



Kennisinventarisatie ontijzering

BTO 2011.018
Juli 2011



Watercycle Research Institute

Kennisinventarisatie ontijzering

BTO 2011.018
Juli 2011

© 2011 KWR

Alle rechten voorbehouden.

Niets uit deze uitgave mag worden verveelvoudigd, opgeslagen in een geautomatiseerd gegevensbestand, of openbaar gemaakt, in enige vorm of op enige wijze, hetzij elektronisch, mechanisch, door fotokopieën, opnamen, of enig andere manier, zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van de uitgever.

Colofon

Titel

Kennisinventarisatie ontijzering

Projectnummer

B111721

Onderzoeksprogramma

Drinkwaterbehandeling

Projectmanager

Erwin Beerendonk

Opdrachtgever

CvO

Kwaliteitsborger

Maarten Nederlof

Auteur

Bas Hofs

Verzonden aan

CvO, Directeuren Waterleidingbedrijven, PBC Waterbehandeling, Deelnemers workshop

Dit rapport is verspreid onder BTO-participanten en is openbaar

Voorwoord

Het tot stand komen van dit rapport is mede mogelijk gemaakt door:

- Het werk over ontijzering van Kees van Beek als onderdeel van zijn proefschrift. Hierdoor was er al een hoop wetenschappelijke literatuur verzameld.
- De geïnterviewden: Koen Huysman, Jan Cromphout, Gert Reijnen, Jacques van Paassen, Frank Schoonenberg en Stephan van de Wetering. Bedankt voor het vrijmaken van tijd om over ontijzering te spreken.
- De sprekers van de workshop: Kees van Beek, Weren de Vet en Gert Reijnen. Bedankt voor jullie bijdragen waarvan de presentaties achter in dit rapport zijn terug te vinden.
- De deelnemers aan de workshop: Luc Palmen, Koen Joris, Koen Huysman, Stephan van de Wetering, Jacques van Paassen, Jantinus Bruins, Robert Schots, Mark van Loosdrecht en Menno van Leenen.

Bedankt voor jullie inbreng.

Bij aanvang van het project werd gezegd dat het 'niet zo spannend' was. Ik wist vrijwel niets van ontijzering maar al snel werd ik gegrepen door de interessante dynamiek van de ontijzeringsprocessen. Ook de interviews waren erg leuk om te doen. Ik heb daardoor veel geleerd over de ontijzering zoals die bij verschillende drinkwaterleidingbedrijven wordt bedreven. De workshop leverde een leuke discussie op over verschillende ontijzeringsaspecten en een persoonlijk leermoment over de conflicterende rollen van voorzitter en wetenschapper.

Ik hoop dat de in dit rapport beschreven kennis en kennisleemtes met net zo veel plezier worden gelezen als waarmee ik ze op papier heb gezet.

- Bas Hof

Nieuwegein, februari 2011

Inhoud

Voorwoord		1
Inhoud		2
1	Inleiding	4
2	Literatuur	5
2.1	Verwijderingsmechanismen	5
2.1.1	Flocculente ijzeroxidatie	5
2.1.2	Adsorptieve ijzeroxidatie	5
2.1.3	Biologische ijzeroxidatie	6
2.1.4	Competitie	6
2.2	Snelfilters	7
3	Ervaring uit de bedrijfstak	8
3.1	VMW en Pidpa	8
3.1.1	Locaties en opmerkingen	8
3.1.2	Kennisvragen	9
3.2	Vitens	9
3.2.1	Locaties en optimalisaties	10
3.2.2	Kennisvragen	10
3.3	WML	10
3.3.1	Tips voor ontijzering	11
3.3.2	Locatie: Susteren	12
3.3.3	Kennisvragen	13
3.4	Brabant water	13
3.4.1	Renovatiefilosofie	13
3.4.2	De rol van adsorptieve/biologische ontijzering?	14
3.4.3	Aandachtspunten voor ontijzering	14
3.5	Helicopterview	14
4	Discussieworkshop ontijzering	15
4.1	Verslag workshop	15
4.2	Opmerkingen	16
5	Kennisleemtes en vervolgonderzoek	17
5.1	Kennisleemtes	17
5.2	Discussie	17
5.3	Aanbevelingen voor vervolgonderzoek	18
6	Referenties	19
I	Artikel Cromphout, J (VMW); ijzerverwijdering PB Lommel	22

II	Presentaties discussieworkshop ontijzering	28
III	Deelnemerslijst discussieworkshop	57
IV	Lijst van de gevonden literatuur	58

1 Inleiding

Ontijzering in snelfilters is een klassiek en in de bedrijfstak veel toegepast proces. Het halen van de streefwaarde voor ijzer in het reine water (<0.05 mg/L) is voor de diverse grondwaterbedrijven geen probleem, omdat er voldoende kennis aanwezig is. In de loop der tijd zijn verschillende onderzoeken naar ontijzering uitgevoerd, onder andere in het BTO, maar ook daar buiten. Voorbeelden hiervan in Nederland zijn de promotieonderzoeken van Lerk¹ (TU Delft) en van Sharma²⁻⁹ (UNESCO-IHE) naar mechanismes van ontijzering en lopend onderzoek naar ammoniumverwijdering van De Vet (TU Delft), waarbij ook wordt gekeken naar het voorkomen van ijzeroxiderende bacteriën (IOB) in zandfilters¹⁰. In het verleden is bij het toenmalige KIWA een aantal rapporten over ontijzering geschreven. Voorbeelden hiervan zijn Mededeling 9, Richtlijnen ten dienste van het ontwerpen en de behandeling van snelfilters¹¹, en SWE 98.004, Filtratietechniek grondwater *Technische aspecten*¹². Op een ander spoor is er in het verleden bij KIWA onderzoek gedaan naar ondergrondse ontijzering, zoals beschreven in bijvoorbeeld Mededeling 78, Ondergrondse ontijzering, een evaluatie van uitgevoerd onderzoek¹³. In het huidige BTO wordt indirect onderzoek gedaan naar ontijzering als het gaat om biologische stabiliteit en afgifte van deeltjes¹⁴. Een recent direct BTO resultaat is de literatuurstudie naar biologische ontijzering¹⁵. Dergelijke studies leiden regelmatig tot discussies over welk ontijzeringsmechanisme nu domineert (adsorptief, biologisch, flocculent) en hoe dit proces dan te optimaliseren is. Bij het 'rondje bedrijven' van 2009 door Maarten Nederlof (in zijn rol als coördinator van het BTO Programma Waterbehandeling) is gebleken dat het 'met nieuwe ogen kijken naar bestaande processen' sterk in de belangstelling staat. Naast optimalisatie gericht op kosten en 'operational excellence', zijn de ontwerpparameters en de daaraan gekoppelde bedrijfsvoering van ontijzering veelal gebaseerd op oude aannames en watersamenstellingen die mogelijk niet meer actueel zijn. Aanpassen van de bedrijfsvoering zou daarmee niet alleen tot kostenreductie kunnen leiden maar ook tot kwaliteitsverbetering. Een recent voorbeeld hiervan is de aanpassing van de zuivering van Luyksgestel door Brabant Water¹⁶.

Binnen dit project is ernaar gestreefd een overzicht te verkrijgen van de kennis en kennisleemtes (en praktijkvragen) op het gebied van ontijzering aan de hand van de ervaringen in de bedrijfstak, uitgevoerd onderzoek en literatuur. Het literatuuronderzoek vormde het beginpunt van deze studie en is toegespitst op het ontsluiten van de beschikbare literatuur op het gebied van ontijzering (hoofdstuk 2). Vervolgens zijn er experts van verschillende bedrijven geïnterviewd om een beeld te krijgen van de ontijzering in de praktijk en de vragen die daar nog spelen (hoofdstuk 3). Naar aanleiding van de discussies die op gang waren gekomen rondom het literatuuronderzoek en de interviews is er een workshop georganiseerd. Het doel van de workshop was tweevoudig: (i) weergeven van de huidige kennis over ontijzering, en (ii) discussiëren over vervolgonderzoek. Het verslag van de workshop (hoofdstuk 4) zoals hier vastgelegd, gecombineerd met de lijst van kennisvragen die uit de interviews naar voren kwamen, is vervolgens met de deelnemers van de workshop teruggekoppeld. Hieruit kwam een aantal mogelijkheden voor onderzoek naar voren die, samen met de kennisleemtes, zijn geschetst (hoofdstuk 5).

2 Literatuur

In de (semi-)wetenschappelijke literatuur is redelijk wat te vinden over ontijzering. Voor een lijst van de gevonden literatuur, zie bijlage IV. De gevonden literatuur betreft onderzoek naar ontijzering in snelfilters, onderzoek naar putverstopping, onderzoek naar ijzeroxiderende bacteriën en onderzoek naar de mechanismen en kinetiek van de oxidatie van Fe(II).

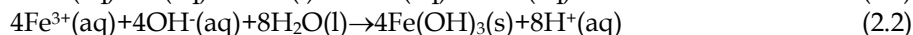
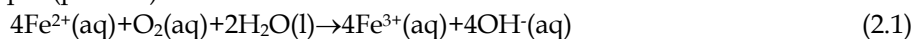
2.1 Verwijderingsmechanismen

Fe(II) wordt omgezet door oxidatie tot Fe(III). Hierna vindt vaak hydrolyse van Fe(III) naar Fe(III)-hydroxide plaats. Of de oxidatie van Fe(II) plaatsvindt hangt af van de redoxpotential van het water, die mede wordt bepaald door de hoeveelheid opgelost zuurstof, $O_2(aq)$. Als deze voldoende hoog is (zuurstof aanwezig), dan zal Fe(II) geoxideerd worden. Er zijn diverse mogelijkheden voor de oxidatie van Fe(II): via $Fe^{2+}(aq)$, $FeOH^+(aq)$, $Fe(OH)_2(aq)$, via adsorptie van Fe^{2+} aan het oppervlak van Fe(III)-hydroxide, en via bacteriën.

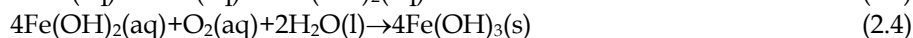
2.1.1 Flocculente ijzeroxidatie

De meest simpele vorm van oxidatie van Fe(II) en hydrolyse van Fe(III) gaat via de volgende reactiemechanismen^{1,17}:

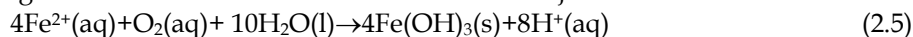
bij lage pH (pH < ~4)



bij hogere pH (pH > ~6 tot ~8)



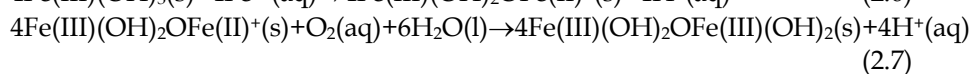
In beide gevallen is de som van de deelreacties te schrijven als:



Ijzerverwijdering op basis van (een van) deze reacties wordt in de literatuur ook wel omschreven als homogene of flocculente ontijzering. De flocculente oxidatiesnelheid van Fe(II) stijgt met de pH, tenminste in het gebied $4 < pH < 9$. De reactieconstante van reactie (2.4) is vele ordes groter dan van (2.1). De oxidatie verloopt bij $pH > \sim 6$ tot 8 via $FeOH_2(aq)$: de reactiesnelheid van reactie (2.4) is hoger dan van (2.1), ondanks dat de concentratie van $Fe(OH)_2(aq)$ ordes kleiner is dan die van Fe^{2+} . Een derde reactiemechanisme, via $Fe(OH)^+$, speelt ook nog een rol, maar de bijdrage hiervan aan de oxidatie domineert nooit. Over het dominerende reactiemechanisme boven pH 8 is weinig bekend; de reactie verloopt hier zeer snel en is, naast volgens (2.5), mogelijk via $Fe(OH)_3^-(aq)$ ¹⁷. Vanwege de extreem lage concentratie $Fe(OH)_3^-(aq)$ is niet bekend welk mechanisme domineert bij $pH > 8$. Uit reactievergelijking (2.5) blijkt dat er bij het oxideren van 1 mol Fe(II) altijd 0,25 mol O_2 nodig is en 2 mol H^+ wordt gevormd.

2.1.2 Adsorptieve ijzeroxidatie

Bij de heterogene, autokatalytische of adsorptieve oxidatie vindt adsorptie van Fe^{2+} aan Fe(III)-hydroxide plaats. Daarna wordt Fe^{2+} geoxideerd door O_2 . Deze reacties kunnen als volgt worden weergegeven;



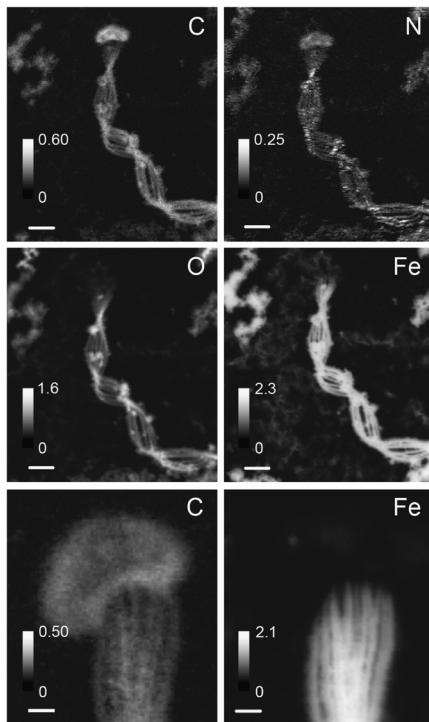
In werkelijkheid wordt Fe^{2+} geadsorbeerd door meerdere groepen aan het oppervlak¹⁸, maar dit is voor ons verhaal verder niet relevant. Bij sommerring van (2.6) en (2.7) blijkt dat er bij adsorptieve ontijzering

bij oxidatie van 1 mol Fe^{2+} , 0,25 mol O_2 nodig is en 2 mol H^+ wordt gevormd, net als bij de flocculente oxidatie van $\text{Fe}(\text{II})$.

2.1.3 Biologische ijzeroxidatie

Bacteriën die worden geassocieerd met ijzerverwijdering, zogenaamde ijzer oxiderende bacteriën (IOB), zijn *Leptothrix ochracea*, *Leptothrix discophora*, *Gallionella ferruginea*, en bacteriën uit het geslacht *Crenothrix*¹⁹⁻²¹. Ook andere bacteriën kunnen $\text{Fe}(\text{II})$ omzetten. *Gallionella ferruginea* en *Mariprofundus ferrooxydans* zijn verplicht chemolithotroof, dit wil zeggen dat deze bacteriën alleen in hun energie behoefte kunnen voldoen door de chemische omzetting (redoxreacties) van anorganisch stof, zoals $\text{Fe}(\text{II})$. De bacteriën concurreren met andere vormen van ontijzering. *Gallionella ferruginea* en *Mariprofundus ferrooxydans* doen dit mogelijk door het afscheiden van biopolymeren. Recentelijk is vastgesteld dat door IOB geproduceerde biopolymeren een rol spelen in de productie van de karakteristieke ijzeren stelen of 'stalks' (Figuur 2.1)^{22, 23}. Het lijkt erop dat de stelen worden ingepakt met biopolymeren, waardoor de adsorptieve ontijzering wordt vertraagd.

Ook bij biologische ontijzering, waarbij bacteriën energie halen uit de oxidatie van $\text{Fe}(\text{II})$ naar $\text{Fe}(\text{III})$, zal in alle waarschijnlijkheid per mol omgezet $\text{Fe}(\text{II})$ 0,25 mol O_2 worden verbruikt en 2 mol H^+ worden gevormd.



Figuur 2.1: STXM (Scanning Transmission X-ray Microscopy) plaatje van een *M. ferrooxydans* cel met ijzersteel. De verschillende plaatjes geven verschillende elementen weer (C, O, N, Fe). Schaalstreepje = 1 μm voor de bovenste vier plaatjes en 200 nm voor de onderste twee. Bron: Chan et. al., 2010, IMSE Journal, in press.

2.1.4 Competitie

In de praktijk zullen de verschillende ontijzeringsmechanismen in competitie met elkaar zijn. In de literatuur zijn veel studies te vinden waarin is geprobeerd te bepalen welk van de verschillende reactiemechanismen de ontijzering in bv. snelfilters domineert. Gezien de complexiteit van de ontijzering en het aantal parameters dat een rol speelt (pH, $[\text{O}_2(\text{aq})]$, aantal beschikbare vrije adsorptie-sites op de $\text{Fe}(\text{III})$ -hydroxiden, hoeveelheid en activiteit van IOB, temperatuur, filtratiesnelheid, aanwezigheid en concentratie van storende ionen zoals H_2S , NH_4^+ , Zn^{2+} , PO_4^{3-} , Mn^{2+} , Ca^{2+} , etc., en Natuurlijk Organisch Materiaal (NOM))^{2, 8, 24, 25}, is er helaas geen enkele studie te vinden waarin alle parameters gemeten, laat staan goed gedocumenteerd, zijn. Desondanks heerst er wel enige consensus over onder welke globale omstandigheden de diverse ontijzeringsprocessen in zandfilters dominant zijn. Bij lagere pH (sub-

neutraal) domineert biologische ontijzering, bij hoge pH de flocculente ontijzering en in het middengebied de adsorptieve ontijzering^{2, 8, 25}.

