gezeefde micro-organismen beschrijft.

3.7 Zetapotentialmetingen aan zand en micro-organismen

Zetapotentialmetingen werden uitgevoerd op het laboratorium van UNESCO-IHE te Delft. Zetapotentialmetingen van zand en micro-organismen geven de gemiddelde elektrische lading van korrels in de zandmonsters en van de micro-organismen. Dit is afhankelijk van de chemische samenstelling van het water, daarom werden de metingen uitgevoerd in influent van de proefinstallatie. Een meer negatieve zetapotential leidt tot minder verwijdering van de eveneens negatief geladen micro-organismen, omdat deze dan meer worden afgestoten.

Eind juni en begin juli 2005 zijn voor drie zandfilters vijf tot zes monsters gestoken op verschillende diepten tot ongeveer 50 cm:

Leiduin LZF3 (0 – 5 cm; 5 – 10 cm; 10 – 20 cm; 20 – 30 cm; 50 cm – bodem; bodem);

Scheveningen LZF4 (0 – 2 cm; 2 – 10 cm; 10 – 20 cm; 20 – 30 cm; 30 – 40 cm);

Weesperkarspel LZF1 (0 – 2 cm; 2 – 5 cm; 5 – 20 cm; 10 – 20 cm; 20 – 50 cm).

De zetapotential werd voor elk zandmonster bepaald.

De aangeleverde zandmonsters werden vermalen in een porseleinen kom met een mortier en vervolgens is een suspensie van het monster samen met het aangeleverde water in de zetacel gebracht. Over de zetacel is een spanningsverschil van 40 V aangebracht en vervolgens is de snelheid van bewegen van vermalen zanddeeltjes gemeten onder een fasecontrastmicroscop, die door middel van een videocamera in contact stond met een beeldscherm. Elke karakteristieke deeltjessnelheid is minstens 20 keer geregistreerd om een goed overzicht te krijgen van het spectrum van deeltjessnelheden in het monster. De deeltjessnelheden (oftewel de elektroforetische mobiliteit) zijn via de Smoluchowski-Helmholtz vergelijking omgerekend naar zetapotential.

De Helmholtz-Smoluchowski vergelijking beschrijft de relatie tussen elektroforetische transportsnelheid en de zetapotential:

$$\zeta = v \frac{\eta}{\varepsilon_0 \varepsilon E} \quad (6)$$

hierin is v de waargenomen transportsnelheid (ms^{-1}), ε_0 de permittiviteit van vacuüm ($8.8542 \cdot 10^{-12} \text{ CV}^{-1} \text{ m}^{-1}$), ε de dielektrische constante ($= 78.54$ at 25°C), E de elektrische veldsterkte (Vm^{-1}), η de dynamische viscositeit van water ($= 8.9 \cdot 10^{-4} \text{ Pa s}$) en ζ de zetapotential (V).

Om een idee te krijgen van de invloed van oxiden en organisch materiaal op het spectrum van deeltjessnelheden is een deel van niet vermalen zandmonsters 24 uur in een 12 n HCl-oplossing geweekt en daarna gespoeld met MilliQ-water tot een elektrische geleidbaarheid van ongeveer 0-1 $\mu\text{S/cm}$, waarna het in de oven bij 550°C gedurende 4 uur verhit is. De eerste behandeling verwijdert oxiden, terwijl de tweede behandeling eventueel achtergebleven organisch materiaal verast. Daarna is het monster vermalen en is, zoals hierboven beschreven, de zetapotential bepaald.

Bovendien is, ter vergelijking in elk aangeleverd watertype de zetapotential bepaald van 99,98% kwartsand (J.T. Baker), dat is behandeld zoals de zandmonsters ter verwijdering van oxiden en organisch materiaal.

De zetapotential van vier micro-organismen (*Escherichia coli* WR1, *Campylobacter lari*, *Campylobacter jejuni* en *Clostridium perfringens* D10) werd bepaald in drie verschillende watertypen (LZF1, LZF2 en LZF3). De micro-organismen werden gewassen door de suspensie drie keer te centrifugeren (3000 rpm) gedurende 10 minuten en te resuspenderen met het betreffende influent. Vervolgens werd de zetapotential bepaald, zoals beschreven voor de zandmonsters.

3.8 Biologische activiteit filtermateriaal

Om de prestatie van langzame zandfiltratie uit de proefinstallatie te kunnen vergelijken met die van de overeenkomstige praktijkfilters is door het Waterlaboratorium (HWL) ook onderzoek uitgevoerd naar een aantal chemische en microbiologische parameters van het zandmateriaal, die maatgevend kunnen zijn voor biologische activiteit van de zandfilters. Deze microbiologische parameters zijn ATP en het koloniegetal na 10 dagen kweek bij 25 °C. Het zand werd behandeld volgens HWL-voorschrift AVS-ATPFZ. Dit voorschrift beschrijft een methode voor de voorbehandeling van korrelvormige materialen (zand, grind, kool etcetera) ten behoeve van de bepaling van bacteriologische parameters en adenosine trifosfaat (ATP). Het korrelvormige materiaal wordt gedurende een aantal minuten in steriel leidingwater blootgesteld aan ultrasone trillingen. De op deze manier verkregen suspensie wordt verder op bacteriologische parameters onderzocht. Voor de berekening van de parameters wordt het drooggewicht en/of het soortelijk gewicht van het materiaal bepaald, waarna per volume-eenheid of gewichteenheid de bacteriologische parameters en het ATP-gehalte berekend kunnen worden (Magic-Knezev en Van der Kooij, 2004).

Volgens voorschrift AVS-ATP-BIOM is het adenosinetrifosfaatgehalte (ATP) in water en suspensies bepaald met behulp van een luminometer. De ATP-meting is gebaseerd op de reactie tussen twee eiwitten afkomstig van vuurvliegjes (luciferine (substraat) en luciferase (enzym)), die optreedt in aanwezigheid van ATP. Hierbij wordt licht geproduceerd, dat gemeten wordt en weergegeven in Relatieve Licht Eenheden (RLE).

De chemische parameters betreffen gebonden organische stof (f_{oc}), totaal ijzer, mangaan en aluminium, calcium, koolstof, stikstof en zwavel (Stuyfzand en Van der Jagt, 1997).

Het filtermateriaal uit een praktijkfilter op locatie Scheveningen (LZF4) en van proeffilter LZF3 werden na afloop van de doseerexperimenten werd bemonsterd met een goed schoongemaakte steekbuis nadat het water uit de filter helemaal was gedraineerd. LZF4 werd op 16-06-2005 bemonsterd op diepten van 0-2 cm, 2-10 cm, 10-20 cm, 20-30 cm en 30-40 cm. LZF3 werd op 15-06-2005 bemonsterd op diepten 0-5 cm, 5-10 cm, 10-20 cm, 20-30 cm, 50 cm en de bodem.

Het zand werd gesuspenseerd in geautoclaveerd drinkwater en ultrasoon behandeld gedurende drie minuten in een waterbad (43 kHz) volgens het HWL analysevoorschrift AVS-ATPFZ. Daarna is de waterfase gescheiden van het zand.

4 Resultaten

4.1 Zoutdoorbraakexperimenten

De waarden voor porositeit en dispersiviteit verkregen door fitten van de zoutdoorbraakcurves zijn in Tabel 4 gegeven. De porositeit van F1, F3, C1 en C2 was nagenoeg hetzelfde, die van F2W hoger. Dispersiviteiten waren laag, wat aangeeft dat de stapeling relatief homogeen was.

4.2 Inactivatie/afsterving in de waterfase

Tabel 5 geeft de inactivatiesnelheidscoëfficiënten (μ_i) van bacteriofaag MS2 en van *E.coli* WR1 in het influent van de zandfilters (resultaten uit 2002 en 2005). Inactivatie in filters F1, F2 en F2W werd bij 5 ± 3 °C bepaald en varieerde daarbij voor MS2 van 0,24 tot 0,34 dag⁻¹ en voor *E. coli* WR1 van 0,068 tot 0,32 dag⁻¹. Tijdens de experimenten met F3 werden de watermonsters waaruit inactivatie van MS2 en WR1 werd bepaald bij exact dezelfde temperatuur (namelijk in het bovenwater van het filter) gehouden als die van het doseerexperiment. Daarbij is vooral voor MS2 bij hogere temperatuur snellere inactivatie waargenomen. Gezien de tijd tot doorbraak door de zandfilters van ongeveer 1,3 uur is de bijdrage van inactivatie/afsterving van de micro-organismen in de waterfase aan de totale verwijdering door passage door een zandfilter van 1,5 m slechts 0,004 – 0,03 ¹⁰log, wat verwaarloosbaar is. Merk op dat de afstervingsnelheid van *C. lari* duidelijk hoger was, maar ook hier geldt dat de bijdrage door afsterving na 1,3 uur slechts 0,05 – 0,07 ¹⁰log bedroeg.

4.3 Beschrijving en fitten van de doorbraakcurves

Figuren 1a – 1c tonen de doorbraakcurves van bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 van de langzame zandfiltratie-experimenten A - D (F1 en F2). In elke curve, worden twee maximum doorbraakconcentraties bereikt, welke een factor 1000 uiteen liggen ten gevolge van de verschillende niveau's in doseerconcentraties. De staarten van de doorbraakcurves vertegenwoordigen langzaam onthechten van gehechte micro-organismen.

Van deze doorbraakcurves werd de ¹⁰log van de ratio van de maximum doorbraakconcentratie C_{max} en de doseerconcentratie C_0 berekend als maat voor verwijdering, aannemende dat een steady state was bereikt tijdens de maximale doorbraak (Zie Tabel 6). Verwijdering van bacteriofaag MS2 in experiment A (F1, influentwater na snelfiltratie, ozonisatie en actiefkool filtratie, in aanwezigheid van een Schmutzdecke, de temperatuur bedroeg 16 °C) was 3,5 ¹⁰log, maar in experiment B (F1, influent water na snelfiltratie, ozonisatie en actief koolfiltratie, zonder Schmutzdecke, de temperatuur bedroeg 12 °C) was de verwijdering slechts 1,8 ¹⁰log. Klaarblijkelijk is de verwijdering van MS2 hoger in de aanwezigheid van een Schmutzdecke in combinatie met een iets hogere temperatuur. Verwijdering van MS2 in experiment C (F2, influentwater na snelfiltratie, in aanwezigheid van een Schmutzdecke, de temperatuur bedroeg 11 °C) was ongeveer hetzelfde als in experiment B, namelijk 1,8 - 2,2 ¹⁰log, wat een aanwijzing is dat de Schmutzdecke bij lage temperatuur weinig effect heeft op de verwijdering van bacteriofaag MS2.