In het algemeen wordt de term 'biologische ontijzering' gebruikt bij ontijzering bij (sub)neutrale pH, soms ook als er geen ijzerverwijderende bacteriën gevonden konden worden in het zandfilter²⁶. Het lijkt erop dat de term meer verwijst naar de procestechnologische omstandigheden (pH 6-7, hoge filtratiesnelheid, iets meer zuurstof dan nodig om al het Fe(II) om te zetten naar Fe(III)), dan naar een volledig biologisch proces²⁵. Waarschijnlijk zijn in de meeste gevallen bij ontijzering in snelfilters het biologische en adsorptieve proces het belangrijkste. Welk van deze twee processen dominant is, is niet bekend, daarom zullen we in dit rapport deze vorm van ontijzering in snelfilters 'biologisch-adsorptief' noemen.

In tegenstelling tot bovenstaande wordt er bijvoorbeeld bij Brabant Water veel ontijzerd door middel van vlokvorming in beluchting en ontgassingstorens (BOT) met PALL-ringen (zie §3.4). Hier is de ontijzering waarschijnlijk voornamelijk flocculent.

2.2 Snelfilters

In 1965 verscheen Kiwa mededeling 9, Richtlijnen ten dienste van het ontwerpen en de behandeling van snelfilters¹¹. Deze mededeling geeft een groot aantal (>200) vuistregels voor het ontwerpen en bedrijven van snelfilters en toebehoren. Over de complexiteit hiervan wordt al in de inleiding gezegd (p.10); "Het aantal factoren waarmee bij het ontwerp van een filterinstallatie moet worden rekening gehouden is zo groot dat niet gegeneraliseerd kan worden en dat algemene regels nooit zonder meer mogen worden toegepast." Naast de complexiteit van ijzerverwijdering (§ 2.1), is dus ook het ontwerpen en bedrijven van een snelfilter op zich al zeer complex. Naast de verschillende water types, zorgt ook het feit dat er bij verschillende filters op basis van verschillende mechanismen ontijzerd wordt ervoor dat generalisatie niet mogelijk is. Verdere tips voor de bedrijfsvoering van snelfilters voor ontijzering (en ontmanging, nitrificatie en biologie in het filter) zijn uitgewerkt in SWE 98.004, Filtratietechniek grondwater *Technische aspecten*¹². Hierin staan daarnaast veel verschillende experimenten beschreven met filters. Het ontbreekt in de genoemde publicaties aan een goed overzicht waarbij duidelijk wordt gemaakt bij welke vorm van ontijzering welke bedrijfsvoering de beste resultaten levert. Enerzijds was er in 1965 minder bekend over de diverse ontijzeringsmechanismen. Anderzijds is het geven van specifieke tips lastig, gezien het groot aantal factoren dat een rol speelt bij ontijzering, maar naar aanleiding van de interviews lijkt het erop dat er wel degelijk een aantal grondstofkwaliteit-, en ontijzeringsmechanisme-afhankelijke tips zijn te geven.

De procesomstandigheden waarbij ontijzering in de praktijk in snelfilters plaatsvindt variëren nogal. De filtratiesnelheid ligt meestal ergens tussen de 2 en 30 m/h en de gedoseerde hoeveelheid O₂(aq) hangt af van de grondstofkwaliteit (o.a. hoeveelheid ijzer, methaan).

De terugspoeling van de snelfilters vindt plaats bij het bereiken van een bepaald drukverlies over het filter²⁷. In een aantal gevallen wordt het terugspoelwater en het bovenop het filter staande water afgevoerd voordat het filter weer in bedrijf wordt genomen, om de problematische troebelheidspiek in het filtraat na het weer in bedrijf nemen van het filter na terugspoelen zo veel mogelijk te beperken. De meeste snelfilters hebben daarvoor (nog) geen voorziening. Experimenten in het verleden met een waterbezem¹ in het bovenwater hadden ook dat doel. Tot ruime toepassing in de praktijk heeft dit niet geleid.

Theoretisch gezien is voor flocculente ontijzering de (gedoseerde) opgeloste hoeveelheid O₂(aq) zo hoog mogelijk en bij biologisch-adsorptieve verwijdering de hoeveelheid Fe²⁺ in het voedingswater bepalend voor de gewenste O₂(aq) dosering. Het verdient voor biologisch-adsorptieve verwijdering van ijzer aanbeveling de beluchting of zuurstofdosing zo kort mogelijk voor het filter plaats te laten vinden, om de vorming van colloïdaal¹¹ ijzer tijdens de beluchting of in het bovenstaande water, zo veel mogelijk te beperken. De ervaring leert dat dit colloïdaal ijzer nauwelijks wordt verwijderd door het nafilter.

¹ Met verticale pijpjes, met onderaan net boven het filterbed sproeikoppen, werd tijdens het naspoelen met water de watersnelheid naar de spoelgoot versneld.

¹¹ Colloïdaal, aldus de spelling volgens de Dikke van Dale, de 'Engelse' spelling. Er heerst in Nederland echter enige onenigheid over de juiste spelling. Hierdoor komt 'kolloïdaal', de 'Duitse' spelling, ook regelmatig voor.

3 Ervaring uit de bedrijfstak

3.1 VMW en Pidpa

De ervaringen met ontijzering bij VMW en Pidpa zijn besproken met Jan Cromphout en Koen Huysman. Klassiek vond de ontijzering in België plaats met decantoren (20 m doorsnede decantoren, 1,5-2,5 m/h filtratiesnelheid) en toevoeging van kalk en polymeer. Bij deze voornamelijk flocculente ontijzering was een groot vloeroppervlak nodig voor de ontijzering. In de jaren 80-90 is er onderzoek gedaan naar wat toen 'biologische ontijzering' werd genoemd²⁷, in contrast tot de fysisch-chemische ontijzering met decantoren en bij hogere pH. Een betere term voor de 'biologische ontijzering', zoals beschreven voor bv. productiebedrijf (PB) Lommel (VMW)²⁷ is biologisch-adsorptieve ontijzering. Dit aangezien de zowel biologische als de adsorptieve verwijdering van Fe(II) waarschijnlijk een belangrijke rol spelen. De verhouding waarin de twee verwijderingsmechanismen bijdragen is niet bekend. Geschatte ontijzeringsbijdrages biologisch:adsorptief (aanname dat het uitgespoelde ijzer biologisch is, en aangroei van ijzer adsorptief); voor PB Balen (Pidpa) 55%:45%, en voor PB Grobbendonk (Pidpa) 33%:67%.

3.1.1 Locaties en opmerkingen

Een overzicht van de besproken PB-en is gegeven in tabel 3.1. Bij Pidpa vindt er sturing van de beluchting plaats op de uitgaande O₂(aq) concentratie. De tijd tussen beluchting en contact met het filter is geminimaliseerd om de vorming van colloïdaal ijzer zo veel mogelijk te voorkomen. Colloïden zijn deeltjes in een oplossing, waarbij de deeltjes minimaal één dimensie in de orde van 1-1000 nm hebben. Bij een te lage ingaande O₂(aq) concentratie vindt er op een gegeven moment doorbraak van Fe(II) plaats, en bij een te hoge doorslag van colloïdaal ijzer. Doorbraak van colloïdaal ijzer bij een te hoge ingaande O₂(aq) concentratie is ook gesignaleerd bij PB Lommel.

Tabel 3.1: Besproken ontijzeringslocaties en omstandigheden (VMW en Pidpa)

PB	Fe(II) in (mg/l)	Fe(II) uit (mg/l)	O ₂ (aq) in (mg/l)	O ₂ (aq) uit (mg/l)	pH in	pH uit	filterhoogte (m)	DOC (mg/l)	filtratiesnelheid (m/h)
Lommel*	7-9	<0,05	1,5	0,5	7	Ca. 7	2	2-3	7-15
Grobbendonk	36	<0,05	5-6	0,3-1,2	6,7-6,8	6,0-6,2	2-3	2	8-10
Balen	26	<0,05	3,5-4		7	6,5	2	1	14-17
Mol	7		2-3	0	<7		1	1	3

* Zie bijlage 0.

Op PB Grobbendonk vindt beluchting plaats met een drie-traps cascade en deelstroom in bypass, zo kort mogelijk voor het filter (minimaliseren homogene/flocculente ontijzering). Daarna vindt de ijzerverwijdering en een deel van nitrificatie plaats in het eerste zandfilter. In tweede zandfilter vindt de rest van de nitrificatie en de ontmanging plaats. Na 25-35 uur wordt het eerste filter teruggespoeld. Ongeveer 2/3^{de} van de ijzerverwijdering vindt plaats door aangroei op het zand, en ongeveer 1/3^{de} van het ijzer zit in het terugspoelwater. Dit is bepaald uit het ijzergehalte in het terugspoelwater en de aangroei van ijzer op het filtermateriaal. De toename van de bedhoogte in PB Grobbendonk varieert tussen 0,62 en 0,95 cm/dag voor debieten van 200 tot 222 m³/uur (gemiddelden) of snelheden van 6,66 tot 7,4 m/uur. In de praktijk heeft de aangroei een dichtheid ('schijnbare' dichtheid; porositeit, water in poriën,...) van 1,6 kg/l in geval van natte korrels (uitgedrukt als stortgewicht) en 0,9 kg/l stortgewicht na drogen. De ijzerverwijdering van PB Grobbendonk is 99.9%; van 36 mg/l naar <0,05 mg/l.

Bij PB Balen vindt 40-50% van de ijzerverwijdering plaats door adsorptieve ontijzering (geschat aan de hand van de aangroei van het filtermateriaal), en de rest door biologische ontijzering (geschat aan de hand van de hoeveelheid uitgespoeld ijzer bij de terugspoeling). Bij verhogen van de belasting neemt initieel het aandeel van de adsorptieve verwijdering toe, waarna het evenwicht tussen biologische en adsorptieve ontijzering weer langzaam terug lijkt te gaan naar de uitgangssituatie. Waarschijnlijk komt

dit omdat de biologie in het filter tijd nodig heeft om zich aan te passen aan de nieuwe omstandigheden. De aangroei (0,5-1 cm per dag) is afpelbaar met bv. nagels. Aangegroeide korrels worden afgepompt, totdat een bepaalde korrelgrootte bereikt wordt. Dan wordt het hele filterbed vervangen (3-4 keer per jaar).

Bij PB Lommel vindt er voor het eerste filter dosering van cationisch polymeer (poly(diallyl dimethyl ammonium chloride) = PDADMAC) plaats. Dit om colloïdaal ijzer af te vangen voordat het door het filter loopt.

De hoeveelheid geproduceerd slib volgens het huidige biologisch-adsorptieve ontijzeringsproces is, vergeleken met de oude klassieke methode (decantoren) een stuk minder; 40 kilo i.p.v. 100 kilo in terugspoeling (verschil is aangroei op filterzand), en het slib in het terugspoelwater heeft 15% i.p.v. 4% droge stof. Het biologisch-adsorptieve ontijzeringsproces vergt minder filteroppervlak (m^2) en produceert minder (ongeveer $1/10^{de}$) afval dan de klassieke ontijzering met decantoren en bij hoge pH. Er wordt weinig biomassa geproduceerd in het filter, ten opzichte van de afgezette massa ijzeroxide. De biologische bijdrage aan ijzerverwijdering neemt waarschijnlijk toe met diepte in het filter; dit effect is zeker niet verwaarloosbaar voor ingaande hoge ijzerconcentraties, zoals in Grobbendonk en Balen. Het vermoeden bestaat dat de biologische stabiliteit door het nieuwe proces beter is dan vroeger met de decantoren. Bij opstart van een nieuw filter (30 m^2) werkt enten met ingedikt terugspoelwaterslib (30 l) snel (opstarttijd enkele dagen). Enten met 10 m^3 korrels (met aangroei uit Balen) werkte niet beter dan dit ingedikte spoelwater.

3.1.2 Kennisvragen

- Hoe lang kan adsorptieve ontijzering doorgaan zonder zuurstof? Koen wil wel eens een keer kijken in Balen hoe lang dat goed gaat^{III,28}.
- Bij Grobbendonk een filter volledig beluchten om te kijken of er dan meer adsorptieve ontijzering optreedt in verhouding tot biologische ontijzering.
- Koen: meer vragen over ontmanging en arseenverwijdering dan ontijzering. Wel is de adsorptiecapaciteit van de ijzeroxidekorrels voor arseen interessant (mogelijke afzet korrels met ijzeroxide aangroei voor arseenverwijdering?).
- Is er een relatie tussen het beschikbare oppervlak voor adsorptie (aantal vrije adsorptie-sites) en het aandeel van de adsorptieve ontijzering?

3.2 Vitens

De ervaringen met ontijzering bij Vitens zijn besproken met Jacques van Paassen en Frank Schoonenberg. Vitens heeft in de afgelopen jaren een aantal optimalisatie trajecten gehad, waarbij 'problematische' ontijzeringen werden aangepakt. Vitens wil in principe geen vlokmiddel (ijzer, zeker geen aluminium) gebruiken om de streefwaarden ($Fe < 0,05 \text{ mg/l}$) te halen. Toepassing van Al (Sachtoklar) als vlokmiddel leidt soms tot overschrijding van de alarmwaarde voor aluminium (30 $\mu\text{g/l}$). Stelling van Jacques: Bij juiste bedrijfsvoering is vlokmiddel niet nodig.

Jacques: Er zijn veel oorzaken voor een problematische ontijzering mogelijk. Voorbeelden: (i) een pomp die lucht aanzooft, zorgde voor vooroxidatie van Fe^{2+} . De gevormde deeltjes liepen vervolgens door de filters. (ii) WMD, Henk Brink (via waterinkoop door Vitens): Waterval voor zuurstofdosing leidt tot relatief lange verblijftijd en dus vooroxidatie. Vroeger vlokking met aluminium, soms echter hoge pieken van aluminium in het water. Overgestapt naar ijzer.

Er is een aantal projecten (waar Vitens bij betrokken is) waar modellering een grote rol speelt.

- Waterspot: bedoelt als opleidingstool zuivering tot op het niveau van pompen/kleppen. Enerzijds simulatie van de complete waterzuivering en anderzijds een STIMELA uitbreiding met

^{III} Gert Reijnen heeft in het verleden een dergelijke proef uitgevoerd op PB Susteren. Na het stoppen van de zuurstofdosing bleef de ontijzering nog drie uur goed functioneren ($<0,01-0,06 \text{ mg/L}$ ijzer in het reine water).

beperkt ontijzeringsmodel. Voor grote waterzuiveringsinstallaties is het wel te doen om een compleet model te bouwen, maar voor kleintjes kost dit relatief veel geld.

- SLIMM (Simon Bakker): hele zuivering modelleren op basis van meetdata uit de zuiveringen. Proberen relaties tussen instellingen, data en productkwaliteit te leggen (o.a. toegepast op PS Oldeholtspade).
- FilterXpert (met DHV, TUDelft, Waternet, Thales): toestandsbepaling van het filter met behulp van akoestische metingen. Deze metingen geven een indruk van de grootte van de filterkorrels. Dit koppelen aan modellering aan de hand van parameters met als doel onderlinge relatie tussen parameters te gebruiken om sturing te vereenvoudigen.

Ook is Vitens bezig met een database praktijkgegevens (met DHV, Michel Riemersma), voortbouwend op filterpaspoort, voor vergelijking van verschillende locaties, ontwerpen, bedrijfsvoering, om vervolgens uit de vergelijking te proberen verbeteringen te halen voor bestaande locaties (locaties met vergelijkbare omstandigheden hebben een verschillend ontwerp/bedrijfsvoering van het filter).

3.2.1 Locaties en optimalisaties

PB Rodenmors: ruw, deelstroom NF, menging deelstromen, beluchting, SF1, SF2, reine water. Zonder membraan was de ijzerverwijdering goed. Met membraan ging deze minder goed (d.w.z. overschrijding van de streefwaarde van 0,05 mg/l Fe). Veel testen gedaan, waaronder loogdosering. Loogdosering voor SF1 was niet effectief, maar loogdosering voor de beluchting (van ongeveer pH 7,3 naar 7,4) bracht de ontijzering weer op orde. Dit begrijpen we nog steeds niet, het gaat vermoedelijk om het ijzer (5%) dat niet door de NF wordt tegengehouden. Volgens Jacques kan dit opgelost worden door een volledige ontijzering in de deelstroom met RO.

PB Witharen: hier wordt waarschijnlijk de NF vervangen door lage druk RO. Dit omdat NF ongeveer 5% van het ijzer doorlaat, en we de doorgelaten hoeveelheid ijzer terugvinden in het reine water. RO laat minder ijzer door en zal dus naar verwachting beter werken, wat ontijzering betreft.

PB Twello: slechte ontijzering, opgelost na veldmeting van de Fe^{2+}/Fe^{3+} verhouding. Door verlaging van de bovenwaterstand van een put waarbij de verhouding laag was, ging de verhouding omhoog en verbeterde de ontijzering.

PB Spannenburg: vroeger in Spannenburg relatief veel hogere organismen in het uitgaande water. Gekeken naar optimalisatie van de zuivering. Er was relatief veel vervuiling met ijzerdeeltjes en biomassa uit de filters. Dit kwam o.a. omdat de nitrificatie grotendeels in het 2^{de} filter plaatsvond. Na het spoelen, bij het weer in bedrijf nemen van de filters, kwam er relatief veel deeltjes en biomassa uit de filters (in de periode 0-1 uur na weer in bedrijf nemen).

Gedeeltelijke oplossingen: (i) langzaam opvoeren van de filtratiesnelheid van het filter bij weer opstarten; bij het oude ontwerp gingen de afsluiters vol open bij het weer in bedrijf nemen van de filters, wat resulteerde in een filtratiesnelheid die hoger was dan de spoelsnelheid, (ii) Bovenstaande water na spoelen afvoeren, (iii) nitrificatie laten plaatsvinden in voorfilter (door zuurstof doseren en kleinere fractie filtermateriaal).

3.2.2 Kennisvragen

- Frank: Modelvorming van ontijzering in bv. PHREEQ. Input voor PHREEQ is bv. metingen bij PS Holk, de structuur van de ijzer(hydr)oxiden die te bepalen is m.b.v. XRD/informatie van Hiemstra en/of van Riemsdijk (WUR). Ook op het gebied van STIMELA en SLIMM valt nog wel het een en ander te doen. Zowel de data uit SLIMM en experimenten en modelvorming gebruiken.

3.3 WML

De ervaringen met ontijzering bij WML zijn besproken met Gert Reijnen. Gert heeft bijna 35 jaar ervaring met ontijzering. In de loop der tijd is de detectiegrens voor ijzer gedaald, en daarmee de doelstelling voor het te behalen ijzergehalte ook. Verbetering van ontijzering is trial & error.

Rond 1976 is een per locatie verschillende lineaire relatie tussen troebelheid en ijzergehalte van water na de zuivering vastgesteld. Daarmee is veel gedaan en over gepubliceerd t.b.v. optimalisatie van de

ontijzering. Tegenwoordig zit op de meeste zuiveringen als controle een troebelheidsmeter. Helaas wordt hier relatief weinig mee gedaan bij het periodieke waterkwaliteitsoverleg. Daar worden vooral de resultaten van steekmonsters besproken en die geven een minder representatief beeld van het functioneren van de zuivering. Bij WML is nog een bijkomend aspect dat de troebelheidsmeting op veel pompstations niet is aangesloten op het SCADA systeem, waarop alle metingen in de zuivering samen worden gepresenteerd en wat wordt gebruikt voor de procesregeling. Luc Palmen gaat dit bij WML oppakken.

Nederland is lange tijd een eiland geweest dat niet in biologische ontijzering geloofde, ondermeer omdat Dick v/d Kooij stelde dat "die beesten" te weinig energiewinst haalden uit de oxidatie van ijzer. Ondergrondse ontijzering: Ulrich Rott promoveerde op Duits onderzoek waaruit geconcludeerd werd dat ijzer biologisch werd verwijderd bij ondergrondse ontijzering²⁹. Deze claim werd al snel betwist³⁰ en is jaren later weer teruggetrokken in een publicatie met meerdere auteurs en Ulrich Rott zelf. Sharma: experimenten in het lab, heeft laten zien dat adsorptieve ijzerverwijdering werkt. Nu, Weren de Vet. Berekening voor ijzerverwijdering door bacteriën in Susteren: ongeveer 50% biologisch. IJzerverwijdering is waarschijnlijk biologisch-adsorptief.

3.3.1 Tips voor ontijzering

Een goede ontijzering is belangrijk vanwege de bewezen bijdrage van ijzerdeeltjes aan de vervuiling van het distributienet (Jan Vreeburg: ijzer in het net komt voor het grootste deel uit de zuivering, niet van het oplossen van gietijzer³¹). Bij een niet volledige ontijzering zijn er twee extremen mogelijk in het distributienet; of de deeltjes blijven in suspensie en komen bij de klant uit de tap (geen probleem dus, bv. PS Plasmolen van WML waar ook nauwelijks nagroei optreedt), of de deeltjes bezinken of worden ingebouwd in de biofilm en vervuilen het distributienet. Door lokale ophoping op plekken met een lage doorstroomsnelheid en vervolgens opwerveling door snelheidstoename, leidt dat tot bruinwater klachten. Om die te voorkomen of verhelpen moet worden gespuid. Dat kost veel inspanning en dus geld. Groter nadeel is dat volledig reinigen van het net zelden mogelijk is en tijdens spuiacties het net kan worden besmet met bacteriën. Het relatief frequent informeren van klanten dat er reinigingswerkzaamheden plaatsvinden kan het vertrouwen van de klant verminderen.

Het is belangrijk om de afgifte van ijzerdeeltjes aan het distributienet zo veel mogelijk te beperken, wanneer dat echt tot netvervuiling leidt. Hierbij helpt gelijkmatig produceren. Dat kan als de reinwaterberging voldoende groot is en de operators de reinwaterkelder niet 'zo snel mogelijk vol willen maken'. DHV heeft een productie prognose programma ontwikkeld (OPIR) waarmee de reinwaterkelder wordt gevuld met een gelijkmatige productie over een dag. WML past dit systeem op al op veel pompstations toe, en installeert dit op locaties waar nu nog geen OPIR wordt gebruikt. In overleg met operators is vastgelegd dat er een minimaal kelderniveau wordt geaccepteerd (40% plus twee uren maximale productie). Dit leidt tot betere waterkwaliteit, vooral bij zuiveringen die gevoelig zijn voor variaties in de productie (voorbeeld: Susteren). Let op: het is mogelijk dat bij een plotselinge (eenmalige) snelle toename in productie een grote troebelheidpiek optreedt, omdat dan langdurig opgehoopte deeltjes ineens lossen.

Bij de lucht-water spoeling van filters komen veel deeltjes los in het filterbed en wordt er veel ijzer uitgespoeld. Door lucht-water spoeling vinden circulatie stromingen plaats, waardoor het filtermateriaal en de vervuiling over het hele filter worden verdeeld. De losgespoelde vervuiling spoelt gedeeltelijk naar boven uit. Door de plotselinge daling in de stromingssnelheid boven het filterbed bezinken deeltjes die te groot zijn om opwaarts met het water te worden meegenomen. Deze bezinking bovenop het filter en de herverdeling van vuil in het filter door circulatiestromen zorgen na opstart voor hogere afgifte van deeltjes en dus voor een toenamen van de troebelheid. Uit filteronderzoek met het KIWA steekapparaat van De Lathouder is gebleken dat de vervuiling onderin snelfilters na een spoelbeurt groter is dan voor een spoelbeurt. Dat wijst er op dat de vervuiling tijdens de looptijd in het filtraat komt. Uit een brainstormsessie (TRIZ) met experts, met leden van de Expertgroep Klassieke Zuivering, is als mogelijke maatregel gekomen de inzet van een "deeltjesvanger" die de eerste uren na het spoelen het filtraat

nazuivert^{IV}. Andere oplossingen: langzaam herstarten van het filter, recirculatie van het eerste filtraat na spoelen, reserve filter erachter, naspoelen met looprichting mee (zie ook § 3.2.1). Deze oplossingen vragen vaak om extra leidingwerk, en dit is duur of kan wegens ruimtegebrek niet gerealiseerd worden. Bedrijven zeggen dan vaak: we moeten toch spuien, dus laat maar. Jan Vreeburg stelt dat een extra zuiveringsstap meestal duurder is dan vaker spuien. Financiële argumenten zullen dus niet snel leiden tot hogere investeringen in de zuivering. Deeltjesvangers mogen dus maar weinig kosten! Nafilters vangen de deeltjes uit de voorfilters meestal niet weg (Susteren bijvoorbeeld), behalve op sommige plekken (bv. in Breehei). Hoe kan dat? Guus Ijpelaar heeft alle locaties in Nederland vergeleken en kwam tot de volgende conclusie: de afwezigheid van biologie is slecht voor de ontijzering. Biofilms vangen ijzer en mangaan in. Het verdient aanbeveling hierop verder te zoeken met nieuwe technieken (deeltjestellers, zeta-potentiaal, etc.). In deze lijn is het mogelijk dat bijvoorbeeld zeer kleine deeltjes/colloïden in het distributienet worden ingebouwd in de biofilm. Uit de biofilmvormingsnelheid (BVS) metingen blijkt dat. Als stukken van de biofilm loskomen zijn de niet bezinkende deeltjes ingebed in grotere deeltjes die wel bezinken. Dat is vermoedelijk de oorzaak dat bruin water vaak gekoppeld is aan hogere koloniegetallen en hogere aantallen *Aeromonas*. Wanneer er geen nagroei optreedt in een distributienet (Plasmolen van WML) treedt geen ophoping van zeer kleine deeltjes/colloïden op en zijn er zeer weinig bruin waterklachten. N.B.: voor de gezondheid is het relevanter de mate van nagroei te beperken. Gert veronderstelt dat een gelijkmatige zuivering ook zorgt dat er minder dode en levende biomassa in het net komt. Een lage troebelheid is indirect dus ook goed voor het verminderen van nagroei ³².

De Lathouder (opgeleid tot vliegtuigbouwer), een van de auteurs van KIWA mededeling 9, heeft veel gedaan aan stroming van lucht en water in het filter. De resultaten van deelstudies zijn verwerkt in een serie COFICO mededelingen (1-8) en zijn gebruikt voor COFICO^V mededeling 9 ¹¹. Het effect van voorkeursstromen op de ontijzering is zeker van belang. Voorkeursstromen zijn in de praktijk vastgesteld. Er zijn bv. testen gedaan met per spoeldop een slang en een zoutdosering op het filter. Niet bekend is op welke zuiveringen en in welke mate de ontijzering (en de andere processen) hierdoor ongunstig wordt beïnvloed.

Opmerking: 600 mm is een goede testmaat voor proeffilters voor vergelijking met praktijk.

Belangrijk voor de praktijk is dat door beluchting (waarbij CO₂ wordt uitgeblazen) de pH wordt verhoogd. Dat is in veel gevallen niet gunstig voor de ontijzering. Vooral een intensieve beluchting voor het verwijderen van methaan leidt nogal eens tot een verslechtering van de ontijzering.

3.3.2 Locatie: Susteren

3,7 mg/l Fe, pH 6,8, filtratiesnelheid 8-12 m/h. Zuurstofdosing vindt plaats met een gaskap bovenin de stalen filterketels. De dosering is regelbaar en vindt plaats net boven het filter. De omvangrijke vervuiling van de lucht- of later zuurstoftoevoer en de ontluichtingsleidingen is hiermee van de baan. Aanvankelijk werd de zuurstofdosing in de toevoerleiding gedaan op de plaats waar voorheen de lucht met een compressor werd ingevoerd. De ijzervervuiling was zeer omvangrijk: de ruwwaterleiding groeide dicht met ijzer, de luchtinvoer vervuilde snel evenals de ontluichtingspotten. De schoonmaakkosten waren hoog. In Echt is ook een zuurstof gaskap geplaatst, maar daar is dat mogelijk één van de oorzaken van ontmanganingsproblemen, wegens de lage pH (rond 6,8). Andere oorzaken van de slechte ontmanging kunnen daar zijn nieuw/gereinigd filtergrind met minder gruis en dus oppervlak en het ontbreken van een nafiltratie stap. In Echt wordt door de pompen in de winning ook lucht aangezogen, wat ook een oorzaak kan zijn voor de slechtere ontmanging. In Susteren vindt nauwelijks aangroei van het filtergrind plaats (nauwelijks in 30 jaar tijd!). De ontijzering is daar (zo goed als zeker, maar nog niet wetenschappelijk sluitend bewezen) gedeeltelijk biologisch en gedeeltelijk adsorptief. Na het voor een experiment stoppen van de zuurstofdosing verliep de ontijzering nog vele uren goed. Bij verhoging van de filtratiesnelheid komen deeltjes in het

^{IV} In de praktijk wordt vaak het eerste filtraat na een spoeling afgevoerd naar de spoelwaterberging. Dat gebeurt echter meestal te kort voor het afvoeren van het grootste deel van de vervuiling. Dit om het spoelwaterverlies te beperken.

^V Commissie filterconstructies. De KIWA mededelingen zijn van later datum.

filtraat. Verwacht wordt dat de deeltjes ontstaan door de lucht-water spoeling. Mogelijk doordat de aangroei van ijzer die plaatsvindt op de draadvormige ijzerafzetting als gevolg van de ontijzering door *Gallionella* bacteriën los wordt gespoeld. Om de deeltjes zoveel mogelijk door spoelen te verwijderen wordt nagespoeld met bedexpansie. Om dat technisch haalbaar te maken met een relatief lage spoelwatersnelheid (40 m/h) is fijner grind gebruikt (0,8-1,2 mm). Voor adsorptief biologische ontijzering zou in principe grover grind beter zijn geweest, omdat daarmee een langere looptijd wordt bereikt (mondelinge suggestie Jantinus Bruins aan Gert Reijnen).

3.3.3 Kennisvragen

- Wat is het effect van biologie (biofilm) op ijzerverwijdering? Vooral met betrekking tot stabiliteit/afvang van colloïdale ijzerdeeltjes.
- Is er een relatie tussen biofilm en bruinwaterklachten (in distributienet)?
- De bedrijfstak heeft de kennis op het gebied van colloïden en hun interacties tot op heden niet in huis gehad. Bij KWR is deze kennis wel aanwezig.
- Czekalla³³, verwijst naar de productie van exo-enzymen die ijzer binden door bepaalde bacteriën. Is er inderdaad adsorptie aan de via de bacteriën geproduceerde ijzeroxiden of niet? Of heeft Kees van Beek gelijk dat ijzerbacteriën juist enzymen uitscheiden die adsorptieve ontijzering beperken, waardoor ze voldoende ijzer krijgen voor de vermeerdering²⁵?
- Goedkope nieuwe deeltjesvangers: op termijn kunnen mogelijk keramische membraanfilters geplaatst worden in de eerste filtraat afvoerleiding, of kan een praktijkfilter worden ingezet (bij overcapaciteit). Het gaat feitelijk om het afvangen van kleine deeltjes in de range van 1 – 10 micrometer, verwacht Gert op basis van deeltjestelling onderzoek voor het project klassieke zuivering.
- De ontmanging start pas na vele weken tot maanden, vooral wanneer de pH aan de lage kant is (stel < 7). Vooral de Vlamingen ervaren dat (nog) als een probleem. In Nederland weten we dat een lage filtratiesnelheid de goedkoopste maatregel is, samen met enten met spoelwater uit een goed werkend filter op een vergelijkbaar watertype (ook lage pH). Zeker een deel van de ontmanging is biologisch. WML verhoogt soms ook tijdelijk de pH door een laagje gebroken kalksteen (“marmer”) op grindfilters te brengen. Goed vergelijkende experimenten zijn Gert niet bekend.

3.4 Brabant water

De ervaringen met ontijzering bij Brabant water zijn besproken met Stephan van de Wetering. Er zijn bij Brabant Water geen problemen om de bedrijfsnorm voor ontijzering (<0.05 mg/L) te halen. Brabant Water is in 2001 ontstaan door fusie van het voormalige WNW en WOB. Toen is er een structuur in het leven geroepen: De werkgroep zuivering en onderzoek. In dit overleg zijn diverse zuiveringen aangepakt om de kwaliteit van het reine water te verbeteren. Alle zuiveringen zijn doorgelicht en procestechnologisch beschreven in een kerngegevensdocument. IJzer was een belangrijke parameter voor benchmarkverbetering, gezien de relatie tussen ijzer en troebelheid.

3.4.1 Renovatiefilosofie

Na circa 15 jaar is de besturing van de zuivering (SCADA, PRODIS) verouderd, en dient te worden aangepast. Van deze gelegenheid wordt gebruik gemaakt door de gehele zuivering nog eens door te lopen en bij de tijd te brengen. Voor deze renovatie wordt er onder andere overlegd met:

- (geo)hydrologen over de te verwachten waterkwaliteit en eventuele veranderingen daarin,
- distributie, om in beeld te krijgen of er nog problemen zijn (spuifrequentie, waaruit bestaan eventuele neerslagen/deeltjes, nagroei),
- procestechnologen.

Hierbij wordt gekeken hoe de zuivering verbeterd kan worden, wat je anders zou doen als je nu een nieuwe zuivering zou bouwen en worden de nieuwste inzichten toegepast.

In de afgelopen tien jaar is veel geoptimaliseerd (bv. spoelprogramma's, langzaam opstarten filter) en opgeschreven (intern document).