Tabel 4 Parameterswaarden op basis van zoutdoorbraak door langzaam zandfilters F1 en kolommen C1 en C2.

| | Debiet [cm uur ⁻¹] | Dispersiviteit [cm] | Porositeit | R ² |
|-----|-----------------------------------|---------------------|----------------|----------------|
| F1 | 30 | 0,37 ± 0,0087 | 0,40 ± 0,00023 | 99,5% |
| C1 | 30 | 0,13 ± 0,0063 | 0,41 ± 0,00054 | 99,9% |
| C2 | 30 | 0,53 ± 0,074 | 0,40 ± 0,00031 | 100,0% |
| F2W | 45 | 1,3 ± 0,17 | 0,39 ± 0,0032 | 95,4% |
| F3 | 30 | 1,2 ± 0,042 | 0,40 ± 0,0063 | 99,6% |

R² is de correlatiecoëfficiënt.

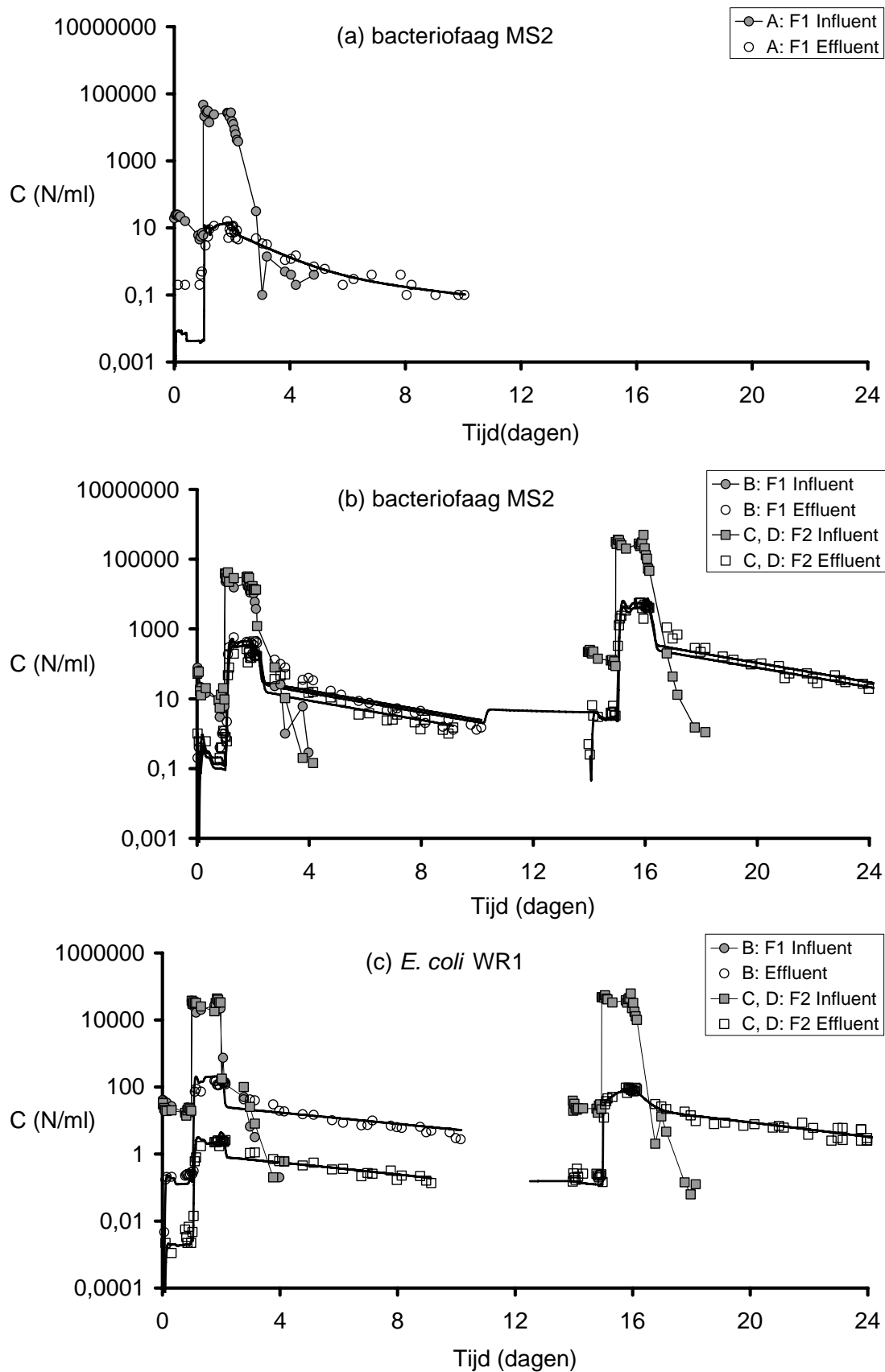
Tabel 5 Inactivatiesnelheidscoëfficiënten (μ_i) van bacteriofaag MS2, *E. coli* WR1 en *Campylobacter lari* in influent van de langzame zandfilters.

| Experiment | Filter | μ_i (dag ⁻¹) | N | R ² |
|---------------------------|--------|------------------------------|----|----------------|
| Bacteriofaag MS2 | | | | |
| A | F1 | 0,24 ± 0,018 | 9 | 96% |
| B | F1 | 0,32 ± 0,016 | 6 | 99% |
| C, D | F2 | 0,34 ± 0,015 | 8 | 99% |
| G | F2W | 0,26 ± 0,023 | 10 | 94% |
| I | F3 | 0,17 ± 0,025 | 8 | 88% |
| J | F3 | 0,16 ± 0,085 | 7 | 41% |
| K | F3 | 0,45 ± 0,089 | 9 | 79% |
| <i>E. coli</i> WR1 | | | | |
| B | F1 | 0,23 ± 0,029 | 6 | 94% |
| C, D | F2 | 0,32 ± 0,056 | 8 | 94% |
| G | F2W | 0,068 ± 0,025 | 10 | 49% |
| H | F1 | 0,13 ± 0,030 | 10 | 70% |
| I | F3 | 0,33 ± 0,035 | 8 | 94% |
| J | F3 | 0,18 ± 0,034 | 7 | 85% |
| K | F3 | 0,54 ± 0,058 | 9 | 93% |
| <i>C. lari</i> | | | | |
| G | F2W | 0,85 ± 0,14 | 7 | 88% |
| H | F1 | 1,2 ± 0,32 | 8 | 71% |

N is het aantal waarnemingen. R² is de correlatiecoëfficiënt.

Tabel 6 Verwijdering in de proefinstallatiefilters, ¹⁰log(C₀/C_{max}).

| Experiment | Filter | Bacteriofaag MS2 | | <i>E. coli</i> WR1 | | <i>C. lari</i> Hoge C ₀ |
|------------|--------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------------------------|
| | | Lage C ₀ | Hoge C ₀ | Lage C ₀ | Hoge C ₀ | |
| A | F1 | > 2,2 | 3,5 | | | |
| B | F1 | 1,7 | 1,8 | 2,1 | 2,3 | |
| C | F2 | 1,8 | 2,2 | 3,9 | 4,2 | |
| D | F2 | 1,7 | 1,9 | 2,0 | 2,8 | |
| G | F2W | | 0,57 | | 2,5 | 3,9 |
| H | F1 | | | | 4,8 | 4,8 |
| I | F3 | | 3,4 | | 4,9 | |
| J | F3 | | 2,8 | | 3,1 | |
| K | F3 | | 3,9 | | 5,6 | |



Figuur 1a - 1c Doseer- en doorbraakcurves van bacteriophage MS2 en *E. coli* WR1 experimenten A – D op filters F1 and F2 (zie Tabel 6). Symbolen: metingen. Lijnen: Het model voor twee types hechtingsplaatsen.

Ook uit de vergelijking van experimenten C en D (F2, influentwater na snelfiltratie, zonder Schmutzdecke), blijkt er weinig effect van de Schmutzdecke.

In experiment B is de verwijdering van *E. coli* WR1 iets hoger dan van MS2, namelijk $2,1 - 2,3^{10}\log$ vergeleken met $1,8^{10}\log$. In experiment C is de verwijdering van WR1 bijna tweemaal zo hoog: $3,9 - 4,2^{10}\log$. Dit verschil is duidelijk toe te wijzen aan de aanwezigheid van de Schmutzdecke. Dit Schmutzdecke-effect wordt nog eens bevestigd door experiment D, waarbij de verwijdering van WR1 zonder Schmutzdecke $2,0 - 2,8^{10}\log$ bedroeg. Zowel bacteriofaag MS2 als *E. coli* WR1 is negatief geladen, waarbij MS2 waarschijnlijk hydrophober is dan *E. coli*. Het Schmutzdecke-effect dat aanwezig is voor WR1, maar niet voor MS2, kan daarom niet worden verklaard uit verschillen in hechting van deze micro-organismen. Het verschil in verwijdering tussen bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 in aanwezigheid van de Schmutzdecke kan worden toegeschreven aan het verschil in grootte van MS2 (26 nm) en WR1 ($0,4 \times 2,6 \mu\text{m}$). Deze waarneming veronderstelt dat de grotere *E. coli* veel meer werd tegengehouden in de Schmutzdecke door zeefwerking dan de kleinere bacteriofaag. Een ander (additioneel) mechanisme dat dit verschillende effect van de Schmutzdecke op de verwijdering van MS2 en *E. coli* WR1 zou kunnen verklaren is predatie door hogere micro-organismen (protisten), die dan effectiever is voor bacteriën dan voor virussen.

De doseerconcentratie van MS2 omvatte een bereik van 15 tot 28000 bacteriofagen per ml. Regressieanalyse van de maximum doorbraakconcentratie als functie van de doseerconcentratie, toonde voor MS2 geen significant effect van de doseerconcentratie. Evenzo, op grond van de gegevens van experimenten B en D werd geen significant effect van de doseerconcentratie op de verwijdering van WR1 gevonden. Variantieanalyse toonde geen significante verschillen tussen de verwijdering van MS2 door filters met en zonder Schmutzdecke, maar voor WR1 was dit wel significant ($p=1,6\%$).

Figuren 2a en 2b tonen de doorbraakcurves van de kolomexperimenten E en F (C1 en C2). Bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 werden het minst tegengehouden, namelijk 73-82%, respectievelijk 41-63% passeerden de kolom. *S. faecalis* WR63 (6,0-8,1%) werd meer tegengehouden en de sporen van *Cl. perfringens* D10 nog meer (0,69- 3,1%). Oöcysten van *C. parvum* werden niet gedetecteerd in de kolomeffluenten, en verwijdering werd berekend op tenminste $5,3^{10}\log$ en $6,5^{10}\log$ voor respectievelijk C1 en C2. Het zand van kolom C2 (DZH-zand) bleek effectiever in het verwijderen van micro-organismen dan het zand van kolom C1 (Waternetzand).

De lage verwijdering van bacteriofaag MS2 in experiment G kan het gevolg zijn van de lage watertemperatuur van 7°C . Omdat zeefwerking bij *E. coli* en *Campylobacter* wel een rol speelt en bij MS2 nagenoeg niet is dit temperatureffect voor de bacteriën niet zo groot.