Wanneer er methaan in het ruwwater zit, wordt een Beluchting en OntgassingsToren (BOT) met PALL-ringen ingezet. Streven is om voor snelfiltratie een methaangehalte te hebben van < 0,2 mg/l CH₄. Een BOT is verschillend van bv. een plaatbeluchter door een veel hogere retentietijd van het water en een groter contactoppervlak en betere menging. Met een BOT wordt verregaand ontzuurd en het methaan

verwijderd, en vindt al een groot gedeelte van de ontijzering plaats. Door de hogere pH en de hoge zuurstofconcentratie in de BOT betreft de ontijzering hier vooral homogene of flocculente ontijzering ('vlokkingsfiltratie'). De BOT wordt bedreven op hoge doorstromsnelheden en is relatief robuust en goedkoop. Een ander voordeel is dat de ontijzering dus gedeeltelijk voor het filter en gedeeltelijk bovenop het filter verloopt (koekfiltratie). Daardoor is eigenlijk het filter zelf beschikbaar voor nitrificatie en ontmanging, en is er geen tweede filter nodig.

De ijzer concentratie van het ingaande water is maximaal 4-5 mg/L. Looptijden van de snelfilters zijn ruim voldoende. De spoeling van de BOT (aangroei van ijzer aan de PALL-ringen etc.) vindt eens per week plaats.

Brabant Water wil het verhaal rond de BOT nog eens goed opschrijven. Een andere reden voor het gebruik van de BOT bij ingaande methaanconcentraties >0.2 mg/L is de 'vrees voor *Aeromonas*'.

Zuiveringen die relatief slecht presteren:

Gilze: gaat sluiten, optimalisatie uitgesteld omdat het toch ging sluiten.

Genderen: is gerenoveerd en bewust zo gelaten. De relatief slechte prestatie in ontijzering (en troebelheid van het reine water) komt door stroomsnelheidsveranderingen in het filter. Tilburg zal echter een gedeelte van de productie van Genderen overnemen.

Waalwijk: gesloten zuivering. Ingenomen water wordt nu op PB Vlijmen behandeld.

Oirschot: hier speelde de leeftijd van het filtermateriaal een rol. We zien dat ouder filtermateriaal minder goed werkt. Vervangen van het filtermateriaal kan dus de prestatie van de zuivering verbeteren (ook voor ontmanging).

3.4.2 De rol van adsorptieve/biologische ontijzering?

Mogelijk speelt adsorptieve ontijzering in Macharen een rol. Hier is de ingaande Fe concentratie 15 mg/L. In het filter zit antraciet als entmateriaal dat 1 m per jaar aangroeit.

Het onderwerp biologische ontijzering speelt niet bij Brabant Water.

3.4.3 Aandachtspunten voor ontijzering

- De rol van deeltjes in het distributienet, en de relatie tussen deeltjes en biologische stabiliteit (hogere organismen). Dit is een vraag voor de microbiologen is onderzocht in het kader van het BTO project Biologische Stabiliteit op PB Nuland. BVS daalt van 15-20 naar 2 door ultrafiltratie. Hiermee desinfecteer je echter de oplossing ook nog eens, naast het wegvangen van deeltjes.
- Tip: bij grootrenovatie met distributie praten (frequentie spuien, waaruit bestaan de vervuilingen, is er nagroei?).

Er zijn meer onduidelijkheden bij opstart van ontmanging, maar ook dit is geen probleem. Het lijkt erop dat er een bepaalde afstand tussen de ontijzering en nitrificatie+ontmanging nodig is in filters.

3.5 Helicopterview

Het halen van de streefwaardes voor ijzer in het reine water (<0,05 mg/L) wordt niet als probleem gezien. De bij de bedrijven aanwezige kennis over ontijzering is voldoende om deze te halen, hoewel er nog zeker een aantal vragen bestaan (zie Hoofdstuk 5).

Voor ontijzering bestaat geen "one size fits all": met andere woorden, we moeten zoeken naar combinaties van grondwaterkwaliteit en methode van ontijzering en daaraan gekoppeld ontwerp van filters en de bedrijfsvoering van die filters:

1. Lage ijzer concentratie (maximaal 4 á 5 mg/l), hoog methaan en volledig zuurstofloos (Brabant Water): BOT methode, enkele filtratie.
2. Zeer hoge ijzerconcentratie (>10 á 20 mg/l), variabele pH en aeroob (Grobendonk, Balen): biologisch-adsorptieve ontijzering, dubbele filtratie.

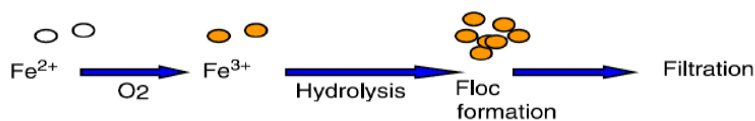
4 Discussieworkshop ontijzering

De gegeven presentaties en deelnemerslijst van de discussieworkshop zijn te vinden in de bijlage. In dit hoofdstuk volgt het verslag van en de opmerkingen die gemaakt zijn tijdens de discussieworkshop, voor zover deze niet al zijn behandeld in de voorgaande hoofdstukken.

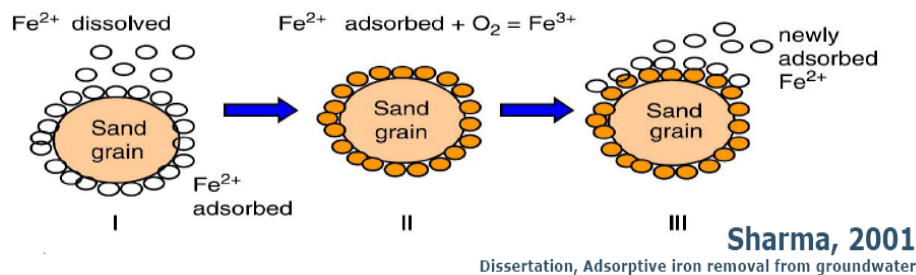
4.1 Verslag workshop

Op 19 oktober 2010 is er in Lekkerkerk een discussieworkshop ontijzering gehouden in het kader van het BTO onderzoek 'Kennisinventarisatie ontijzering'. Sprekers waren Kees van Beek (KWR, 'Vorming van ijzernerslagen uit grondwater: consequenties voor de zuivering'), Weren de Vet (TU Delft, Oasen, '*Gallionella* spp. in drinkwater filters, de rol van biologische ijzeroxidatie') en Gert Reijnen ('35 Jaar praktijkervaring ontijzering, opvallende zaken en suggesties voor praktijk en onderzoek').

Oxidation-floc formation mechanism



Adsorption-oxidation mechanism



Biological iron oxidation

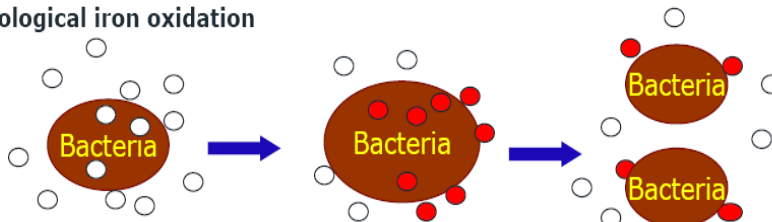


Figure 4.1: De drie verwijderingsmechanismen van (of reactiepaden voor verwijdering van) Fe(II).
Bron: presentatie van Weren de Vet.

Kees van Beek opende de discussieworkshop met een bespreking van de verschillende verwijderingsmechanismen voor Fe(II) in grondwater. Indien er geen geschikt oppervlak, of ijzer oxiderende bacteriën (IOB) aanwezig zijn, maar wel Fe(II) en zuurstof, kan alleen homogene, of flocculente ontijzering plaatsvinden. In aanwezigheid van een geschikt oppervlak, bijvoorbeeld door flocculente ontijzering gevormde Fe(III) neerslagen, kan daarnaast heterogene of adsorptieve Fe(II) verwijdering plaatsvinden. Volgens de literatuur overheerst de adsorptieve ontijzering de flocculente in aanwezigheid van geschikt oppervlak voor adsorptie en bij $\text{pH} > 6$, aangezien de reactiesnelheid voor flocculente ontijzering lager is dan voor adsorptieve ontijzering. De reactiesnelheid van ijzerverwijdering is sterk afhankelijk van de pH en zuurstofconcentratie, zowel voor adsorptieve als flocculente ontijzering. Bij lage pH (6-7) en lage zuurstofconcentratie (tot 5 mg/L) valt hierdoor te verwachten dat biologische ontijzering een significante rol speelt.

Weren de Vet ging vervolgens verder in op de rol van biologie in ontijzering, hetgeen hij in het kader van zijn promotieonderzoek heeft onderzocht. In het bijzonder de rol van *Gallionella* spp.; deze IOB leeft voor zover bekend alleen van energie uit de oxidatie van Fe(II) (en de daarop volgende hydrolyse). Met

behulp van specifieke celtelling van *Gallionella* spp. door 'quantitative polymerase chain reaction' (qPCR) en een maximale geproduceerde hoeveelheid biomassa uit de energiewinst door oxidatie van Fe(II) (en de daarop volgende hydrolyse) kan hij de minimale bijdrage van *Gallionella* spp. aan de ontijzering berekenen. Celtellingen in ruw water, influent, effluent en spoelwater van zandfilters van verschillende grondwaterzuiveringen laten zien dat de bijdrage van *Gallionella* spp. aan de ontijzering sterk varieert, van ongeveer 5 tot 50%. Een verrassend resultaat uit kolomproeven is dat de bijdrage van *Gallionella* spp. in het pH gebied 6,5-7,7 vrijwel constant is terwijl je zou verwachten dat deze zou dalen met stijgende pH vanwege de oplopende reactiesnelheid van adsorptieve en flocculente ontijzering. Schijnbaar slagen de *Gallionella* spp. erin om het Fe(II) voor hun eigen consumptie te reserveren. Aangroei van filtermateriaal is waarschijnlijk geen biologische ontijzering.

Gert Reijnen eindigde de discussieworkshop door praktijkervaringen met ontijzering te bespreken. Hieruit volgde dat de procesomstandigheden en bedrijfsvoering allebei belangrijk zijn voor een goede ontijzering. Vooral een optimale spoelprocedure (o.a. goede waterverdeling: weerstand 0,5 - 1 mwk = 0,05 - 0,1 kPa) en een langzame heringebruikname van het filter zijn belangrijk om te voorkomen dat er te veel deeltjes in het distributienet terecht komen. Bij de drinkwaterbedrijven loopt de ontijzering in het algemeen prima, maar toch ziet Gert nog kansen om de ontijzering te verbeteren - bijvoorbeeld met onderzoek naar de rol van de biofilm in ontijzering (het mogelijk blijven plakken van deeltjes), voorkeurstroming in het filter en een tool voor oorzakelijke verbanden. Hierbij dient wel gezegd te worden dat er weinig klachten zijn, weinig deeltjes het net in gaan, en dat er dus geen groot probleem is.

Ontijzering is een complex proces met meerdere reactiepaden en veel parameters die een rol spelen. Hierdoor is het moeilijk om het verloop van de ontijzering te voorspellen en is er nog genoeg onderzoek te doen. Nieuw is de celtelling van *Gallionella* spp. met behulp van qPCR, zoals uitgevoerd op diverse grondwaterzuiveringen door Weren de Vet. Uit de diverse bijdragen en discussie van deze workshop volgt dat de ontijzering meestal valt te karakteriseren als biologisch-adsorptief.

4.2 Opmerkingen

- Weren de Vet: Onder de pH 6 vormt *Gallionella* geen stalks en is dan visueel een stuk moeilijker te detecteren.
- Mark van Loosdrecht: De opbouw van biomassa van *Galionella* door ontijzering is klein, waarschijnlijk maar orde 1% van het totaal, indien andere bacteriën met behulp van andere processen kunnen groeien.
- Jacques van Paassen (over upflow ontijzering/ pellet ontijzering): We hebben dit op een paar locaties geprobeerd. Met 17 m/h 1-2 jaar probleemloos van 1 naar 0,1 mg/L. Als voorzuivering is dit zeker interessant. Bij de tweede testlocatie liep de upflow ontijzering in eerste instantie goed (paar maanden, 25 naar 0,2 mg/ Fe), maar daarna niet meer. De reden daarvoor konden we niet vinden, en daarom zijn we met dit onderzoek gestopt.
- Stephan van de Wetering: Afhankelijk van de samenstelling van je water wil je de ontijzering inrichten. Dit betekent dat je soms kiest voor flocculente ontijzering en soms voor biologisch-adsorptieve ontijzering.
- Jacques van Paassen/Stephan van de Wetering: 10% expansie bij spoelen bespaart spoelwater vanwege een efficiëntere spoeling dan zonder expansie. Gert Reijnen: spoeling met lucht/water mengsel maakt deeltjes los en verwijdert veel ijzerslib. Naspoeien zonder bedexpansie verwijdert alleen deeltjes die al los zijn gespoeld met lucht en water. Naspoeien met bedexpansie verwijdert significant meer deeltjes dan zonder bedexpansie.

5 Kennisleemtes en vervolgonderzoek

5.1 Kennisleemtes

- Hoe kun je de bijdrages van de verschillende mechanismes voor ontijzering bepalen?

Het is duidelijk dat de ontijzering in snelfilters meestal (zie de in dit rapport besproken voorbeelden) een combinatie van biologische en adsorptieve ontijzering is (met een klein deel (~5%) flocculente ontijzering). In een aantal gevallen wordt bewust gestuurd op een flocculente ijzerverwijdering (o.a. Brabant Water). De verhouding waarin biologische en adsorptieve ontijzering een rol spelen is niet bekend. Ook is er nog geen methode om deze te meten. De verhouding biologische: adsorptieve ontijzering kan mogelijk worden geschat door aan te nemen dat de aangroei van filtermateriaal adsorptieve ontijzering betreft, en het uitgespoelde ijzer biologische ontijzering betreft. In hoeverre dit juist is, is echter niet bekend. Zo is het bijvoorbeeld mogelijk dat door de IOB gevormde ijzereerslagen worden ingebouwd in de adsorptieve aangroei, of dat de adsorptieve aangroei gedeeltelijk wordt losgespoeld.

Met qPCR is een schatting te maken van de minimale bijdrage aan de ontijzering door *Gallionella* (zie het promotieonderzoek van Weren de Vet); deze methode kan ook informatie geven over de aanwezigheid en groei van andere IOB.

- Welke voordelen kunnen aan specifieke ontijzeringsmechanismen toegeschreven worden ten aanzien van ijzer-, ammonium-, en mangaanverwijdering, reststoffenproductie, deeltjesproductie en biologische stabiliteit? Wat is je keuzevrijheid (wat zijn je opties) bij een gegeven waterkwaliteit?
- Hoe kun je de verhouding van de biologische, adsorptieve en flocculente ontijzering sturen door aanpassing van de bedrijfsvoering en procesontwerp?

Mogelijk kunnen door modellering de invloed van de verschillende parameters die een rol spelen in de ontijzering (O_2 , pH, beschikbaar oppervlak, type oppervlak, aanwezigheid en effect van micro-organismen, Ca^{2+} , NOM, etc. – mogelijk is hier ook nog onderzoek nodig naar het effect van bepaalde parameters) worden verduidelijkt en leiden tot stuurparameters voor het verschuiven van de verhouding biologische en adsorptieve ontijzering. Hiervoor is ook een methode nodig om de verhouding van de verschillende bijdrages van de ontijzeringsprocessen te kwantificeren. Op dit moment is niet duidelijk in hoeverre modelvorming kan helpen bij optimalisering van de ontijzering.

- Biologische ontijzering.

De rol van exo-polymeren en de relaties tussen procesomstandigheden en de activiteit van de micro-organismen zijn input voor een ontijzeringsmodel. Het is echter niet duidelijk wat precies de rol is van de exo-polymeren die worden uitgescheiden door *Gallionella* in het ontijzeringsproces. Mogelijk coaten ze de door henzelf gevormde Fe(III)hydroxiden om te voorkomen dat hier adsorptieve ontijzering op plaatsvindt. Hierdoor blijft er dus meer Fe(II) beschikbaar voor oxidatie door *Gallionella* dan als ze dit niet zouden doen.

Wat is het effect van de biofilm op colloïdale ijzerdeeltjes (invangen ijzerdeeltjes)? Hoe komt het dat het colloïdale ijzer door de filters heenloopt? Vermoedelijk zijn de deeltjes negatief geladen, daarmee stabiel en worden ze niet verwijderd.

- Wat is de relatie tussen het ontijzeringsmechanisme en procesparameters op deeltjes in het reine water en biologische stabiliteit?

Is er een relatie tussen de biologische stabiliteit van het reine water na de filters en de verschillende ontijzeringsmechanismen? Zijn er mogelijkheden voor goedkope deeltjesvangers?³⁴ Wat is de rol van deeltjes in het distributienet, en de relatie tussen deeltjes en biologische stabiliteit (hogere organismen). Hiernaar wordt onderzoek verricht in het project Biologische Stabiliteit.

- Kennisleemtes ontmanganing.

Uit de interviews kwam naar voren dat er meer vragen zijn over ontmanganing dan over ontijzering. Hier gaan we in dit rapport verder niet op in.

5.2 Discussie

Er zijn verschillende ontijzeringsmechanismen, maar het is niet duidelijk hoe je kunt sturen op het ontijzeringsmechanisme door aanpassingen in bedrijfsvoering of procesontwerp. Als je wel kunt sturen

op het ontijzeringsmechanisme, kun je mogelijk de ontijzering efficiënter laten verlopen met betrekking tot loopsnelheden, deeltjes in reine water of een betere kwaliteit reststof verkrijgen. In feite gebeurde dit ook al door het toepassen van trial and error, maar dan zonder kennis van het mechanisme.

5.3 Aanbevelingen voor vervolgonderzoek

- Toetsen/ontwikkelen van een meetmethode ter bepaling van de verhouding van de bijdrages van biologische en adsorptieve ontijzering. Dit is op zich niet direct nuttig ter verbetering van de ontijzering, maar kan in combinatie met onderstaande aanbevelingen mogelijk leiden tot verhoging van de efficiëntie van de ontijzering door sturing op het ontijzeringsmechanisme.
- Vaststellen van de invloed van ontijzeringsmechanisme op andere processen, (zowel voor ontijzering, o.a. methaan, CO₂, als daarna: ammonium, mangaan, deeltjes, etc.). Vaststellen van voor- en nadelen van de verschillende ontijzeringsmechanismen voor reststoffen, biologische stabiliteit, deeltjes in het net, kosten en bedrijfsvoering. Vaststellen welke keuzemogelijkheden je hebt afhankelijk van de samenstelling van het ruwe water.
- Sturing op ontijzeringsmechanisme.
Met behulp van bv. PHREEQ wordt de ontijzering gemodelleerd. Sturing op ontijzeringsmechanisme, al of niet met behulp van het model, kan leiden tot verbeterde kwaliteit van de ijzer(hydr)oxides, en/of het reine water (deeltjes, concentratie ijzer, biologische stabiliteit). Sturing is mogelijk door optimalisatie van de bestaande installatie door aanpassing van de bedrijfsvoering en van de installatie. Met de reststoffenunie wordt er gekeken naar afzet van hoogwaardigere kwaliteit ijzeroxide. De input voor PHREEQ is bv. metingen bij PS Holk, de structuur van de ijzer(hydr)oxiden die te bepalen is m.b.v. XRD/informatie van Hiemstra en/of van Riemsdijk (WUR).
In SLIMM wordt de zuivering gemodelleerd op basis van praktijkdata uit de zuiveringen, waarbij geprobeerd wordt relaties tussen instellingen, data en product te leggen. Aansluitend aan het modelleringsonderzoek met PHREEQ kunnen SLIMM, experimenten, beschikbare literatuur en modelvorming gecombineerd worden in een tool voor operators (de 'ontijzering-simulator'), waarbij relaties tussen procesparameters en de ontijzering worden ingebouwd.
- Biologische ontijzering, gekoppeld aan 'sturing op ontijzeringsmechanisme'.
Een systematische studie naar de rol van IOB in ontijzering in filters. De vraag is hier wat nu het voordeel is van meer volledige biologische ontijzering ten opzichte van een gemengd biologisch-adsorptieve of een volledig adsorptieve ontijzering.
- Effect van procesvoering en procesontwerp op de productie en eigenschappen van deeltjes in het reine water, gekoppeld aan 'sturing op ontijzeringsmechanisme'. De bedrijfstak heeft de kennis op het gebied van colloïden en hun interacties tot op heden niet in huis gehad. Bij KWR is deze kennis wel aanwezig. Onderzoek richt zich op de fysisch-chemische eigenschappen van de ijzerdeeltjes die in het effluent van de filters zitten en die terecht komen in het reine water en het effect van bedrijfsvoering (spoelprocedure) en het ontijzeringsmechanisme. De deeltjesgrootte, deeltjesgrootteverdeling, zeta-potentiaal, structuur van en geadsorbeerd materiaal aan de ijzerdeeltjes wordt onderzocht en relaties tussen deze eigenschappen en het ontijzeringsproces onderzocht. Hierbij hoort de vraag van het effect van biologie (biofilm) op het mogelijke afvangen van de ijzerdeeltjes. Als eenmaal de eigenschappen van de deeltjes bepaald zijn kunnen de eisen die worden gesteld aan een goedkope deeltjesvanger worden gedefinieerd, en kan er gezocht worden naar mogelijkheden hiervoor. De mogelijke relatie tussen deeltjes en biologische stabiliteit is ook interessant, maar wordt op dit moment al onderzocht binnen het BTO op Nuland.
- Bepaling voorkeurstroming: het is kan nuttig zijn een methode te ontwikkelen voor het meten van verblijftijdspreading en daarmee voorkeurstroming. Vergelijken van een vervuild en een schoon filter is wellicht een mogelijkheid. Verondersteld wordt dat met name de lucht en waterverdeling ongelijkmatig kunnen zijn, met als gevolg dat de filtervervuiling minder homogeen wordt verdeeld over het oppervlak (en daarmee de spoeling minder effectief is).
- Kennisinventarisatie ontmanging: uit de kennisinventarisatie naar ontijzering blijkt dat er meer vragen zijn over ontmanging. Een project kennisinventarisatie ontmanging kan daarom gewenst zijn.

6 Referenties

1. Lerk, C. F. Enkele aspecten van de ontijzering van grondwater. PhD thesis, TU Delft, Delft, 1965.
2. Sharma, S. K. Adsorptive iron removal from groundwater. PhD thesis, TU Delft/WUR, 2001.
3. Sharma, S. K.; Greetham, M. R.; Schippers, J. C., Adsorption of iron(II) onto filter media. *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA* **1999**, 48, (3), 84-91.
4. Sharma, S. K.; Kappelhof, J.; Groenendijk, M.; Schippers, J. C., Comparison of physicochemical iron removal mechanisms in filters. *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA* **2001**, 50, (4), 187-198.
5. Sharma, S. K.; Mendis, B. S.; Greetham, M. R.; Schippers, J. C., Modelling adsorptive iron removal in filters. *Water Supply* **2000**, 18, (1-2), 604-608.
6. Sharma, S. K.; Petrusevski, B.; Heijman, B.; Schippers, J. C., Prediction of iron(II) breakthrough in adsorptive filters under anoxic conditions. *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA* **2003**, 52, (8), 529-544.
7. Sharma, S. K.; Petrusevski, B.; Jonoski, A.; Ijpelaar, G. F.; Schippers, J. C., Decision support system for optimisation of iron removal from groundwater. In *Water Science and Technology: Water Supply*, 2002; Vol. 2, pp 257-263.
8. Sharma, S. K.; Petrusevski, B.; Schippers, J. C., Biological iron removal from groundwater: A review. *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA* **2005**, 54, (4), 239-247.
9. Sharma, S. K.; Sebwato, C.; Petrusevski, B.; Schippers, J. C., Effect of groundwater quality on adsorptive iron removal. *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA* **2002**, 51, (4), 199-208.
10. de Vet, W. W. J. M.; Dinkla, I. J. T.; Muyzer, G.; Rietveld, L. C.; van Loosdrecht, M. C. M., Molecular characterization of microbial populations in groundwater sources and sand filters for drinking water production. *Water Research* **2009**, 43, (1), 182-194.
11. de Lathouder, A. *COFICO mededeling 9, Richtlijnen ten dienste van het ontwerpen en de behandeling van snelfilters*; KIWA: 1965.
12. Reijnen, G. K.; Reilman, J.; Kappelhof, J. W. N. M.; van den Broek, W. B. P.; Keltjens, L. L. M.; Bekkers, A. J. M. E.; van Paassen, J. A. M.; de Lathouder, A.; Sollman, M.; van Bennekom, C. A.; van der Meer, W. *SWE 98.004, Filtratietechniek grondwater Technische aspecten*; KWR: Nieuwegein, 1998.
13. van Beek, C. G. E. M. *Mededeling 78: Ondergrondse ontijzering, een evaluatie van uitgevoerd onderzoek*; KWR: Nieuwegein, 1983.
14. Teunissen, K. *BTO 2007.016, Iron removal at groundwater pumping station Harderbroek*; KWR: 2007.
15. van Bennekom, C.; de Ridder, D. *BTO 2006.074, Biologische ontijzering: een literatuurscreening*; KWR: 2006.
16. Rijnbende, D.; Groenendijk, M.; van de Wetering, S., Verbetering waterkwaliteit op een klein waterproductiebedrijf. *H2O* **2010**, 43, (3), 40-42.
17. Morgan, B.; Lahav, O., The effect of pH on the kinetics of spontaneous Fe(II) oxidation by O₂ in aqueous solution - basic principles and a simple heuristic description. *Chemosphere* **2007**, 68, (11), 2080-2084.
18. Hiemstra, T.; van Riemsdijk, W. H., Adsorption and surface oxidation of Fe(II) on metal (hydr)oxides. *Geochimica Et Cosmochimica Acta* **2007**, 71, (24), 5913-5933.
19. Rentz, J. A.; Kraiya, C.; Luther Iii, G. W.; Emerson, D., Control of ferrous iron oxidation within circumneutral microbial iron mats by cellular activity and autocatalysis. *Environmental Science and Technology* **2007**, 41, (17), 6084-6089.
20. Katsoyiannis, I.; Zouboulis, A.; Althoff, H.; Bartel, H., As(III) removal from groundwaters using fixed-bed upflow bioreactors. *Chemosphere* **2002**, 47, (3), 325-332.
21. Dimitrakos Michalakos, G.; Martinez Nieva, J.; Vayenas, D. V.; Lyberatos, G., Removal of iron from potable water using a trickling filter. *Water Research* **1997**, 31, (5), 991-996.
22. Chan, C. S.; Fakra, S. C.; Edwards, D. C.; Emerson, D.; Banfield, J. F., Iron oxyhydroxide mineralization on microbial extracellular polysaccharides. *Geochimica Et Cosmochimica Acta* **2009**, 73, (13), 3807-3818.
23. Chan, C. S.; Fakra, S. C.; Emerson, D.; Fleming, E. J.; Edwards, K. J., Lithotrophic iron-oxidizing bacteria produce organic stalks to control mineral growth: implications for biosignature formation. *ISME Journal* **2010**.

24. Wolthoorn, A. Subsurface aeration of anaerobic groundwater; iron colloid formation and the nitrification process. PhD thesis, Wageningen University, Wageningen, 2003.
25. van Beek, C. G. E. M.; Hiemstra, T.; van de Vossenberg, J.; Hofs, B.; Nederlof, M. M.; Van Paassen, J.; Reijnen, G., Homogeneous (flocculent), heterogeneous (adsorptive, auto-catalytic, contact-) and biological oxidation of ferrous iron. *In preparation* **2011**.
26. Tremblay, C. V.; Beaubien, A.; Charles, P.; Nicell, J. A., Control of biological iron removal from drinking water using oxidation-reduction potential. *Water Science and Technology* **1998**, 38, (6 pt 5), 121-128.
27. Cromphout, J., *Design and operation of a 24000 m³/day groundwaterproduction plant based on bacterial iron removal*, European Water Filtration Congress, Oostende, Belgium, March 15-17, 1993; Oostende, Belgium, 1993; pp 2.39-2.43.
28. Reijnen, G.; Akkermans, W., Biologisch-adsorptieve ontijzering op pompstation Susteren. *H2O* **2008**, 41, (21), 36-39.
29. Rott, U., Anwendung und Grundlagen einen neuen Verfahrens zur Enteisung und Entmanganung von Grundwasser im Boden, Vyredox methode. *BRR* **1975**, 26, (10), 357-362.
30. van Beek, C. G. E. M.; Vaessen, H., Ontijzering van grondwater in het watervoerend pakket. *H2O* **1979**, 12, (1), 15-19.
31. Vreeburg, J. H. G. Discolouration in drinking water systems: a particular approach. Ph.D. Thesis, TU Delft, Delft, 2007.
32. van de Wetering, S.; Abrahamse, A.; Beverloo, H.; Siegers, W.; Vreeburg, J. H. G.; Leijssen, H.; van Heugten, L.; Rouleaux, J.; Dignum, M. *BTO 2008.049, Deeltjes in zuivering en distributie, Symposium te Heel 29 oktober 2008*; KWR: Nieuwegein, 2008.
33. Czekalla, C.; Mevius, W.; Hanert, H., Quantitative removal of iron and manganese by microorganisms in rapid sand filters (in situ investigations). *Water Supply* **1985**, 3, (1), 111-123.
34. Gras, B.; Gijsbertsen, A. *BTO 2006.045 (s), Inventarisatie technieken deeltjesverwijdering, haalbaarheid gedkope deeltjesvangsters*; KWR: Nieuwegein, 2006.

I Artikel Cromphout, J (VMW); ijzerverwijdering PB Lommel

DESIGN AND OPERATION OF A 24000 M³/DAY GROUNDWATERPRODUCTION PLANT BASED ON BACTERIAL IRON REMOVAL

J. CROMPHOUT, Water Supply Company of Flanders - VMW, Brussel, B

ABSTRACT

The "Vlaamse Maatschappij voor Watervoorziening" (Water Supply Company of Flanders) is a public company, supplying drinking water to about 2.5 million people. In Lommel a groundwater production plant was built to fulfill the growing water demands in the northern part of the province of Limburg.

The iron containing groundwater is pumped out of 10 boreholes which are 200 m deep, each having a capacity of 100 m³/h.

In 1982 a provisional 5000m³/day capacity plant came in production. The removal of iron was realised by chemical precipitation and sedimentation.

In 1984 pilot experiments were carried out allowing the design of the definite plant with 24000 m³/day capacity. Iron removal is based on a biological filtration and the dosage of a cationic polyelectrolyte.

This plant became operational in July 1990. The results in respect to water quality and exploitation costs are very satisfactory.

RAW WATER QUALITY

Some chemical parameters of the water are given in table I.

Table I : Raw water quality.

	average of 3 boreholes provisional plant	average of 10 bore- holes
pH	7.1	7.0
Fe ⁺⁺ mg/l	6.1	8.1
Mn ⁺⁺ µg/l	29	31
As ⁺⁺⁺ µg/l	84	48
S.I.	-1.0	-1.1
DOC mg/l	1.7	3.0
NH ₄ ⁺ mg/l	0.1	0.5
Ca ⁺⁺ mg/l	23	20
alkalinity meq/l	1.56	1.36

The parameters to be removed or adjusted are iron, arsenic, ammonia and aggressivity.

PROVISIONAL WATER TREATMENT PLANT

Preliminary laboratory experiments showed that total iron removal was not evident since after aeration a considerable amount of non-filterable (colloidal) iron was formed.

Because of the urgent need of an increase in water production capacity, the V.M.W. decided to build a provisional 5000 m³/day capacity plant.

The plant was conceived as a turn-key project and was put out to contract after a competition tender between contractors specialised in water treatment.

The plant got ready in september 1982 only two years after the allocation.

Water treatment steps were :

- aeration by a disc aerator
- dosing of lime, alum and potassium permanganate
- coagulation
- sedimentation in lamella separators
- filtration through double layer filters
- pH correction by dosing caustic soda and disinfection by dosing sodium hypochlorite.

Some water quality parameters of the clear well from 1982 till 1990 are listed in table II.

Table II : water composition of clear well from 1982 till 1990 (trimestral control by central laboratory).

	average	standard deviation
Fe mg/l	0.047	0.045
Al mg/l	0.145	0.055
As mg/l	0.044	0.005
NTU	0.25	0.07

Aluminium breakthrough was very sensitive to the pH control of the coagulated water which was sometimes troublesome by difficulties occurring at the lime dosing equipment.

The use of P.A.C. instead of alum led to a lower aluminium content. During the last summers water production needed to be increased (up to 250 m³/h), which caused an increase in aluminium breakthrough.

Arsenic removal was rather poor and could not be improved substantially by dosing potassium permanganate.

PILOT PLANT.

An alternative water treatment scheme was looked for because of the aluminium breakthrough in the provisional plant and the rather high investment and operational costs of flocculation sedimentation units.

The several VMW plants where iron containing groundwater is treated by contact filtration, the occurrence of Gallionella bacteria in the raw water and the positive results published in literature about the biological removal of iron (Hasselbarth, 1973; Mouchet, 1979; Hettler, 1982). made us think of a contact filtration based on bacterial iron removal instead of a coagulation-sedimentation.

As the iron content of the water is rather high and the formation of colloidal iron was observed, a pilot plant was necessary. The process diagram of the pilot plant is shown in Fig.1.

The pressure filter was filled with 0.5 m sand : 0.8-1.2 mm and 1.5 m hydroantracite or pumice : 1.5-2.5 mm; the open filter was filled with marble grains.

Filtration velocity was from 7 to 15 m/h in the pressure filter and about 7 m/h in the open filter.

Oxygen was dosed by adding a certain amount of (aerated) drinking water to the raw water.