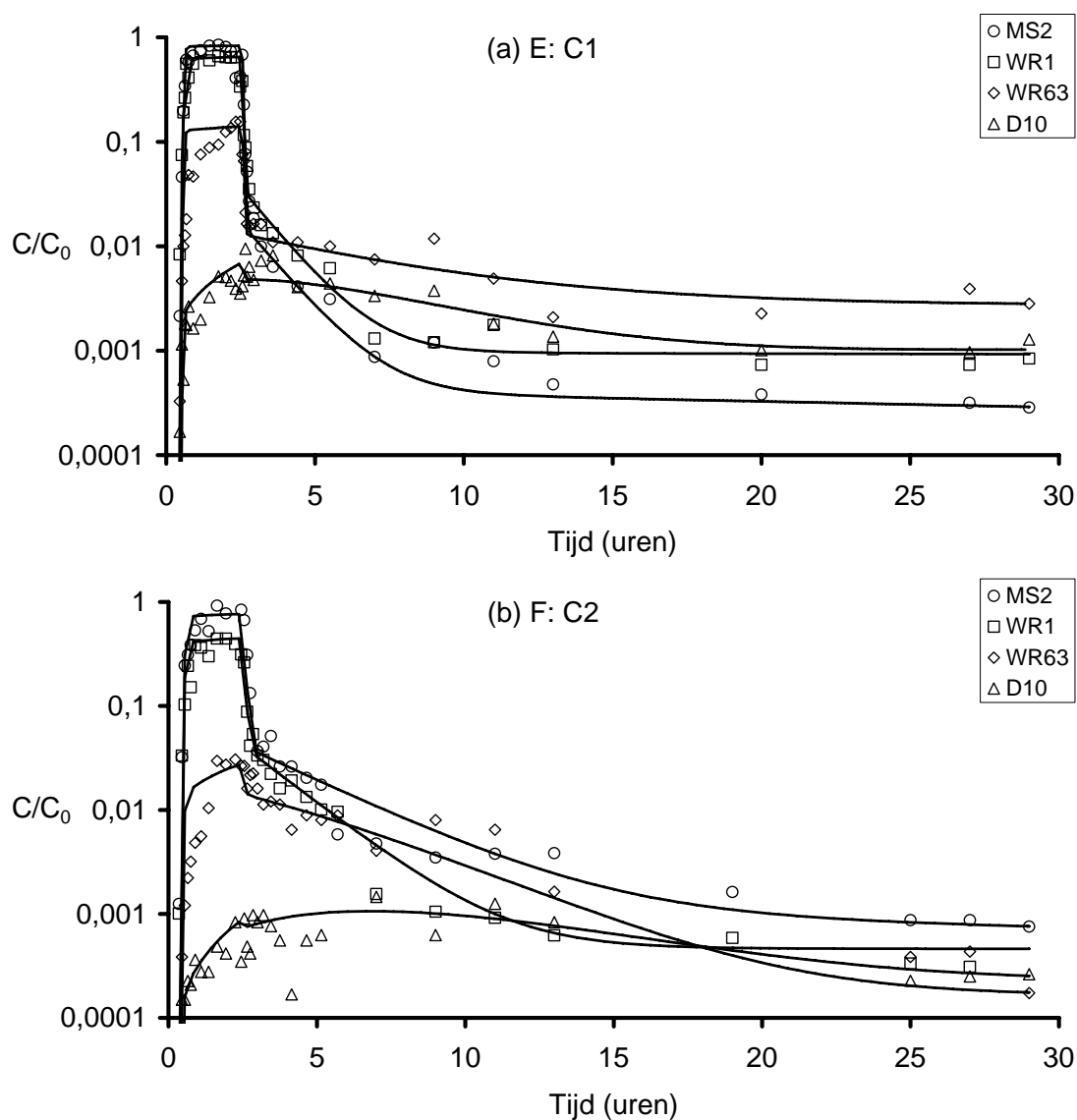
Figuren 3a – 3c tonen de doorbraakcurves van experimenten G – K.

De verwijdering van *E. coli* WR1 in experiment H door filter F1 was veel hoger dan in experiment B (hetzelfde filter). De Schmutzdecke van F1 was niet meer afgeschraapt sinds experiment B. Experimenten G en H laten evenveel of meer verwijdering zien van *Campylobacter lari* dan van *E. coli* (Tabel 6).

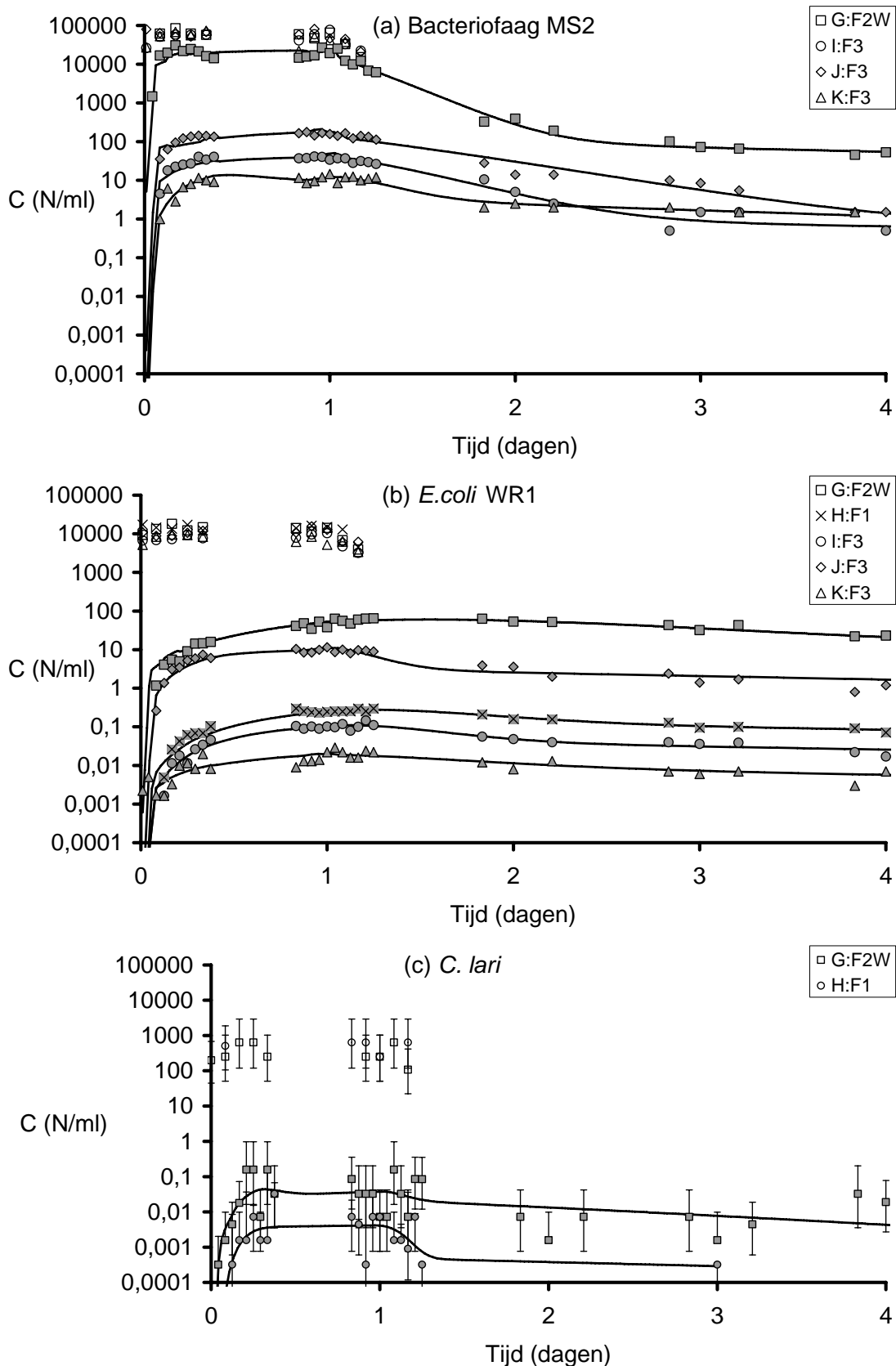
Verwijdering van *E. coli* WR1 in beide filters is ongeveer hetzelfde. Eerder bleek uit de kolomexperimenten E en F dat DZH-zand effectiever micro-organismen verwijderde dan Leiduin (=Mol)-zand. In de kolommen was geen Schmutzdecke aanwezig. Gezien de schaalgrootte en de betere overeenkomst in de bedrijfscondities tussen proefinstallatieschaal en praktijkschaal dan met de kolomschaal, zijn de waarnemingen op proefinstallatieschaal

betrouwbaarder dan die van de kolomexperimenten. Daarom ligt het meer voor de hand aan te nemen dat beide filters even effectief zijn.

Ook de verwijdering van bacteriofaag MS2 in experiment I (F3) is even hoog als in experiment A (F1). Deze filters zijn een weergave van filters met een effectief werkende Schmutzdecke. Na het afschrapen van het de Schmutzdecke van F3 (experiment J) is de verwijdering van *E. coli* WR1 wederom ongeveer 2^{10} log minder, zoals in experimenten C en D. Echter, dit keer is ook de verwijdering van bacteriofaag MS2 gereduceerd met $0,6^{10}$ log na afschrapen van de Schmutzdecke. Na 53 dagen (experiment K) blijkt dat de verwijdering is toegenomen en zelfs hoger is dan in experiment I, dit voor zowel bacteriofaag MS2 als *E. coli* WR1. Dat de verwijdering nu nog hoger is, kan worden toegeschreven aan herstel van de Schmutzdecke in combinatie met een hogere watertemperatuur. Hogere temperaturen correleren ook met een grotere aanvoer van zoöplankton, waardoor de predatie op bacteriën toeneemt. Er is ook een hogere concentratie zoöplankton waargenomen in filter F1 (Hijnen et al. 2007).



Figuur 2a-b Doorbraakcurves van de kolomexperimenten E en F (C1 en C2). Symbolen: Metingen. Lijnen: Het model voor twee types hechtingsplaatsen.



Figuur 3a-c Doseer- en doorbraakcurves van bacteriophage MS2, *E. coli* WR1 en *Campylobacter lari* in experimenten G – K op filters F1, F2W en F3. Open symbolen: Metingen influent. Gesloten symbolen: Metingen effluent. Lijnen: Het model voor twee types hechtingsplaatsen.