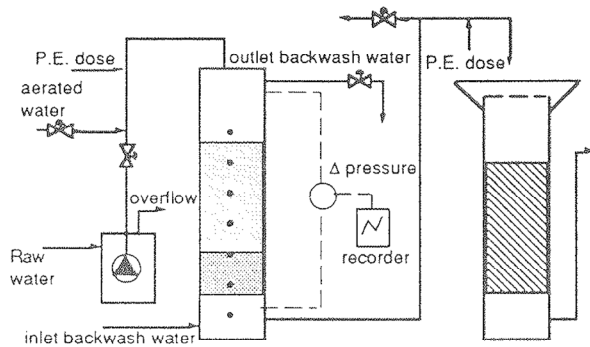


Fig. 1 Pilot Plant

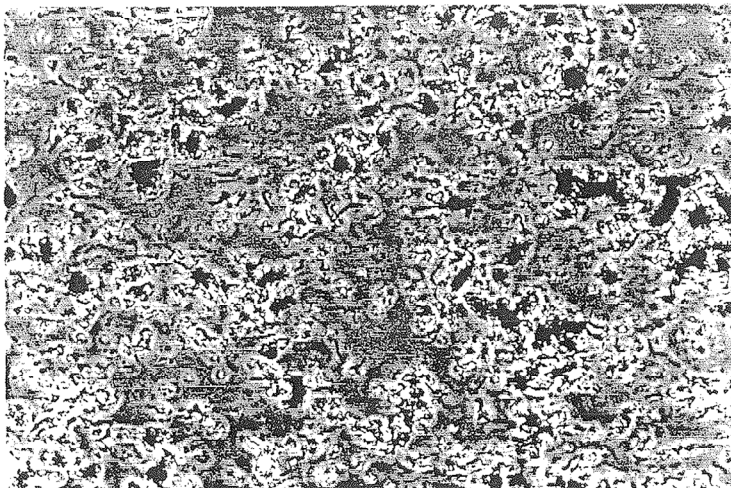
RESULTS

Pressure filter.

- Very soon after the starting up a massive development of iron bacteria in the bed was observed; Fig. 2 shows iron bacteria together with iron hydroxide deposits in the backwash water.
- Divalent iron breakthrough occurs when oxygen dosage was too low and after backwashing; by minimizing backwashing time filter run-in period was reduced.
- Trivalent iron amounts from 0.1-0.5 ppm occurred in the filtrate, the iron particles appeared to be colloidal, the ζ potential was about -17 mV. Trivalent iron breakthrough could be avoided by dosing small amounts of a cationic polyelectrolyte into the raw water. Some trivalent iron was already formed in the raw water vessel especially after a standstill.
- Backwashing was with compressed air for 30 seconds followed by water at a velocity of 60 m/h for 1-2 minutes. After backwashing some iron (and bacteria) remained in the filter, causing a residual head loss of 1-2 m W.C.
- A decrease of this initial head loss and thus an increase of the filter run time without an increase of the filter run in period accompanied with divalent iron breakthrough could be achieved by washing away with raw water the highly loaded water that is above the filterbed after backwashing.
- A filter run was interrupted at a head loss of 8-10 m W.C. Specific iron retention during a filter run was between 4000 and 8500 g/m².
- Arsenic removal was almost complete.

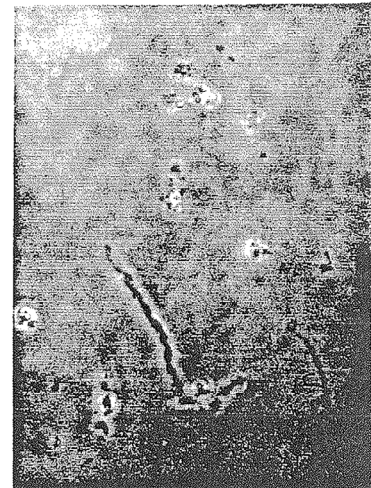
Open filter.

- Divalent iron was completely removed, trivalent iron (occurring when no polyelectrolyte was dosed into the raw water) could only be removed by dosing a cationic polyelectrolyte in the filter influent.
- Aggressivity was reduced by the marble filtration; the reactivity of the marble is not as high as expected, probably due to some coverage of the marble with iron deposits.



← 20 μm

Fig.2 Iron bacteria in backwash water



← 10 μm

CONCLUSION.

- Iron removal is almost complete in the pressure filter when : applying high filtration velocities, dosing small amounts of oxygen and limiting backwashing time; these are the favorable conditions of growth and deposition for iron bacteria.
- A second filtration step improves the reliability and if marble is used as filter material neutralisation costs are reduced.
- The formation of some colloidal trivalent iron could not be avoided; this iron can be retained either in the first or in the second filter when dosing a cationic polyelectrolyte in the filter influent.

24000 M³/DAY CAPACITY PLANT

Based on the results of the pilot experiments we were able to design the 24000 m³/day capacity plant. Due to some administrative problems construction started only in March 1988; the plant became operational in July 1990.

Description of the plant.

A flow scheme of the plant is shown in Fig 3. Biological filtration takes place in nine pressure filters grouped in three batteries. The diameter of the filters is 3m ,total height is 4.7 m. The filter bed consists of 0.9m sand and 0.9m pumice. Flow through every battery is kept constant by flow regulating valves in the three raw water effluent pipes. Aerated water is pumped into the common influent pipe by three centrifugal pumps (one for each battery).

The second filtration takes place in 4 open concrete filters, 4m wide and 9m in length. These filters are filled with 1.35 m of marble grains. Water level is variable, maximum head loss is 0.9 m.

Polyelectrolyte can be dosed before the pressure filters or before the open filters.

Final aeration is by a cascade.

Before storage and distribution the water is neutralised by NaOH and disinfected by NaOCl.

Backwash water from the pressure filters is evacuated directly to one of the two drying beds; the waste water from the open filters is allowed to settle in a decantor, sludge is pumped to the drying bed.

Ripening.

The three batteries were put into service systematically. During ripening the filtrate was evacuated to the waste. In about one month all filters were ripened.

Polyelectrolyte.

To avoid trivalent iron breakthrough the strong cationic polyelectrolyte polydiallyldimethyl ammonium chloride is dosed. In order to minimise the load on the open filters and to make the most of the deacidification capacity of the marble, polyelectrolyte is dosed at the first filtration. The effect of the amount of polyelectrolyte on the charge of the influent water can be measured by a streaming current detector (Milton Roy generation II). In Fig 4 average and standard deviation values of the streaming current during filter runs with different P.E. doses are shown. P.E. amount is expressed as 100% polydiallyldimethyl ammonium chloride.

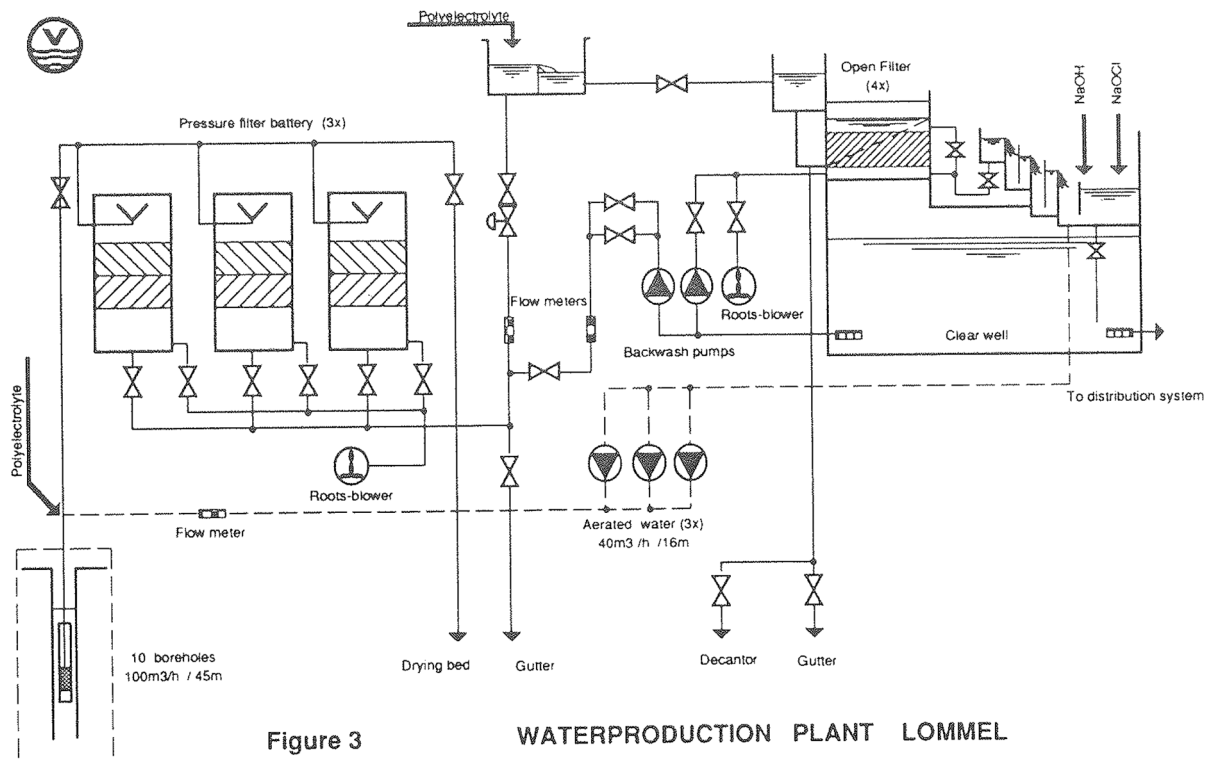


Figure 3

WATERPRODUCTION PLANT LOMMEL

Flow sheet

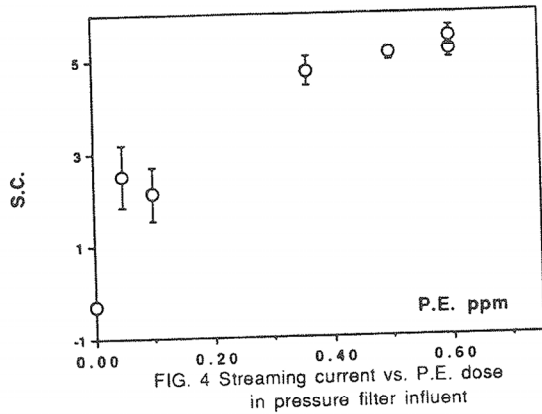


FIG. 4 Streaming current vs. P.E. dose in pressure filter influent

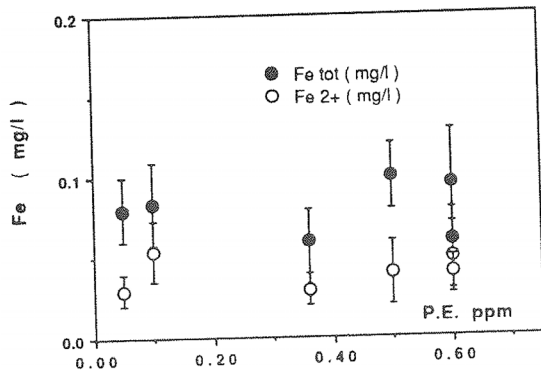


FIG. 5 Average and standard deviation of Iron and Turbidity in pressure filter effluent during filter runs with various P.E. doses.

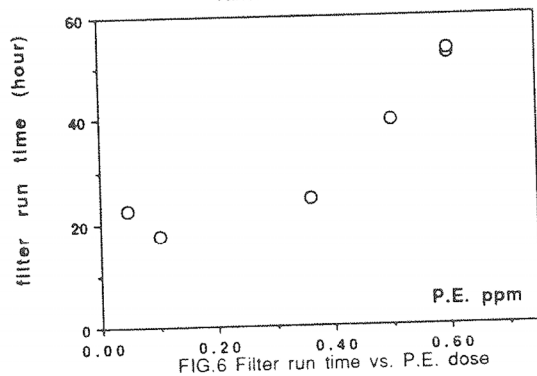


FIG. 6 Filter run time vs. P.E. dose

The influence of the P.E. dose on iron and turbidity in the bacterial filter effluent during a complete filter run is shown in Fig. 5.

Even at a low P.E. dose, filtrate quality is satisfactory.

The influence of the P.E. dose on the filter run time is however very remarkable (see Fig. 6). The increase of the filter runtime with increasing P.E. dose can be explained by the higher density of the deposits when more P.E. is dosed. The settled deposits in the backwash water had a dry solids content of 5.5 % when 0.6 ppm of P.E. was dosed and 1.5 % when 0.1 ppm was dosed.

Backwash water consumption for the pressure filters was 1.0 % with 0.6 ppm P.E. and 1.9 % with 0.1 ppm P.E.

Nevertheless a dose of 0.1 ppm is applied because the gain in waste water consumption could not compensate for the cost of a higher P.E. consumption.

Open filters backwash water consumption doesn't depend on P.E. dose and is less than 1 %.

Oxygen dosage in the raw water.

The maximum quantity of 12 % aerated water is added to the raw water; as the oxygen content of this aerated water is 8.5 ppm, the oxygen level in the raw water is raised to 0.9 ppm.

A decrease of the recycling rate to 11 % led to an increase of the iron content in the filtrate (from 0.1 to 0.3 ppm).

A difference in iron breakthrough between the different batteries, probably due to an uneven distribution of the aerated water, was observed. Results shown in the figures alongside are from the best performing battery.

In addition the recycling of such a high amount of water is energy consuming.

The recycling will be substituted by an aeration vessel in which air will be added through ceramic aerators in counter current with the raw water flow.

Water quality of the clear well.

Some water characteristics are listed in table III.

Table III : average water characteristics of clear well.

Fe ppb	20	pH	8.4
Al ppb	30	Ca ⁺⁺ ppm	31
As ppb	< 5	alkalinity meq/l	2.0
NH ₄ ⁺ ppm	0.0	T. hardness meq/l	1.8

Exploitation costs in comparison with the provisional plant.

Chemical costs are compared in table IV.

TABLE IV : chemical cost for drinking water production in BEF/m³ drinking water.

	provisional plant	actual plant	
P.A.C.	0.33	Polyelectrolyte	0.05
lime	0.12	marble	0.05
permanganate	0.06	caustic soda	0.14
caustic soda	0.10		
Total	0.61		0.28

In comparison to the provisional plant, sludge production is not half so much because the sludge no longer contains calcium carbonate and aluminium hydroxides. The cost for disposal at an industrial landfill is reduced from 0.15 BEF to 0.08 BEF per m³ of drinking water. The filtration through pressure filters and the recycling of water are giving rise to an extra pumping cost of 0.06 BEF/m³. Total waste water loss is reduced from 5 % to less than 3 %. Maintenance costs are now substantially lower due to the absence of a lime dosing equipment. Total exploitation costs are more than 0.34 BEF/m³ lower than earlier.

CONCLUSION

For the iron containing groundwater at Lommel a biological contact filtration followed by a marble filtration is very reliable and gives rise to low exploitation costs and excellent water quality.

REFERENCES

1. Hässelbarth, U and Lüdemann, D; *Removal of iron and manganese from groundwater by micro-organisms*; Water Treatment and Examination; 22; 1973; 62-77.
2. P. Mouchet et J. Magnin; *Un cas complexe de déferrisation biologique*; T.S. M. L'Eau; 77; 1982; 481-484.
3. Y. Badjo and P. Mouchet; *Appropriate technologies, example of a large biological iron removal plant in Togo*; Aqua Vol; 38; 1989; 197-206.
4. Matthew L. Pierce and Carleton B. Moore; *Adsorption of arsenite and arsenate on amorphous iron hydroxide*; Water Res.; 16; 1982; 1247-1253.

II Presentaties discussieworkshop ontijzering



Vorming van ijzerneerslagen uit grondwater: consequenties voor de zuivering

Kees van Beek (KWR), Tjisse Hiemstra (WUR),
Jack van de Vossenberg (KWR), Bas Hof's (KWR), Maarten Nederlof (KWR),
Jacques van Paassen (Vitens) en Gert Reijnen (WML)
KWR Watercycle Research Institute, 19 October 2010

KWR Watercycle Research Institute

Vorming van ijzerneerslagen, consequenties voor de zuivering

1. Theorie ontijzering

- Homogene oxidatie
- Heterogene oxidatie
- Biologische oxidatie

2. Toepassing op ontijzering in bereiding van drinkwater uit grondwater

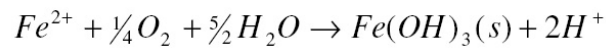
3. Conclusies: consequenties voor de zuivering

KWR

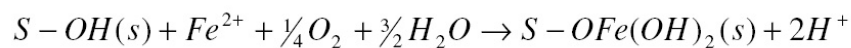
2

Oxidatie van opgelost ijzer(II): competitie tussen drie processen

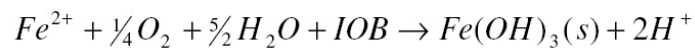
1. Homogene oxidatie



2. Heterogene oxidatie



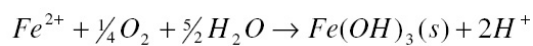
3. Biologische oxidatie



KWR

3

1. Homogene oxidatie van opgelost ijzer(II)



Tamura et al., 1976; Sung en Morgan, 1980; Dempsey, 2002

$$\frac{d}{dt}[Fe^{2+}] = -k_1 \frac{[Fe^{2+}][O_2]}{[H^+]^2} \Rightarrow t_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln 2 [H^+]^2}{k_1 [O_2]}$$

(bij constante $[O_2]$ en pH)

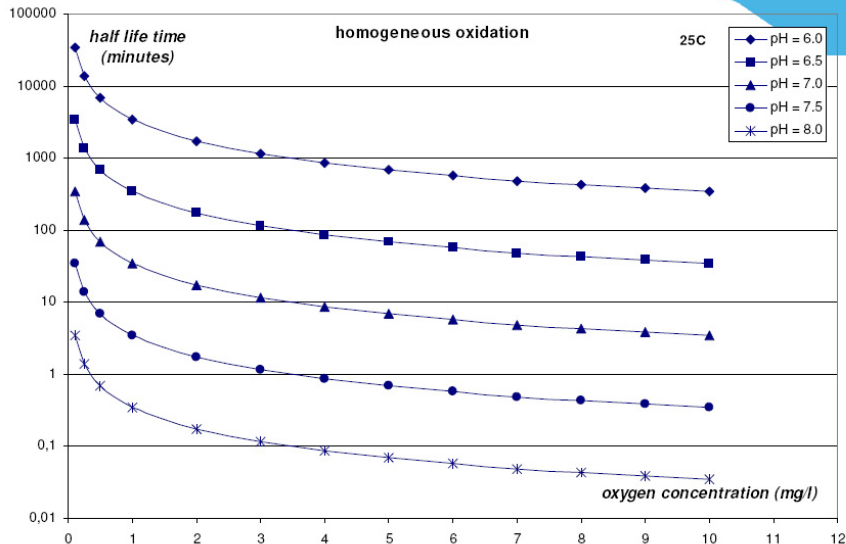
$$k_1 = 6,46 \cdot 10^{-12} \text{ mol/l} \cdot \text{min}^{-1}$$

waarde afhankelijk van temperatuur: bij 10^0C factor 10 kleiner

KWR

4

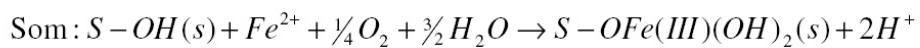
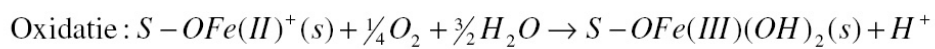
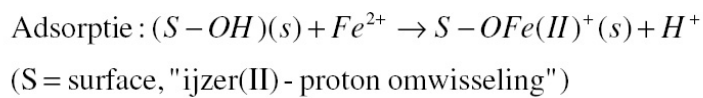
1. Homogene oxidatie van opgelost ijzer(II): halfwaarde tijd bij 25°C



KWR

5

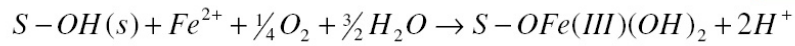
2. Heterogene oxidatie van opgelost ijzer(II): twee traps proces



KWR

6

2a. Heterogene oxidatie van opgelost ijzer(II): gelijktijdige adsorptie en oxidatie



Tamura et al., 1976; Sung and Morgan, 1980; Dempsey, 2002 :

$$\frac{d[Fe^{2+}]}{dt} = -k_2 \frac{[(S-OH)][Fe^{2+}][O_2]}{[H^+]} \Rightarrow t_{1/2} = \frac{\ln 2}{k_2} \frac{[H^+]}{[(S-OH)][O_2]}$$

bij constante pH en constante $[O_2]$ en $[S-OH]$

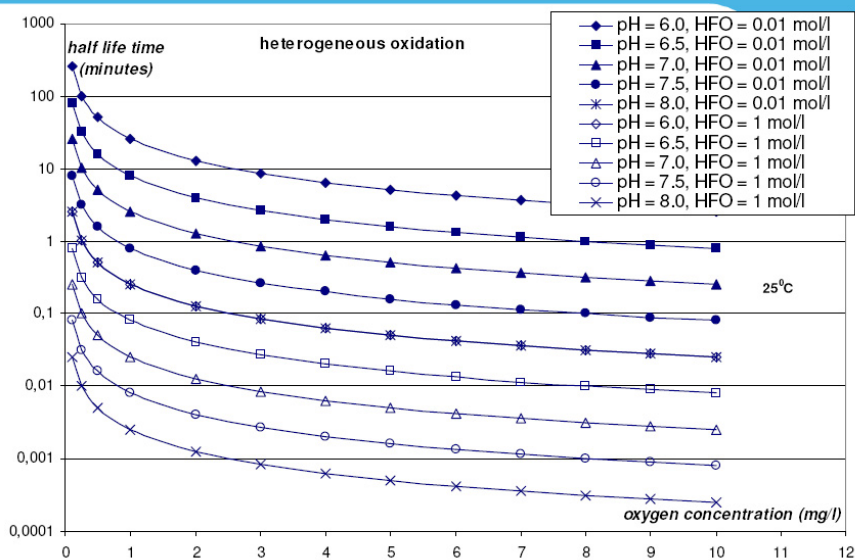
$$k_2 = 1,71 \cdot 10^{-5} \text{ l/mol.min}^{-1}$$

Tüfekci en Sarikaya (1996) : $k_2 = f([Fe(OH)_3])$

KWR

7

2a. Heterogene oxidatie van opgelost ijzer(II): gelijktijdige adsorptie en oxidatie

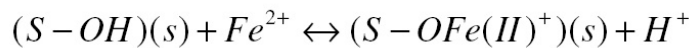


KWR

8

2b. Heterogene oxidatie van opgelost ijzer(II):
adsorptie en oxidatie gescheiden in tijd (vergelijk SIR)

Adsorptie (of "ijzer(II)–proton omwisseling"):



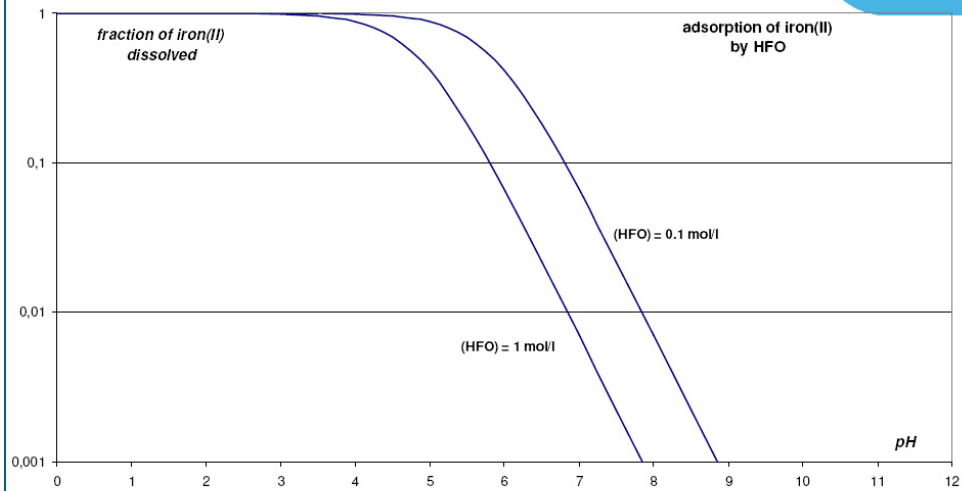
$$K_{FeIH} = \frac{[(S - OFe(II)^+)] [H^+]}{[(S - OH)] [Fe^{2+}]} = 10^{-4.85}$$

2b. Heterogene oxidatie van opgelost ijzer(II):
adsorptie en oxidatie gescheiden in tijd

Fractie opgelost ijzer(II):

$$\frac{[Fe^{2+}]}{[Fe^{2+}] + [(S - OFe(II)^+)]} = \frac{1}{1 + \frac{[(S - OFe(II)^+)]}{[Fe^{2+}]}} = \frac{1}{1 + \frac{K_{FeIH} [(S - OH^0)]}{[H^+]}} \approx \frac{1}{1 + \frac{K_{FeIH} [(S^*)]}{[H^+]}}$$

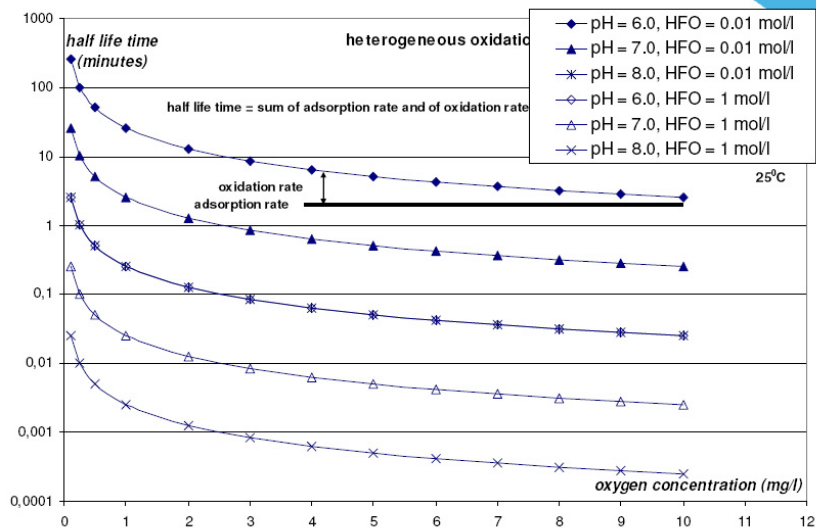
2b. Heterogene oxidatie van ijzer(II): adsorptie en oxidatie gescheiden in tijd



KWR

11

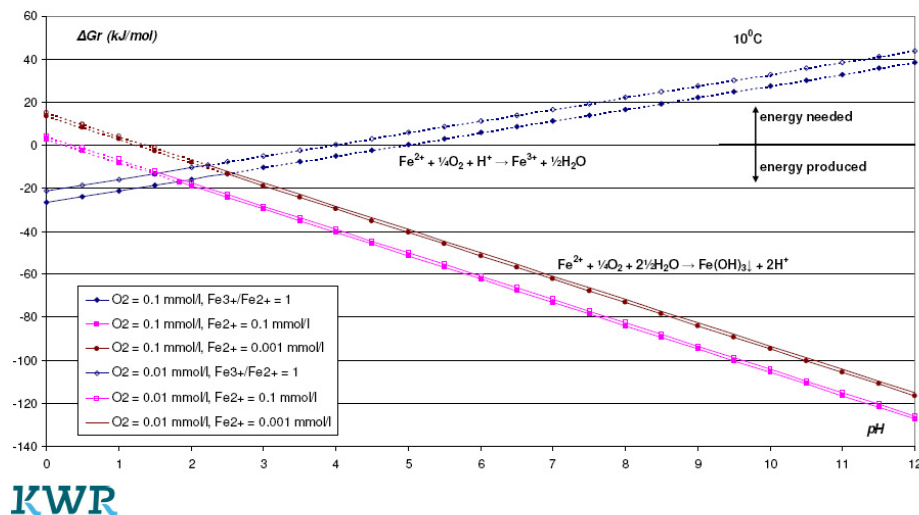
2b. Heterogene oxidatie van ijzer(II): adsorptie en oxidatie gescheiden in tijd



KWR

12

3. Biologische oxidatie van ijzer(II): energie balans



KWR

13

3. Biologische oxidatie van ijzer(II): energie balans

- Energie winst bij oxidatie van ijzer(II) tot ijzer hydroxide bij pH = 6 bedraagt bij 10°C circa 60 kJ/mol Fe
- Oxidatie van organisch materiaal levert onder representatieve grondwater omstandigheden (0,1 $\mu\text{mol/l}$ afbreekbaar organisch koolstof, 0,1 mmol/l zuurstof en 1 mmol/l koolstof dioxide) een energie winst van circa 450 kJ/mol C
- Om te voorzien in hun energiehuishouding dienen IOB grote hoeveelheden ijzer(II) om te zetten in ijzerhydroxiden
- Optimale omstandigheden voor IOB: gelijktijdige aanwezigheid van licht zure omstandigheden ($5,5 < \text{pH} < 7,5$) en lage zuurstof concentratie, zijn niet optimaal uit oogpunt van energiewinst

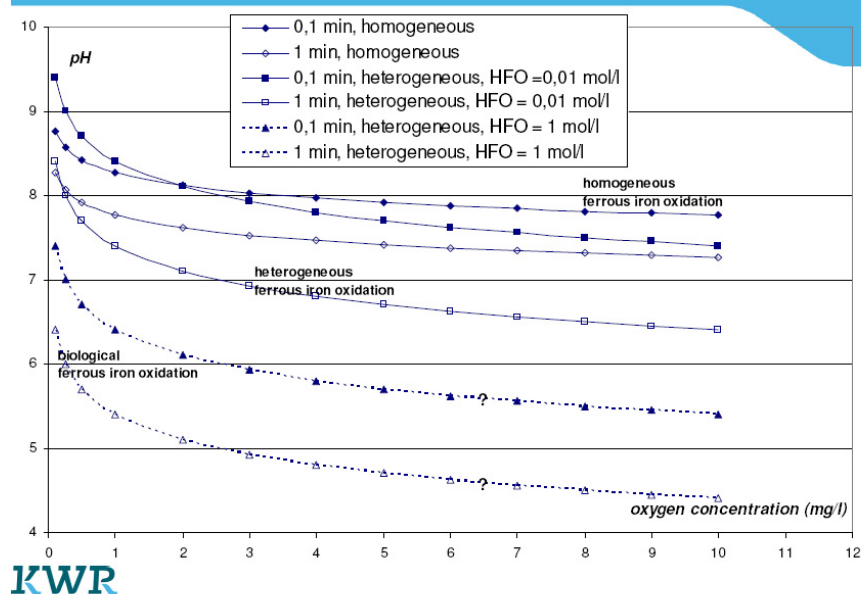
KWR

14

Biologische oxidatie van ijzer(II): adsorptiesnelheid is kritisch

- Competitie tussen heterogene en biologische oxidatie van ijzer(II) is niet zozeer een competitie tussen oxidatie snelheden, maar een competitie tussen adsorptie snelheden
- Om in deze competitie een voorsprong te verwerven scheiden IOB grote hoeveelheden EPS (Extracellular Polymeric Substance) uit
- Verschillende adsorptie mechanismen (adsorptie van ijzer(II) door ijzer(III)-hydroxylgroepen \neq adsorptie door $-OH$ groepen van celwanden en EPS)

Homogene, heterogene en biologische oxidatie van ijzer(II): verdeling van processen



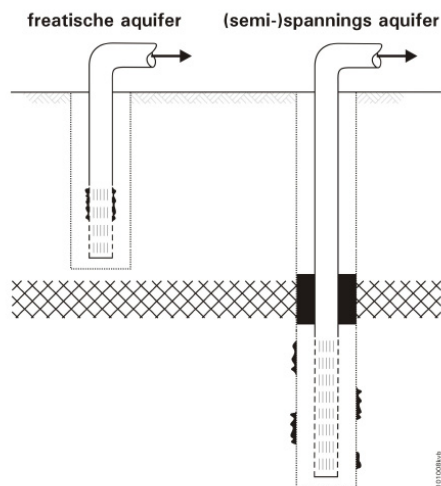
Conclusies Drinkwaterbereiding, I

- Bijdrage van homogene oxidatie aan verwijdering van ijzer is onder gebruikelijke omstandigheden ($5,5-6 < \text{pH} < 7-7,5$) (in het filter) verwaarloosbaar
- Desalniettemin is de ontijzering door beluchting en filtratie naar dit proces geoptimaliseerd
- Bij aanwezigheid van voldoende ijzer(III)hydroxiden levert onder gebruikelijke omstandigheden heterogene oxidatie de grootste bijdrage aan de ontijzering
- Minimalisatie van de verblijftijd in het bovenwater van het filter leidt tot minimalisatie van homogene oxidatie
- Afwezigheid van homogene oxidatie, dus geen vorming van ijzervlokken, en van biologische oxidatie, dus geen vorming van biomassa, minimaliseert filterspoelen
- Advies: ontijzering optimaliseren naar heterogene oxidatie (discontinue beluchting? upflow?)

KWR

17

Twee typen grondwater



KWR

18

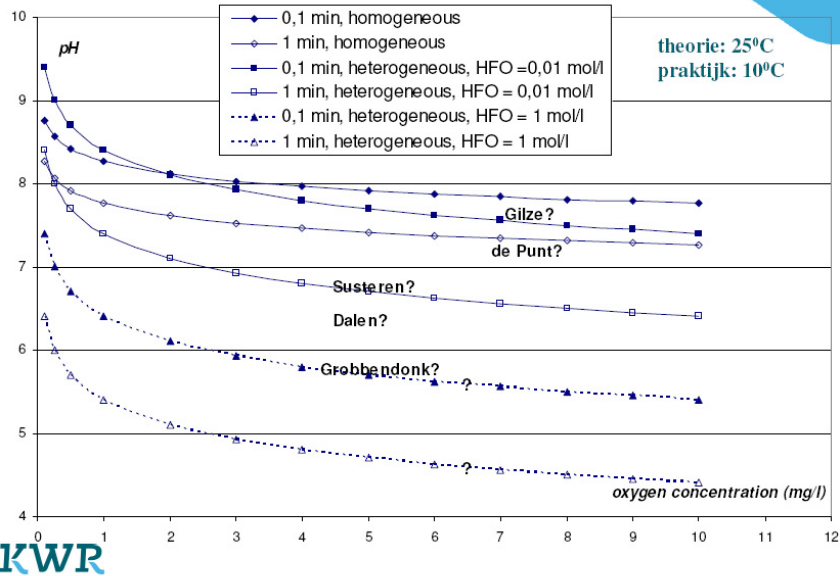
Conclusies Drinkwaterbereiding, II

- (Semi-)spannings grondwater bevat geen zuurstof, en dus geen IOB. De relatief hoge waarde voor de pH maakt dit water bij uitstek geschikt voor heterogene oxidatie van ijzer.
- Een onderzoeksdoel zou kunnen zijn het overbodig maken van filterspoelen. Spoelen is alleen nodig om verkitting van ijzerhydroxiden tegen te gaan, en grote korrels te verwijderen en kiemen toe te voegen.
- Freatisch grondwater bevat zuurstof (gekenmerkt door het optreden van filterspleet putverstopping) en zal de zuivering voortdurend voorzien van IOB. Al in de verzamelleidingen zal (premature homogene) oxidatie optreden.
- Op deze zuiveringen is een geringe bijdrage van biologische oxidatie aan de zuivering onvermijdelijk. Deze bijdrage is pH-afhankelijk.