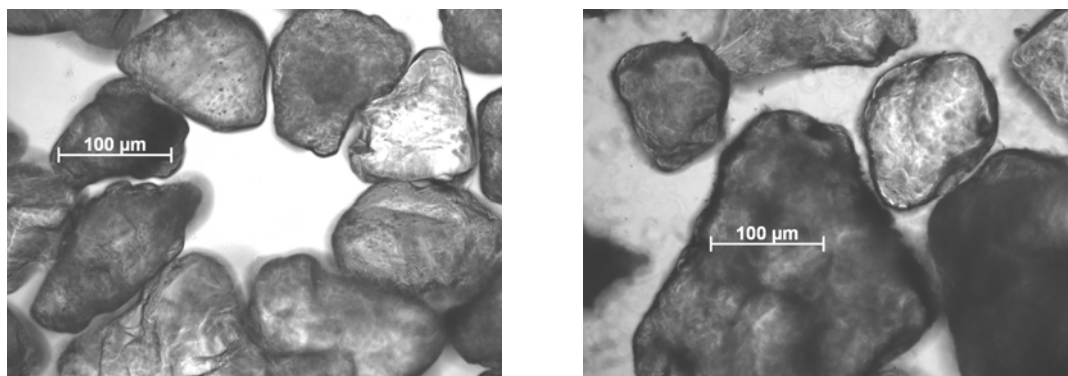
Figuren 1a -1c, 2a – 2b en 3a – 3c tonen ook de gefitte doorbraakcurves met het model voor twee typen hechttingsplaatsen. Het model fite de metingen zeer goed en volgde de buigingen van de stijgende en dalende zijdes van de doorbraakcurves. Tabel 7 geeft de betreffende modelparameterwaarden, de verwijdering en λ -waarden (vergelijking (4)). Onder steady state condities kunnen de relatieve bijdragen van inactivatie en hechting aan de verwijdering van virussen door bodempassage analytisch worden berekend met gebruik λ (Schijven et al., 2002). Dit kan niet in het geval van de sporen, omdat hun inactivatie verwaarloosbaar klein is. De waarden van λ zijn altijd ongeveer gelijk aan die van k_{att1} . Dit betekent dat volgens het model hechting aan plaatsen van type 1 de verwijdering het meest bepalend is voor de verwijdering. Dit werd eerder ook gevonden door Schijven et al. (2002) in kolom- en veldexperimenten. De verwijderingen berekend met vergelijkingen (3) en (4) waren ongeveer gelijk aan de verwijderingen berekend op basis van de maximum concentraties (Tabel 4). Wanneer k_{att1} -waarden en verwijderingen door kolom C1 worden vergeleken met die van F1- voor MS2 en WR1, blijkt dat verwijdering in het filter, zelfs zonder Schmutzdecke, 10 keer efficiënter verliep voor MS2 en 5 keer voor WR1 dan in kolom C1. Derhalve kunnen verwijderingswaarden verkregen in deze kolomexperimenten niet worden toegepast om verwijdering op proefinstallatieschaal te voorspellen. Waarschijnlijk zijn rijpingsstructuren en zoöplankton in de filtermonsters vernietigd of weggespoeld tijdens het nemen van de monsters en tijdens het vullen van de kolommen met deze filtermonsters. Omdat MS2 door beide kolommen ongeveer hetzelfde werd verwijderd, is het aannemelijk dat verwijdering van MS2 in de praktijk bij Waternet en DZH ongeveer hetzelfde zal zijn. Echter in het geval van de andere micro-organismen werd gevonden dat hun verwijdering ongeveer 40% - 90% hoger was in kolom C2 dan in C1. Dit suggereert dat hun verwijdering ook op praktijkschaal hoger is bij DZH dan bij Waternet. Daarentegen was verwijdering van *E. coli* in experimenten H (Waternet) en I (DZH) op proefinstallatieschaal nagenoeg gelijk. Hoewel het zand van DZH grover is dan dat van Leiduin is verwijdering door DZH-zand waarschijnlijk gelijk of hoger doordat er meer ijzerhydroxiden in aanwezig zijn dan in Waternetzand (Tabel 3). Visuele inspectie door een fasecontrastmicroscop (Zeiss) toonde dat de zandkorrels van DZH meer afgerond waren dan die van Waternet. Hierop kan worden geconcludeerd dat de oppervlakken van de korrels van DZH-zand niet ruwer zijn dan die van Waternetzand. Aldus kan meer verwijdering in DZH-zand niet worden verklaard door verschil in ruwheid (Figuur 4a en 4b).

Beide kolomexperimenten laten zien dat verwijdering toeneemt met de grootte van het micro-organisme in de volgorde bacteriofaag MS2, *E. coli* WR1, *S. faecalis* WR63 en oöcysten van *Cryptosporidium parvum*. Het ligt voor de hand dat dit ook het geval is voor de verwijdering door zandfilters op praktijkschaal. De verwijdering van de sporen volgde deze trend niet, ze werden meer verwijderd dan de bacteriën. In dit geval is de verwijdering van sporen op grond van het verschil tussen gedoseerde en maximum doorbraakconcentratie afhankelijk van de duur van de dosering (Schijven et al., 2003). Omdat afsterving van sporen te verwaarlozen is, kunnen de sporen in het zandfilter accumuleren door zeefwerking en hechting. In het geval van continu dosering van een zandfilter met sporen wordt een steady state bereikt, maar zodra alle poriën die zeefwerking geven gevuld zijn en/of alle plaatsen voor hechting bezet zijn, zal de effluentconcentratie toenemen.

Simultaan fitten van de doorbraakcurves en de diepteprofielen van de gedeponeerde micro-organismen bleek niet succesvol ten gevolge van recoveryfouten van de gedeponeerde micro-organismen.

(a)

(b)



Figuur 4 Fasecontrastopnamen van zandkorrels van Leiduin (a) en DZH (b).

Tabel 7 Geschatte parameterwaarden door fitten van de doorbraakcurves aan het model met twee typen hechtingsplaatsen. Dimensies van snelheidscoëfficiënten dag⁻¹.

| Experiment | Filter/ Kolom | k_{att1} | k_{det1} | k_{att2} | k_{det2} | R^2 | $-^{10}\log\left(\frac{C}{C_0}\right)$ | λ |
|---|------------------|------------------|------------------|-------------|------------|-------|--|------------|
| Bacteriofaag MS2 | | | | | | | | |
| A | F1 | 130 ± 5,9 | 0,0046 ± 0,0041 | 18 ± 7,9 | 1,2 ± 0,9 | 80% | 3,1 | 132 |
| B | F1 | 71 ± 3,9 | 0,023 ± 0,0046 | 410 ± 150 | 210 ± 120 | 71% | 1,6 | 67 |
| C | F2 | 83 ± 3,8 | 0,013 ± 0,0040 | 280 ± 9,0 | 100 ± 10 | 92% | 1,9 | 81 |
| D | F2 | 72 ± 2,7 | 0,019 ± 0,0030 | 250 ± 10 | 150 ± 13 | 96% | 1,6 | 69 |
| C+D | F2 | 78 ± 3,0 | 0,017 ± 0,0030 | 248 ± 9,4 | 100 ± 9,5 | 91% | 1,8 | 75 |
| E | C1 | 7,0 ± 1,9 | 0,035 ± 0,0084 | 1,0 ± 0,070 | 1,9 ± 0,72 | 99% | 0,071 | 6,5 |
| F | C2 | 8,3 ± 1,4 | 0,085 ± 0,132 | 4,8 ± 2,3 | 7,7 ± 2,2 | 51% | 0,043 | 6,8 |
| G | F2W | 22 ± 1,8 | 0,0058 ± 0,00083 | 27 ± 4,6 | 6,7 ± 0,81 | 98% | 0,41 | 22 |
| I | F3 | 110 ± 1,4 | 0,0033 ± 0,00069 | 31 ± 4,5 | 5,1 ± 0,80 | 95% | 3,0 | 107 |
| J | F3 | 86 ± 1,2 | 0,0010 ± 0,00064 | 22 ± 2,9 | 2,7 ± 0,37 | 96% | 2,5 | 87 |
| K | F3 | 130 ± 2,0 | 0,042 ± 0,0064 | 56 ± 7,3 | 12 ± 3,3 | 90% | 3,2 | 115 |
| Escherichia coli WR1 | | | | | | | | |
| B | F1 | 91 ± 4,0 | 0,032 ± 0,0071 | 370 ± 23 | 330 ± 23 | 96% | 2,0 | 83 |
| C | F2 | 170 ± 3,2 | 0,040 ± 0,0059 | 380 ± 140 | 220 ± 110 | 96% | 3,5 | 152 |
| D | F2 | 110 ± 2,0 | 0,045 ± 0,0060 | 34 ± 2,0 | 6 ± 1 | 98% | 2,4 | 101 |
| E | C1 | 17 ± 2,4 | 0,042 ± 0,013 | 2,6 ± 0,80 | 20 ± 6,2 | 96% | 0,16 | 15 |
| F | C2 | 32 ± 1,0 | 0,016 ± 0,0026 | 5,9 ± 0,70 | 13 ± 1,4 | 99% | 0,19 | 31 |
| G | F2W | 110 ± 35 | 0,021 ± 0,11 | 130 ± 52 | 2,6 ± 2,9 | 56% | 1,6 | 87 |
| H | F1 | 170 ± 2,1 | 0,046 ± 0,0050 | 85 ± 15 | 6,0 ± 1,5 | 95% | 4,2 | 115 |
| I | F3 | 180 ± 3,3 | 0,042 ± 0,0094 | 80 ± 19 | 8,0 ± 3,1 | 91% | 4,5 | 165 |
| J | F3 | 110 ± 1,6 | 0,059 ± 0,012 | 51 ± 19 | 14 ± 8,1 | 90% | 2,4 | 86 |
| K | F3 | 210 ± 10 | 0,037 ± 0,020 | 50 ± 10 | 3,5 ± 2,2 | 65% | 5,0 | 185 |
| Streptococcus faecalis WR63 | | | | | | | | |
| E | C1 | 73 ± 3,0 | 0,11 ± 0,014 | 10 ± 1,6 | 4,8 ± 1,5 | 91% | 0,58 | 53 |
| F | C2 | 130 ± 6,0 | 0,013 ± 0,0030 | 61 ± 7,0 | 11 ± 3,2 | 89% | 0,75 | 123 |
| Sporen van Clostridium perfringens D10 | | | | | | | | |
| D10 | C1 | 160 ± 16 | 0,14 ± 0,091 | 91 ± 16 | 11 ± 4,2 | 72% | | |
| | C2 | 220 ± 14 | 0,075 ± 0,074 | 180 ± 19 | 11 ± 2,6 | 61% | | |
| Campylobacter lari | | | | | | | | |
| G | F2W | 230 ± 16 | 0,12 ± 0,053 | 100 ± 47 | 31 ± 33 | 46% | 3,7 | 3,9 |
| H | F1 | 200 ± 6,6 | 0,014 ± 0,016 | 180 ± 240 | 75 ± 110 | 36% | 5,3 | 4,8 |

R^2 is de correlatiecoëfficiënt.

4.4 Diepteprofielen

Tabel 8 toont de opbrengsten (%) van micro-organismen die direct van de zandmonsters vrijkwamen en van micro-organismen die daarna door gebruik van beefextract zijn vrijgekomen. Totale opbrengsten (som van de verschillende behandelingen) waren zeer variabel met een grote meetfout. Substantiële fracties van de bacteriofaag MS2, *E.coli* WR1 en *S. faecalis* WR63 waren verloren. Dit kan het gevolg zijn van het draineren van de kolommen direct voor de monsternamen. Kortgeleden werd gedemonstreerd dat gedeponeerde bacteriofagen vrijkwamen door een zich verplaatsende luchtwaterovergang wanneer een kolom werd gedraineerd (Torkzaban et al., 2006). Dit effect was onbekend op het moment van uitvoering van deze langzame zandfiltratie-experimenten. Bovendien, gedurende de tijd dat de kolommen gedraineerd werden en er een kern van zand werd uitgenomen, zouden deze bacteriofagen en bacteriën verloren geraakt kunnen zijn door inactivatie. Dit betreft niet de zeer persistente sporen en oöcysten (de enumeratie betrof niet slechts de levende deeltjes). De opbrengst van de sporen en oöcysten was ofwel volledig of hoger dan 100%. Dit laatste kan het gevolg zijn geweest van onnauwkeurigheden in de bepaling of doordat er aggregaten bestonden, die uiteen vielen.

Tengevolge van opbrengstfouten, gaf fitten van de doorbraakcurves samen met de diepteprofielen geen betrouwbare parameterschattingen. Echter, ondanks de meetfouten in detectie van gedeponeerde micro-organismen, is er consistentie in de direct vrijgekomen fractie in vergelijking met het totaal aan gedeponeerde micro-organismen. Deze fractie was ongeveer 30-45% voor de bacteriofagen (26 nm), 51-59% voor de sporen (1 µm), 81-90% voor WR1 (1,5 µm), 72-85% voor WR63 (1,5 µm), en 98-99% voor de oöcysten (5 µm). Deze fractie neemt dus toe met de grootte van de micro-organismen. Zonder zeefwerking zouden de concentraties micro-organismen als gevolg van direct vrijkomen consistent met de waargenomen lage onthechtingssnelheden in de kolomexperimenten moeten zijn, dat wil zeggen in evenwicht met $C = (k_{\text{det}} \rho_B S) / (k_{\text{att}} n)$. Omgekeerd, als de hoge concentraties micro-organismen het gevolg zijn van het direct vrijkomen, dan betekent dit dat depositie niet door hechting was bepaald.

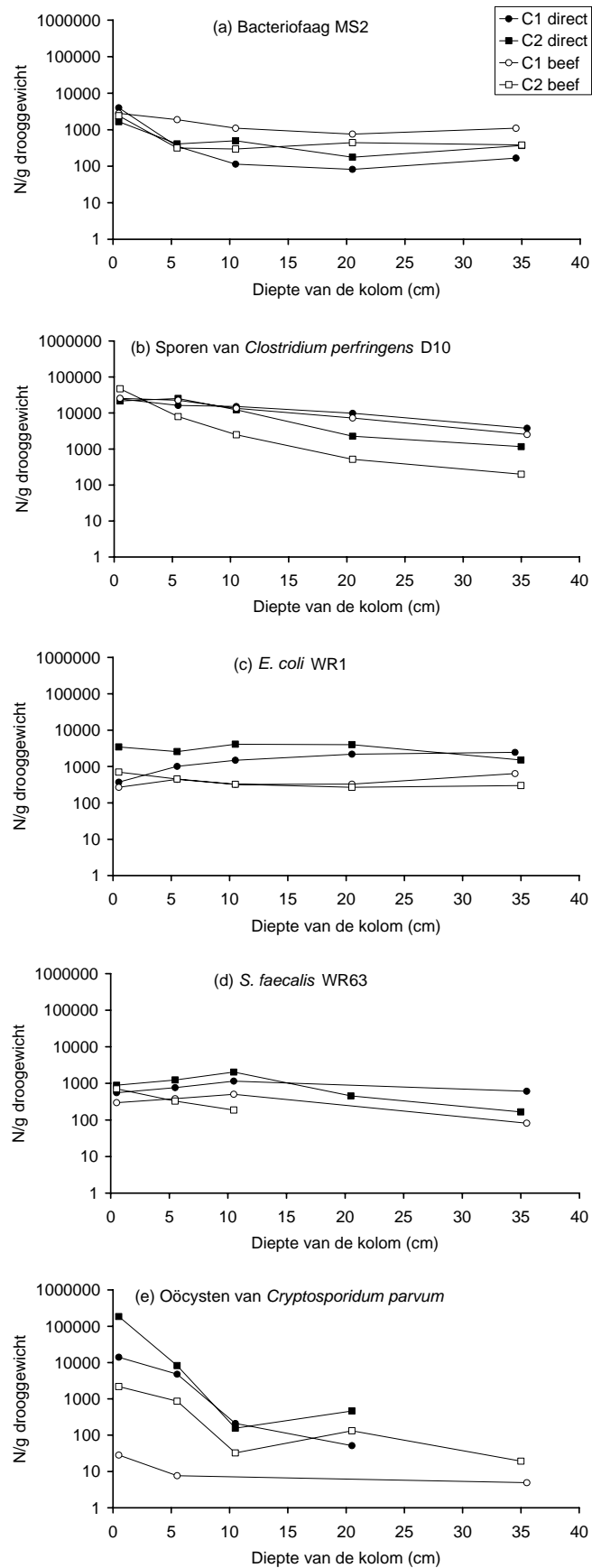
Aangenomen dat de micro-organismen die direct vrijkwamen waren gedeponeerd door zeefwerking en dat de micro-organismen die vrijkwamen door beefextract gehecht waren, geven de gegevens in Tabel 8 aan dat zeefwerking significant belangrijker werd naarmate het micro-organisme groter is. Zeefwerking bepaalde voor minder dan de helft de depositie van MS2. Ongeveer evenveel depositie van de sporen werd veroorzaakt door zeefwerking en hechting. De bacteriën (WR1 en WR63) werden enkele malen meer door zeefwerking dan door hechting tegengehouden. Bijna alle oöcysten werden door zeefwerking tegengehouden. Merk op dat behalve voor de oöcysten, de fracties van direct vrijgekomen deeltjes ten opzichte van het totaal aantal tegengehouden deeltjes hoger was voor kolom C2 dan voor C1. Men verwacht meer zeefwerking in C1, omdat de korrelgrootte van C1 (0,27 mm) kleiner was dan die van C2 (0,53 mm). Echter in kolom C2 vond meer hechting plaats (beefextractgegevens in Tabel 7) en de fractie van gezeefde deeltjes in kleine poriën en bij korrel-korrel-knooppunten kan versterkt zijn geweest door zwakke chemische interacties met vaste oppervlakken (dat wil zeggen hechting in zogenaamde secundaire energiminima). De potentiële rol van chemische interacties op zeefwerking is nog niet systematisch onderzocht of vermeld in de literatuur.

Figuren 5a – 5e tonen de diepteprofielen van de micro-organismen in de zandkolommen. De vorm van de depositieprofielen bleek zeer afhankelijk van het micro-organisme. Concentraties van vrijgekomen MS2-deeltjes waren het hoogst in de eerste centimeters van de kolommen en namen sneller af in de eerste vijf centimeters dan daarna. De ruimtelijke

verdeling van D10-sporen vertoont een constantere afname met diepte van de kolom. De ruimtelijke verdeling van de gedeponeerde bacteriën WR1 en WR63 vertoonde een bijna constant concentratieniveau door de kolommen met een piek (niet-monotoon profiel). De gedeponeerde concentraties oöcysten namen snel af met de diepte en zou hyperexponentieel kunnen zijn. De ruimtelijke verdeling van de door beefextract vrijgemaakte oöcysten laat zien dat ze evenwel tot tenminste 35 cm in de kolommen waren doorgedrongen en dus de kolommen kunnen passeren, zij het in zeer lage concentraties. Ruimtelijke verdelingen die hyperexponentieel zijn, kunnen het gevolg zijn van irreversibele zeefwerking (Bradford et al., 2005). Niet-monotone depositieprofielen voor een pathogene bacterie (*E. coli* O157:H7) werden toegeschreven aan reversibele zeefwerking (Bradford et al., 2006). In dat geval werd aangenomen dat bacteriën die als aggregaten in poriën zaten, weer gemobiliseerd werden door de schurende werking van de waterstroom.

Tabel 8 Opbrengsten (%) van de micro-organismen vrijgekomen van de zandkolommen

| Kolom | Kolom-effluent | Direct vrijgekomen | Beef extract | Totale opbrengst | Direct vrijgekomen / totaal gedeponerd |
|--|----------------|--------------------|--------------|------------------|--|
| <i>Bacteriofaag MS2 (grootte 26 nm, Penrod et al., 1996)</i> | | | | | |
| C1 | 73% | 0,26% | 0,63% | 74% | 30% |
| C2 | 82% | 0,43% | 0,53% | 83% | 45% |
| <i>Sporen van C. perfringens D10 (grootte 1 µm, Tisa et al., 1982)</i> | | | | | |
| C1 | 3,1% | 47% | 45% | 95% | 51% |
| C2 | 0,69% | 123% | 84% | 208% | 59% |
| <i>E. coli WR1 (grootte 0.4 × 2,6 µm, Schijven et al., 1999)</i> | | | | | |
| C1 | 63% | 0,89% | 0,20% | 64% | 81% |
| C2 | 41% | 3,1% | 0,33% | 44% | 90% |
| <i>S. faecalis WR63 (grootte 0.4 × 2,6 µm, Schijven et al., 1998)</i> | | | | | |
| C1 | 8,1% | 26% | 10% | 44% | 72% |
| C2 | 6,0% | 75% | 13% | 94% | 85% |
| <i>Oöcysten van Cryptosporidium (4 – 6 µm, et al.,)</i> | | | | | |
| C1 | 0% | 169% | 0,39% | 169% | 99% |
| C2 | 0% | 118% | 2,4% | 120% | 98% |



Figuur 5a-e Diepteprofielen van gedeponeerde micro-organismen in kolommen C1 en C2.

4.5 Zetapotentialmetingen aan zand en micro-organismen

In de containers van een deel van de onbehandelde zandmonsters was er een duidelijke scheiding waarneembaar tussen zand en een donkere smurrie (Schmutzdecke en rijpingsmateriaal). Dit werd aangetroffen in de eerste 10 centimeters van F3 van Leiduin en in alle monsters van F2 van Weesperkarsel en niet in het zand van F4 van Scheveningen. Ook van dat materiaal is de zetapotential bepaald (Tabel 9).

De zetapotentialen van de zandmonsters (inclusief de behandelde monsters) lagen alle tussen -32 en -51 mV en zijn daarmee redelijk constant te noemen (Tabel 9). De standaarddeviaties voor alle zandmonsters lag rond 4 mV. De zetapotentialen van het rijpingsmateriaal verschillen ook niet van de eerste tien centimeters van de overeenkomstige zandmonsters.

De zetapotentialen van de behandelde en onbehandelde zandmonsters waren nagenoeg gelijk en ook vergelijkbaar met die van het pure kwartzand. Dat houdt in dat er op de zandoppervlakken geen metaaloxides waren als plaatsen met positieve lading (Foppen en Schijven, 2005). Op grond daarvan is er sprake van ongunstige condities voor hechting van de negatief geladen micro-organismen door elektrostatische afstoting (Schijven, 2001). Echter, als gevolg van roosterimperfecties van de zandkorrels, kan er toch nog sprake zijn van heterogeen verdeelde elektrische lading van de korreloppervlakken. De zetapotential geeft de totale lading van een deeltje, maar niet de ladingsverdeling op het oppervlak. De eventuele aanwezigheid van deze roosterimperfecties kunnen leiden tot significante hechting (Ryan et al., 1999).

De zetapotentialen van de micro-organismen zijn alle negatief. In het algemeen is *E. coli* WR1 het meest negatief geladen, gevolgd door de sporen, *C. lari* en tenslotte *C. jejuni*.

In het algemeen zijn de zetapotentialen van deze micro-organismen minder negatief in het snelfiltraat van Leiduin dan in het koolfiltraat. In het koolfiltraat van Weesperkarspel zijn de zetapotentialen nog wat sterker elektronegatief met uitzondering van de sporen.

Tabel 9 Zetapotential van zandmonsters van verschillende diepten uit langzame zandfilters.

| | Zetapotential (mV) | | |
|---------------------------------------|--------------------|--------------------------------------|--------------------------------------|
| | Onbehandeld zand | Behandeld zand (12 M HCl, 550 °C) | Schmutzdecke en rijpingsmateriaal |
| Leiduin proeffilter F3 | | | |
| Kwartscontrole | -45 ± 5,0 | -37 ± 2,5 | -36 ± 6,5 |
| 0 – 5 cm | -42 ± 5,0 | -37 ± 2,7 | -32 ± 7,3 |
| 5 – 10 cm | -39 ± 3,2 | -41 ± 3,0 | |
| 10 – 20 cm | -32 ± 5,0 | -42 ± 3,1 | |
| 20 – 30 cm | -42 ± 3,8 | -46 ± 3,7 | |
| 50 cm – bodem | -43 ± 3,6 | -40 ± 3,6 | |
| Bodem | -44 ± 4,3 | -41 ± 3,8 | |
| Scheveningen praktijkfilter F4 | | | |
| Kwartscontrole | -47 ± 5,6 | -44 ± 5,1 | |
| 0 -2 cm | -48 ± 6,8 | -45 ± 3,7 | |
| 2 – 10 cm | -51 ± 4,0 | -48 ± 4,6 | |
| 10 – 20 cm | -47 ± 4,4 | -47 ± 4,0 | |
| 20 – 30 cm | -46 ± 4,7 | -49 ± 4,3 | |
| 30 – 40 cm | -48 ± 3,5 | -47 ± 3,3 | |
| Weesperkarspel proeffilter F1 | | | |
| Kwartscontrole | -45 ± 2,3 | -45 ± 2,3 | -45 ± 2,3 |
| 0 – 2 cm | -40 ± 3,7 | -38 ± 2,3 | -42 ± 4,5 |
| 2 – 5 cm | -41 ± 2,6 | -43 ± 2,3 | -35 ± 3,5 |
| 5 – 10 cm | -35 ± 3,6 | -45 ± 3,2 | -39 ± 4,5 |
| 10 – 20 cm | -42 ± 3,5 | -43 ± 3,3 | -37 ± 5,9 |
| 20 – 50 cm | -44 ± 3,5 | -46 ± 3,9 | -41 ± 5,6 |

Tabel 10 Zetapotential van de micro-organismen in influent

| | Leiduin snelfiltraat | Leiduin na snelfiltratie / ozon / actief kool | Weesperkarspel na snelfiltratie / ontharding / ozon / actief kool |
|---|-------------------------|---|---|
| <i>Escherichia coli</i> WR1 | -22 ± 1,3 | -29 ± 2,2 | -35 ± 1,5 |
| <i>Campylobacter jejuni</i> | -13 ± 0,7 | -13 ± 0,8 | -17 ± 0,8 |
| <i>Campylobacter lari</i> | -15 ± 1,9 | -23 ± 1,7 | -29 ± 1,2 |
| Sporen van <i>Clostridium perfringens</i> D10 | -20 ± 2,0 | -33 ± 2,5 | -13 ± 1,9 |

4.6 Biologische activiteit filtermateriaal

Tabel 11 geeft de resultaten weer van de ATP-metingen en het koloniegetal bij 25 °C (heterotrofe bacteriën) als maten voor biologische activiteit in het zand uit praktijkfilter F4 en proeffilter F3. Voor alle parameters werden in de bovenste lagen van de filters de hoogste concentraties gemeten. In het praktijkfilter zijn de concentraties heterotrofe bacteriën ongeveer een factor 10 hoger dan in het proeffilter, terwijl de ATP-concentraties bovenin beide filters ongeveer hetzelfde zijn. De reden hiervoor kan liggen in lagere kweekbaarheid van de bacteriën uit de proeffilters dan uit de praktijkfilters op het gebruikte medium. Kweekbaarheid van bacteriën uit natuurlijke milieus is meestal zeer laag en wordt bepaald door vele factoren zoals de samenstelling van de microbiële gemeenschap, kweekmethodes, enzovoorts. ATP-metingen zijn hiervoor minder gevoelig en geven daarom een betere indicatie van de totale biologische activiteit dan het aantal heterotrofe bacteriën (Magic-Knezev en Van der Kooij, 2004).

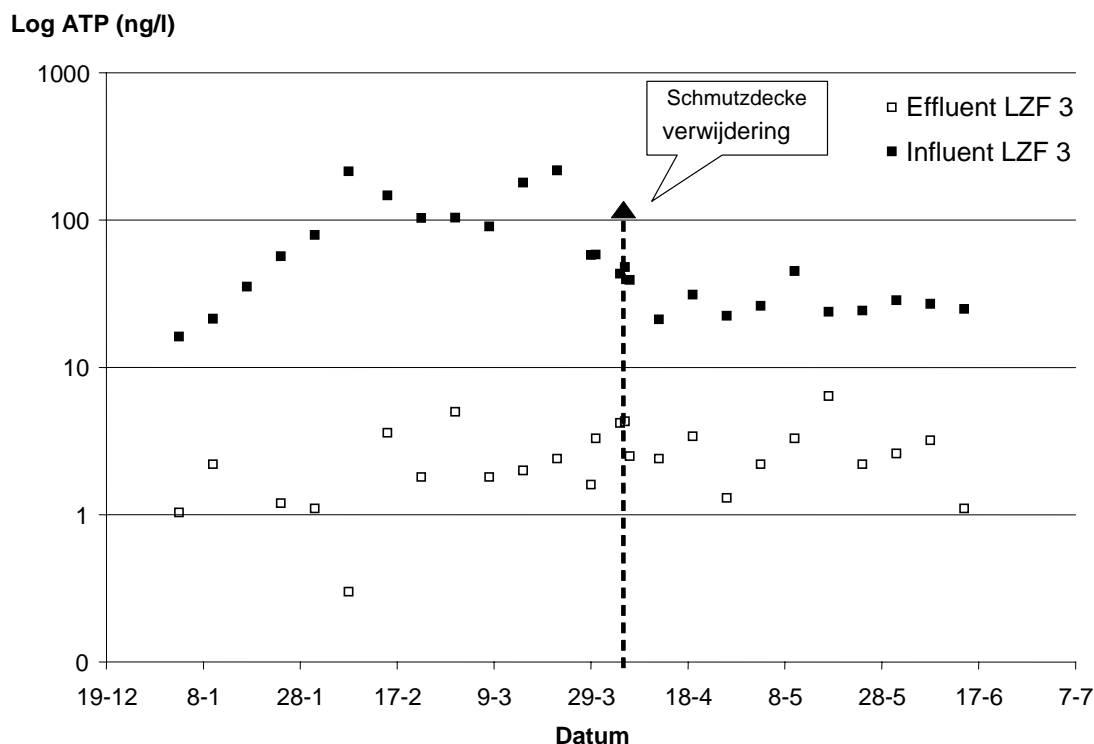
De ATP-concentraties over de hele filterlengte van praktijkfilter F4 zijn ook ongeveer hetzelfde als die gemeten in het zand van de praktijkfilters van pompstation Katwijk (interne communicatie). De ATP-concentratie in de diepere delen in proeffilter F3 zijn iets hoger dan die in praktijkfilter F4. Dit verschil is niet zo groot en in het algemeen kan worden geconcludeerd dat de biologische activiteit in de proeffilters in dezelfde orde van grootte is als in de praktijkfilters.

Uit de chemische gegevens over het filterzand (Tabel 12) blijkt dat in het praktijkfilter de gehaltes van calcium, ijzer en organische stof in de bovenste lagen veel hoger zijn dan in de proeffilters.

De ATP-concentraties in beide filters zijn evenals ATP-concentraties in biofilms in het distributiesystemen vrij laag (Magic-Knezev et al., 2004). In koolfilters en snelfilters zijn de ATP-concentraties veel hoger (tot 5000 ng/ g GAC), wat aangeeft dat de biologische activiteit in langzame zandfilters lager is dan in koolfilters en snelfilters (Magic-Knezev en Van der Kooij, 2004).

Tabel 11 Biologische activiteit in het zand van praktijkfilter F4 en proeffilter F3.

| | ATP | Koloniegetal | Ca-HCl | Fe | C | N |
|--------------------------|--------------|-------------------|--------------------|------|-------|--------|
| | (ng/ml zand) | 25 °C | (mg/kg droog zand) | | | |
| <i>Praktijkfilter F4</i> | | | | | | |
| 0 – 2 cm | 51 | $1,7 \times 10^7$ | 18690 | 3890 | 0,285 | 0,0305 |
| 2 – 10 cm | | | 8010 | 1575 | 0,156 | 0,0249 |
| 10 – 20 cm | 16 | $4,1 \times 10^8$ | 3280 | 1600 | 0,078 | 0,032 |
| 20 – 30 cm | 20 | $2,5 \times 10^7$ | 4260 | 1470 | 0,06 | 0,054 |
| 30 – 40 cm | 9 | $8,8 \times 10^7$ | 725 | 1315 | 0,067 | 0,047 |
| <i>Proeffilter F3</i> | | | | | | |
| 0 – 5 cm | 58 | $2,7 \times 10^6$ | 480 | 1385 | 0,113 | 0,0095 |
| 5 – 10 cm | 64 | $1,4 \times 10^6$ | 490 | 1640 | 0,076 | 0,0041 |
| 10 – 20 cm | 49 | $1,9 \times 10^6$ | 585 | 2165 | 0,069 | 0,0049 |
| 20 – 30 cm | 45 | $2,1 \times 10^6$ | 550 | 1445 | 0,069 | 0,0049 |
| 50 cm | 22 | $2,0 \times 10^6$ | 605 | 1570 | 0,054 | 0,0041 |
| Bodem (1,5 m) | 16 | $1,5 \times 10^6$ | 510 | 2255 | 0,053 | 0,0044 |



Figuur 6 ATP-concentraties (ng/l) in influent en effluent proeffilter F3 in de periode van januari tot juli 2005.

Tabel 12. ATP-concentraties (ng/l) in influent en effluent van proeffilter F3 in de periode januari tot juli 2005

| | Influent | Effluent |
|-----------|----------|----------|
| Gemiddeld | 2,6 | 71 |
| Mediaan | 2,3 | 43 |
| Minimum | 0,3 | 21 |
| Maximum | 6,4 | 220 |

ATP-concentraties in het influent en effluent van F3 van de proefinstallatie te Leiduin zijn weergegeven in Tabel 12 en Figuur 6. De ATP-concentraties in het influent zijn variabel en één tot twee ordes van grootte hoger dan die in het effluent. ATP-concentraties in het effluent zijn laag en variëren minder. Na verwijdering van de Schmutzdecke is er sprake van een daling van de ATP-concentraties in het influent (de laag water direct boven het filter), maar dit is niet van invloed op de ATP-concentraties in het effluent.

5 Discussie en conclusies

5.1 Verwijdering

In dit onderzoek werd verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie onderzocht in proefinstallatiefilters en in kolomexperimenten.

De hoofddoelstelling was de verwijdering door langzame zandfiltratie te bepalen van pathogene micro-organismen en van indicatororganismen om te gebruiken in de kwantitatieve microbiologische schatting van het infectierisico door consumptie van drinkwater. Het bleek dat bacteriofaag MS2 het minst werd verwijderd door langzame zandfiltratie, ook in de aanwezigheid van een Schmutzdecke en bij lage temperatuur ($< 10\text{ }^{\circ}\text{C}$), namelijk $1,7 - 2,2\text{ }^{10}\text{log}$. Bij $7\text{ }^{\circ}\text{C}$ was de verwijdering van bacteriofaag MS2 slechts $0,57\text{ }^{10}\text{log}$. Bacteriofaag MS2 kan worden beschouwd als een conservatief modelvirus voor hechting (Schijven en Hassanizadeh, 2000). De conclusies zijn dus dat virussen de micro-organismen zijn, die het minst worden verwijderd door langzame zandfiltratie en dat hun verwijdering bij lagere watertemperatuur minder effectief is.

In de aanwezigheid van een Schmutzdecke was verwijdering van *E. coli* ongeveer $2\text{ }^{10}\text{log}$ hoger dan die van bacteriofaag MS2. Dit geldt waarschijnlijk ook voor andere bacteriën, omdat *E. coli* sterk negatief geladen is en daardoor als conservatieve modelbacterie kan worden beschouwd. *Campylobacter lari* werd even goed of beter verwijderd dan *E. coli*. Omdat de meer menspathogene *Campylobacter jejuni* minder sterk negatief geladen bleek dan *C. lari* kan worden verwacht dat *C. jejuni* meer verwijderd wordt dan *C. lari*. We kunnen hierdoor veronderstellen dat *E. coli* een goede procesindicator is voor andere (ziekteverwekkende) bacteriën. Bij ongeveer $10\text{ }^{\circ}\text{C}$ en in aanwezigheid van een Schmutzdecke kan tenminste $4\text{ }^{10}\text{log}$ -verwijdering van bacteriën worden behaald.

Verwijdering van de in de kolomexperimenten gebruikte micro-organismen gaf een sterke onderschatting van de verwijdering door de proefinstallatiefilters, waarschijnlijk door het stapelen van kolommen en het ontbreken van de Schmutzdecke. Echter, de volgorde in verwijdering van de verschillende micro-organismen is hetzelfde in de zandfilters en de kolommen, namelijk $\text{MS2} < \text{WR1} < \text{WR63} < \text{sporen} < \text{oöcysten}$. *S. faecalis* WR63 werd veel meer verwijderd dan *E. coli*, vermoedelijk door verschillen in oppervlaktelading en/of hydrophobiciteit. De *Cryptosporidium*-oöcysten werden bijna geheel verwijderd met een ^{10}log -verwijdering van $5,3$ tot $6,5$. In langzame zandfilters op praktijkschaal zal door de Schmutzdecke de verwijdering van oöcysten nog veel meer zijn. Langzame zandfiltratie is daarom een zeer effectieve zuiveringsstap voor de verwijdering van oöcysten van *Cryptosporidium* en de nog grotere cysten van *Giardia*.

Afhankelijk van de mate waarin locatiespecifieke bedrijfscondities overeenkomen met de condities van experimenten in dit onderzoek kunnen de gemeten verwijderingen worden toegepast in de kwantitatieve microbiologische risicoschatting.

5.2 Watertemperatuur

Bij lage watertemperatuur ($< 10\text{ }^{\circ}\text{C}$) was er geen significant effect van de Schmutzdecke op de verwijdering van MS2, maar wel voor *E. coli*. Bij hogere temperatuur van ongeveer $13 - 16\text{ }^{\circ}\text{C}$ maakt de Schmutzdecke wel uit voor de verwijdering van bacteriofaag MS2, namelijk $0,6\text{ }^{10}\text{log}$. Bij hogere temperatuur blijkt een zandfilter als geheel effectiever te werken. In plaats van $1,7 - 2,2\text{ }^{10}\text{log}$ bij $9 - 12\text{ }^{\circ}\text{C}$ is de verwijdering van bacteriofaag MS2

bij 16 °C 3,5 – 3,9 ¹⁰log en voor *E. coli* WR1 neemt de verwijdering toe van 3,9 – 4,2 ¹⁰log naar 5,6 ¹⁰log in aanwezigheid van de Schmutzdecke. Waarschijnlijk verhoogt de temperatuur de inactivatiesnelheid van MS2 in combinatie met de biologische activiteit (bijvoorbeeld predatie) in de Schmutzdecke. Echter, de Schmutzdecke is slechts enkele centimeters dik en MS2 passeert deze snel. Daarom is het waarschijnlijk dat de inactivatie van MS2 door het hele filter heen toeneemt.

Een experiment om de verwijdering van micro-organismen bij een temperatuur van 0-2 °C vast te stellen was beoogd, maar de weersomstandigheden bleken niet zodanig te zijn, zodat hierover gegevens verzameld konden worden.

5.3 Schmutzdecke

De aanwezigheid van een Schmutzdecke had bij lage temperatuur weinig effect op de verwijdering van bacteriofaag MS2, maar resulteerde in een verschil van ongeveer 2 ¹⁰log- verwijdering van *E. coli*. Omdat beide micro-organismen negatief geladen zijn, maar *E. coli* twee ordes groter is dan bacteriofaag MS2 en omdat de permeabiliteit van een Schmutzdecke geleidelijk afneemt, is dit een sterke aanwijzing dat bacteriën in de Schmutzdecke voornamelijk door zeefwerking worden tegengehouden.

In de experimenten van 2005 bleek dat binnen 53 dagen de Schmutzdecke van F3 weer hersteld was, omdat verwijdering van bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 inmiddels zelfs hoger waren dan net voor het afschrappen van de Schmutzdecke. Dit verschil is het gevolg van de combinatie van een herstelde Schmutzdecke en een hogere temperatuur. Oorspronkelijk waren er drie experimenten gepland na het afschrappen van de Schmutzdecke, maar omdat na 53 dagen de verwijdering dusdanig was, was een extra experiment niet meer nodig. Onbekend is nu hoeveel eerder de Schmutzdecke al hersteld zou kunnen zijn.

5.4 Doseerconcentratie

Bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1 werden over een groot concentratiebereik gedoseerd op het langzame zandfilter, maar er werd geen significant effect van de doseerconcentratie op de verwijdering door langzame zandfiltratie gevonden. In de praktijk zal het bovendien niet voorkomen dat dergelijke hoge concentraties een langzaam zandfilter belasten. Voor de effectiviteit van een langzaam zandfilter speelt de concentratie micro-organismen daarom geen rol. Echter in het geval van zeer persistente micro-organismen als clostridiumsporen is de gemeten verwijdering wel afhankelijk van de aantallen die geaccumuleerd kunnen zijn in het filter.

5.5 Vergelijking DZH en Waternet

Langzame zandfiltratie met zand van DZH (duinzand) en Waternet (zilvezand in Leiduin en rivierzand in Weesperkarspel) werden op twee manieren vergeleken. In eerste instantie op grond van kolomexperimenten, waarbij de kolommen geconstrueerd waren met zandmonsters van verschillende diepten uit langzame zandfilters, maar waarbij geen Schmutzdecke aanwezig was en in tweede instantie op proefinstallatieschaal te Leiduin, waarbij de proeffilters voldoende gerijpt waren, een Schmutzdecke bevatten en qua bedrijfscondities nauw overeenkwamen met de praktijkfilters.

Op grond van de kolomexperimenten bleek bacteriofaag MS2 in beide kolommen evengoed te worden verwijderd, maar werden de bacteriën beter verwijderd door het zand van DZH dan

van Waternet. Aangezien de korrels van het DZH-zand groter zijn dan die van het Waternetzand en dat deze korrels geen ruwer oppervlak hebben, ligt het voor de hand aan te nemen dat er meer hechting in het DZH-zand plaatsvindt dan in het Waternetzand. Dit wordt ondersteund door de waarneming dat het DZH-zand meer ijzeroxiden waaraan hechting kan plaatsvinden, bevat. De diepteprofielgegevens gaven echter ook een aanwijzing dat er meer zeefwerking in DZH-zand dan in Waternetzand plaatsvond, wat geassocieerd zou kunnen zijn met de hogere hechting aan het DZH-zand.

Hoewel de kolomexperimenten van nut waren om de verwijdering van micro-organismen onderling te vergelijken, bleek dat verwijdering in deze kolommen relatief minder was dan op proefinstallatie- of praktijkschaal. De reden hiervoor is ondermeer het ontbreken van de Schmutzdecke, maar zeer waarschijnlijk ontbrak ook zogenaamd rijpingsmateriaal (het materiaal in het filter, direct onder de Schmutzdecke).

Op proefinstallatieschaal bleek dat het zand van DZH en Waternet nagenoeg even effectief micro-organismen verwijderden.

5.6 Kwaliteit influent

Er werd geen direct effect van de influentwaterkwaliteit op de verwijdering van de micro-organismen door langzame zandfiltratie gevonden op de bestudeerde locaties. In experimenten B (F1 zonder Schmutzdecke, influent na snelfiltratie, ozonisatie en actief koolfiltratie) en D (F2 zonder Schmutzdecke, snelfiltraat) was de verwijdering van bacteriofaag MS2 hetzelfde. Voor *E. coli* WR1 was de verwijdering ongeveer hetzelfde, bij hoge doseerconcentratie was de verwijdering door F2 0,5 ¹⁰log hoger, maar dit hoeft niet significant te zijn.

De zetapotentialen van de micro-organismen waren in het algemeen sterker negatief in het water na ozonisatie en actief koolfiltratie dan in het snelfiltraat en nog negatiever als er ook onthard is. Dit zou in kunnen houden dat in de langzame zandfilters na ozonisatie (ontharding) en actief koolfiltratie minder hechting op kan treden.

De waterkwaliteit kan ook van invloed zijn op de vorming van de Schmutzdecke, omdat het effluent van koolfiltraat minder substraat voor groei van micro-organismen bevat dan snelfiltraat.

5.7 Verwijderingprocessen en modellering

De experimenten op proeffilters en de kolommen hebben in combinatie met de modellering van doorbraakcurves en diepteprofielen nader inzicht gegeven in de verwijderingprocessen. De bijdrage van inactivatie van de micro-organismen in het water tijdens de passage door een langzaam zandfilter in 1,3 uur aan de totale verwijdering is te verwaarlozen. Echter, inactivatie van de micro-organismen die door hechting en/of zeefwerking achterblijven en/of vertraagd worden in hun transport, is wel van betekenis.

Op grond van een model met twee typen hechtingsplaatsen zou hechting aan plaatsen van type 1 het meest bepalend zijn voor de verwijdering. Er zijn echter sterke aanwijzingen dat zeefwerking ook een belangrijke rol speelt. De eerste aanwijzing daartoe werd gevonden in het verschil in effect van de aanwezigheid van de Schmutzdecke voor *E. coli* WR1 en bacteriofaag MS2 (zie paragraaf 4.3). Bovendien bleek de verhouding tussen de direct vrijgekomen micro-organismen (zeefwerking) en die door behandeling met beefextract (hechting) van zandmonsters van de kolommen toe nemen met de grootte van het micro-organisme. De diepteprofielen uit de kolomproeven wezen aan dat door zeefwerking virussen

voor 30 – 45% werden tegengehouden, bacteriesporen voor 51 – 59%, bacteriën voor 72 – 90% en oöcysten voor 98 – 99%.

Echter, om zeefwerking te kwantificeren zijn goede diepteprofielmetingen nodig. Deze metingen zijn niet uitgevoerd op proefinstallatieschaal voor de bacteriofagen en bacteriën. Naar verwachting speelt zeefwerking een nog veel belangrijkere rol in de Schmutzdecke.

6 Aanbevelingen

Er is waargenomen dat de verwijderingen van micro-organismen door langzame zandfiltratie toenemen met hogere temperatuur. Het beoogde experiment bij de laagst mogelijke watertemperatuur (0 – 2 °C) te Weesperkarspel bleek in de betreffende winter niet uitvoerbaar. Gezien de relatie met de temperatuur is het zinvol dit experiment toch nogmaals te plannen, omdat een dergelijke lage temperatuur wel degelijk kan voorkomen.

Voor bacteriën en grotere micro-organismen is een goed werkende Schmutzdecke van belang. Ook bij hogere temperaturen is dit van nut voor de verwijdering van virussen. De experimenten hebben laten zien dat binnen 53 dagen de Schmutzdecke hersteld was, mogelijk was dit al eerder het geval. Het verdient aanbeveling dat alsnog te onderzoeken en daarbij tevens uit te vinden welke periode in het jaar het meest gunstig is voor herstel. Opgemerkt dient te worden dat opbouw van de Schmutzdecke sterk afhankelijk is van de influentwaterkwaliteit. Het is zinvol te weten hoe het vormingsproces van een Schmutzdecke versneld zou kunnen worden en goed beheerst.

Afhankelijk van het type micro-organisme, blijkt zeefwerking een belangrijk verwijderingsproces bij langzame zandfiltratie te zijn. De mate van zeefwerking is naar verwachting het sterkst in de Schmutzdecke en voor de grotere micro-organismen. Tot dusver is de mate van zeefwerking in de Schmutzdecke onvoldoende gekwantificeerd. De diepteprofielen voor de verschillende micro-organismen (bacteriofagen, sporen, bacteriën en oöcysten) waren verschillend van vorm, hetgeen nog niet verklaard is. Nader onderzoek naar de mate en de mechanisme van zeefwerking in samenhang met de rol van predatie is gewenst.

Verder kan het worden genoemd dat het op proefinstallatie- en praktijkschaal nog onduidelijk is wat het effect is van de filtratiesnelheid. Naast temperatuur en filtratiesnelheid is ook korrelgrootte een belangrijke procesparameter die van invloed is op de effectiviteit van langzame zandfiltratie. 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 (Anonymous, 2005). Op deze wijze kunnen metingen en instelwaarden van procescondities zoals watertemperatuur, filtratiesnelheid en korrelgrootte van het filterzand worden meegenomen om de verwijdering te voorspellen en kunnen dergelijke bedrijfsgegevens derhalve worden meegenomen in de kwantitatieve microbiologische risicoschatting.

Dankwoord

Onze dank gaat uit naar Harold van den Berg (RIVM), Ronald Italiaander (RIVM), Anke Brouwer (Kiwa Research), Mike Gillebaard en Karin Bosklopper van Waternet.

Onze dank aan Jan Willem Foppen (UNESCO-IHE) voor zetapotentiaalmetingen zand en micro-organismen.

Literatuur

- Amy G, Carlson K, Collins MR, Drewes J, Gruenheid S, Jekel M. Intergrated comparison of biofiltration in engineered versus natural systems. In: Recent progress in slow sand and alternative biofiltration processes. Ed.: Gimbel R, Graham JD, Collins MR. IWA, Mülheim, 2006, 1, pp 3-11.
- Anonymous, Besluit van 9 januari 2001 tot wijziging van het waterleidingbesluit in verband met de richtlijn betreffende de kwaliteit van voor menselijke consumptie bestemd water. Staatsblad van het Koninkrijk der Nederlanden, 2001, 31:1-53.
- Anonymous. Inspectierichtlijn – Analyse microbiologische veiligheid drinkwater. Artikelcode 5318. VROM Inspectie, 2005.
- Bradford SA, Bettahar M, Simunek J, Van Genuchten MT. Straining and attachment of colloids in physically heterogeneous porous media. *Vadose Zone J* 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, 2242-2250.
- Bradford SA, Simunek J, Walker SL. Transport and deposition of *E.coli* O157:H7 in saturated porous media. *Wat Resourc Res*, 2006 submitted.
- Bradford, SA, Bettahar M. Straining, attachment and detachment of *Cryptosporidium* oocysts in saturated porous media. *J Environ Qual*, 2005, 34, 469-478.
- Foppen JWA, Schijven JF. Transport of *E. coli* in columns of geochemically heterogeneous sediment. *Wat Res* 2005, 39, 3082-3088.
- Havelaar AH, Hogeboom WM, Pot R. F-specific RNA-bacteriophages in sewage: methodology and occurrence. *Wat Sci Tech*, 1984, 17, 645-655.
- Hijnen WAM, Dullemeijer YJD, Schijven JF, Hanzens-Brouwer AJ, Rosielle M, Medema G. Removal and fate of *Cryptosporidium parvum*, *Clostridium perfringens* and small-sized centric diatoms (*Stephanodiscus hantzschii*) in slow sand filters. *Water Res*, 2007, in druk.
- 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), 147-54.
- Hijnen WAM, Schijven JF. De eliminatiecapaciteit van langzame zandfiltratie voor micro-organismen – Proefinstallatie en laboratoriumonderzoek. Kiwa/RIVM rapport, BTO 2002, 133.
- Hijnen WAM, Van der Speld WMH, Houtepen FAP, Van der Kooij D. Spores of sulfite-reducing clostridia: a surrogate parameter for assessing the effects of water treatment on protozoan oocysts? In: 1997 International Symposium on waterborne *Cryptosporidium*, Fricker CR, Clancy JLF, Rochelle PA (ed.), American Water Works Association, Denver USA, pp. 115-126.
- Hijnen WAM, Van der Veer AJ, Van Beveren J, Medema GJ. Spores of sulphite-reducing clostridia (SSRC) as surrogate for verification inactivation capacity of full-scale ozonation for *Cryptosporidium*. *Wat Sci Tech Wat Sup* 2002, 2(1), 163-170.
- ISO (International Organization for Standardization). Water quality - Detection and enumeration of bacteriophages - Part 1: Enumeration of F-specific RNA-bacteriophages, ISO 10705-1, 2000, Geneva.
- Magic-Knezev A, Kooij van der D. Optimisation and significance of ATP analysis for measuring active biomass in granular activated carbon filters used in water treatment. *Wat Res* 2004, 38 (18), 3971-3979.
- NEN 6564. Bacteriologic analysis of drinking water – Enumeration of faecal streptococci by membrane filtration, Dutch Normalisation Institute, 1982, Delft.
- Penrod, S.L., Olson, T.M., Grant, S.B. 1996. Deposition kinetics of two viruses in packed beds of quartz granular media, *Langmuir*, 12, 5576-5587.

- Roda Husman AM de, Medema, GJ. Inspectorate Guideline - Assessment of the microbial safety of drinking water, Inspectorate of the Ministry of Housing, Physical Planning and the Environment, 2005, Art. 5318, The Hague.
- Ryan JN, Elimelech M, Ard RA, Harvey RW, Johnson PR. Bacteriophage PRD1 and silica colloid transport and recovery in an iron oxide-coated sand aquifer. *Environ Sci Technol*, 1999, 33, 63-73.
- Schijven JF, Bruin de HAM, Hassanizadeh SM, Roda Husman AM de. Bacteriophages and clostridium spores as indicator organisms for removal of pathogens by passage through saturated dune sand. *Wat Res*, 2003, 37, 2186-2194.
- Schijven JF, Hassanizadeh SM, Bruin HAM de. Two-site kinetic modeling of bacteriophages transport through columns of saturated dune sand. *J Contam Hydrol*, 2002, 57, 259-279.
- Schijven JF, Hassanizadeh SM. Removal of viruses by soil passage: overview of modeling, processes and parameters. *Crit Rev Environ Sci Tech*, 2000, 31, 49-125.
- Schijven JF, Hoogenboezem W, Hassanizadeh SM, Peters JH. Modelling removal of bacteriophages MS2 and PRD1 by dune infiltration at Castricum, the Netherlands, *Wat Resourc Res*, 1999, 35, 1101-1111.
- Schijven JF. Virus removal from groundwater by soil passage. Modelling field and laboratory experiments. PhD Thesis, 2001, ISBN 90-646-4046-7. Ponsen and Looijen, Wageningen, The Netherlands.
- Stuyfzand PJ, Jagt van der H. Toelichting op de anorganisch-chemische analysemethoden voor grond in het LAM van Kiwa, 1997, Kiwa N.V. Nieuwegein.
- Tisa LS, Koshikawa T, Gerhardt P. Wet and dry bacterial spore densities determined by buoyant sedimentation. *Appl Env Microbiol* 1982, 43, 1307-1310.
- Torkzaban S, Schijven JF, Hassanizadeh SM, Bruin HAM de, Roda Husman AM de. Virus transport in saturated and unsaturated sand columns, *Vadose Zone J* 2006, 5, 877-885.

RIVM

Rijksinstituut
voor Volksgezondheid
en Milieu

Postbus 1
3720 BA Bilthoven
www.rivm.nl