Conclusies Drinkwaterbereiding, III

- Veel verschijnselen die in de literatuur worden toegeschreven aan biologische oxidatie kunnen beter worden verklaard door het optreden van heterogene oxidatie.
- In de literatuur zijn vele verwijzingen naar verwijdering van ijzer door biologische oxidatie, maar het dominante proces is heterogene oxidatie.
- Deze methode wordt gekenmerkt door lage zuurstofconcentraties en hoge filtersnelheden.
(methode biologische oxidatie \neq proces biologische oxidatie)
- Omdat deze methode verwijst naar een proces, wordt voorgesteld deze methode biologische ijzerverwijdering te noemen.

Homogene, heterogene en biologische oxidatie van ijzer(II): locaties



21

Iron hydroxiden zijn overal!



KWR

22

oaseo

***Gallionella* spp. in drinkwater filters**

De rol van biologische ijzeroxidatie

KWR workshop
ontijzering

Lekkerkerk,
19 oktober, 2010



Weren de Vet

 **TU**Delft

Introductie

Gebruik qPCR voor balansen

Opmerkelijke/discutabele resultaten

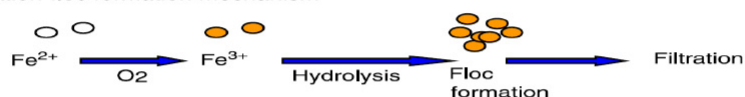
Waarom relevant?

Waarom aandacht voor biologische ijzeroxidatie relevant?

- Modellen werken soms niet, ontwerpen zijn niet optimaal, vanwege hiaten in kennis;
- IJzeroxidatie loopt soms onverklaarbaar slecht, ook als deze niet homogeen is
- Er zijn veel GW stations met omstandigheden tussen de extremen (pH, DO, oxidatietijd,..);
- Wat kan er misgaan: niet optimale bedrijfsvoering, nitrificatieproblemen;
- Wat kan er beter: hoogbelaste ontijzeringssystemen zijn mogelijk breder toepasbaar;

Drie ijzer verwijderingsmechanismen

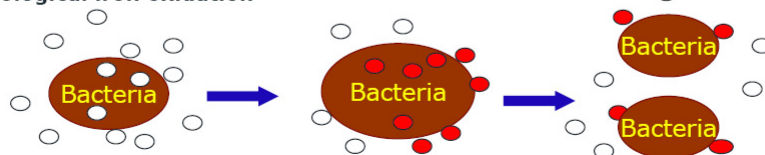
Oxidation-floc formation mechanism



Adsorption-oxidation mechanism

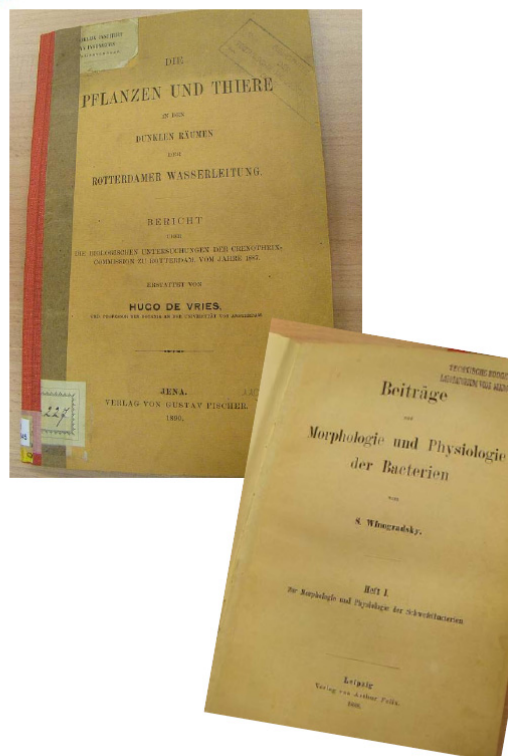


Biological iron oxidation



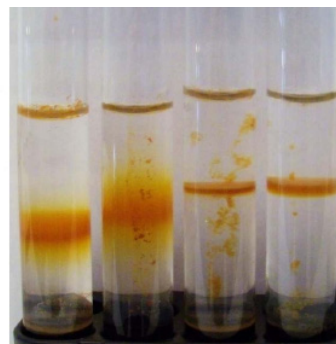
Wat historie

- Van Leeuwenhoek: ontdekking bacterie met microscoop (1676)
- Pasteur: bewijs tegen *generatio spontanea* (1864)
- Winogradsky (1889):
 - (Chemo)autotrofie: CO₂ als koolstof bron;
 - (Chemo)lithotrofie: anorganische stof als energiebron (elektrondonor)
- IJzerkalamiteiten
 - (1882-Berlijn, 1890-Rotterdam)

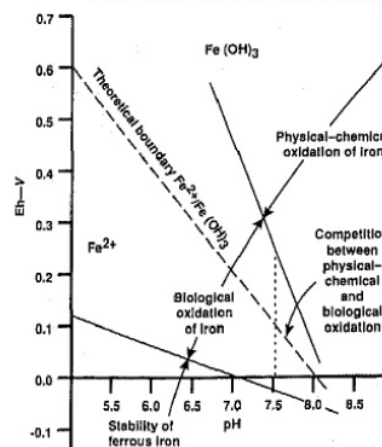


Bacteriële ijzeroxidatie

- Veel ijzeroxiderende bacteriën
- Gallionella, model ijzeroxideerder:
 - Herkenbaar door morfologie
 - Strikt lithotroof, groeit niet op organisch materiaal (Lütters-Czekalla, 1990);
- Groeivoorwaarden:
 - Aanwezigheid ferro ijzer met lage DO en/of lichtzure pH (Hallbeck and Pedersen, 1990; Emerson and Floyd, 2005)
 - Stabiliteit ferro ijzer in combinatie met zuurstof is cruciaal, meer dan alleen pH of Eh (Hanert, 2006) .



http://commons.wikimedia.org/wiki/Gallionella_drawing.png



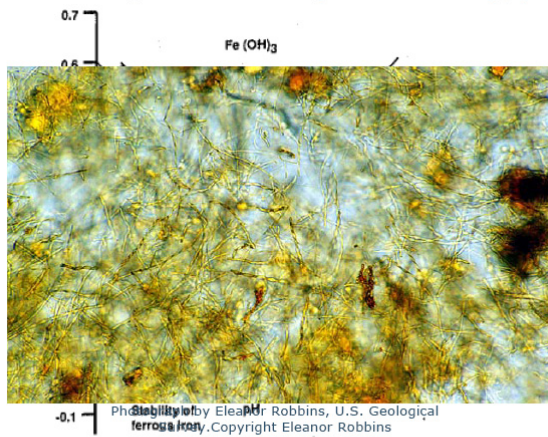
Mouchet, 1992

Bacteriële ijzeroxidatie

- Veel ijzeroxiderende bacteriën
- Gallionella, model ijzeroxideerder:
 - Herkenbaar door morfologie
 - Strikt lithotroof, groeit niet op organisch materiaal (Lütters-Czekalla, 1990);
- Groeivoorwaarden:
 - Aanwezigheid ferro ijzer met lage DO en/of lichtzure pH (Hallbeck and Pedersen, 1990; Emerson and Floyd, 2005)
 - Stabiliteit ferro ijzer in combinatie met zuurstof is cruciaal, meer dan alleen pH of Eh (Hanert, 2006) .



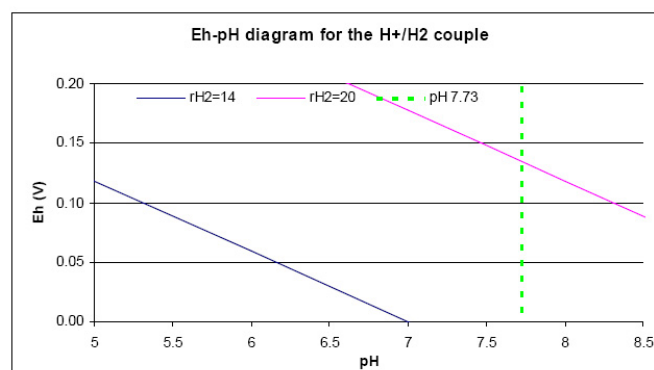
http://commons.wikimedia.org/wiki/Gallionella_drawing.png



Mouchet, 1992

Het biologische werkgebied volgens Degrémont (2007)

$$E_h = E_o + \frac{2.3026RT}{2F} \log \frac{[H^+]^2}{p_{H_2}} \quad E_h / \left(\frac{2.3026RT}{2F} \right) + 2pH = -\log p_{H_2} = r_{H_2}$$



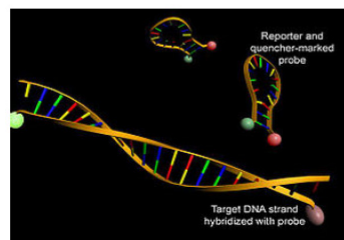
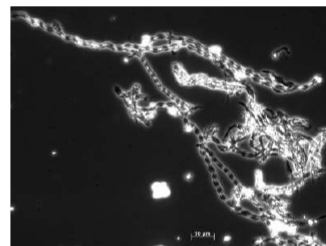
Degrémont (ed) (2007) Water Treatment Handbook, Lavoisier SAS.



oaseo

Detectie van biologische ontijzering

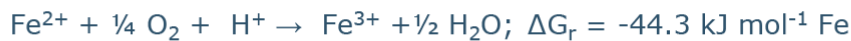
- Procesomstandigheden (hoge filtratiesnelheid, lichte-zure ph en lage zuurstof concentratie in te behandelen water);
- Morfologie (fasecontrast microscopie);
- REAL-TIME PCR voor celtelling van *Gallionella* spp. met een specifieke primer ontwikkeld op kenmerkend stuk 16S-rRNA
 - PCR-reactie met fluorescente probes
 - Aantal cycli tot drempelwaarde signaal wordt bereikt, is maat voor originele DNA-aantallen
 - Kalibratie met bekende concentratie cellen of DNA-fragmenten



http://en.wikipedia.org/wiki/File:Molecular_Beacons.jpg

Energie- en celopbrengst

- Standard condities ($p_0 = 1 \text{ bar}$; $T = 298.15 \text{ K}$; $\text{pH} = 0$):



- Neutrale condities ($p = 0.1 \text{ bar}$; $T = 285 \text{ K}$; $\text{pH} = 7.3$; 0.1 mM Fe^{2+}) :



- Vormingsenergie autotrofe biomassa $3500 \text{ kJ C mol}^{-1}$;

- Theor. max yield $0.05 \text{ g DW g}^{-1} \text{ Fe} = 4 \times 10^{11} \text{ cellen g}^{-1} \text{ Fe}$; literatuur: LAGER!

Cell DW of $1.2 \times 10^{-13} \text{ g}$ (Gem. volume $0.4 \mu\text{m}^3$; Hallbeck and Pedersen, 1991).

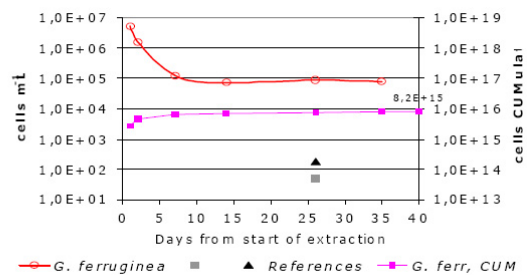
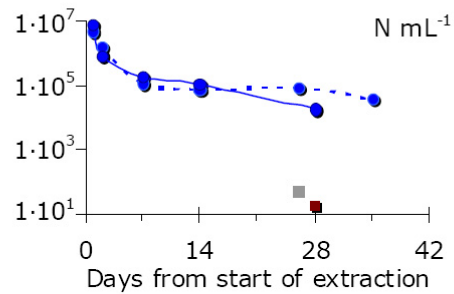
Hallbeck, L. and Pedersen, K. (1991) Autotrophic and mixotrophic growth of *Gallionella ferruginea*. *Journal of General Microbiology* 137(11), 2657-2661.



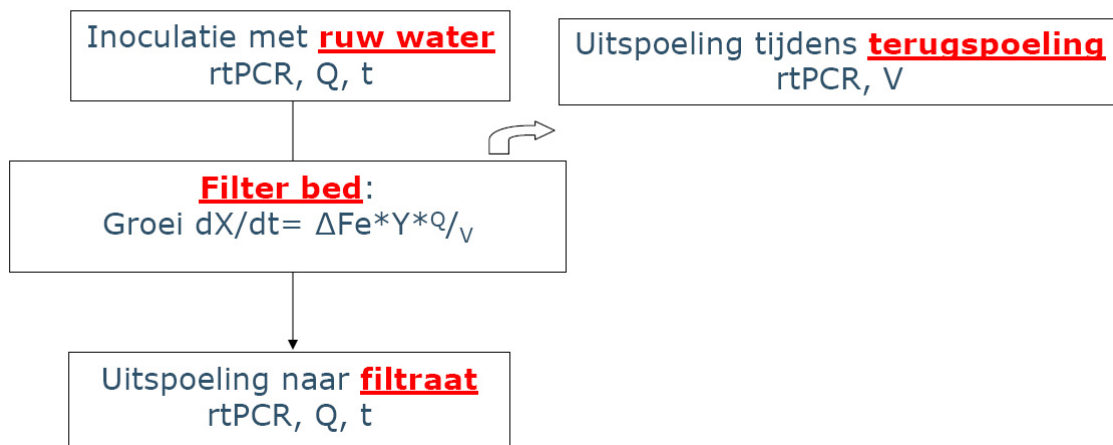
Ondergrondse ontijzering/beluchting

Benadering biologie per cyclus:

- maximum amount of iron oxidized:
 $1 \times 10^5 \text{ g Fe}$
- Total gegroeide *Gallionella spp.*:
 $8 \times 10^{15} \text{ cells} = 1 \times 10^3 \text{ gDW}$
- Yield g^{-1}Fe :
 - $8 \times 10^{10} \text{ cellen} = 0.01 \text{ gDW}$
- Theoretisch max yield:
 - $4 \times 10^{11} \text{ cellen} = 0.05 \text{ gDW}$
 - dus ongeveer 20% biologisch (minimaal!)



Gallionella spp. balansen in filters



Gallionella spp. groeien in full-scale trickling filters

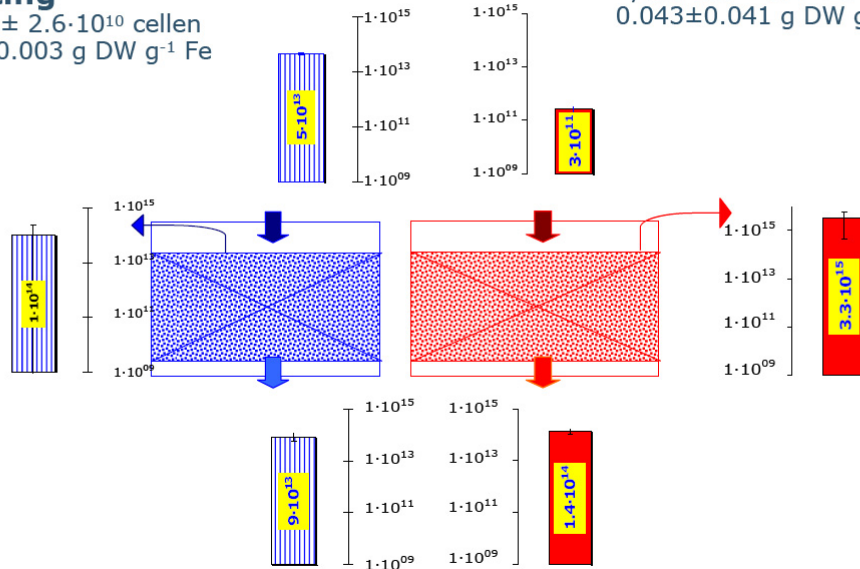
Gallionella spp. balansen in productiefilters

Met ondergrondse beluchting

•yield $2.0 \pm 2.6 \cdot 10^{10}$ cellen of 0.002 ± 0.003 g DW g^{-1} Fe

Referentie

•yield $3.6 \pm 3.4 \cdot 10^{11}$ cellen of 0.043 ± 0.041 g DW g^{-1} Fe

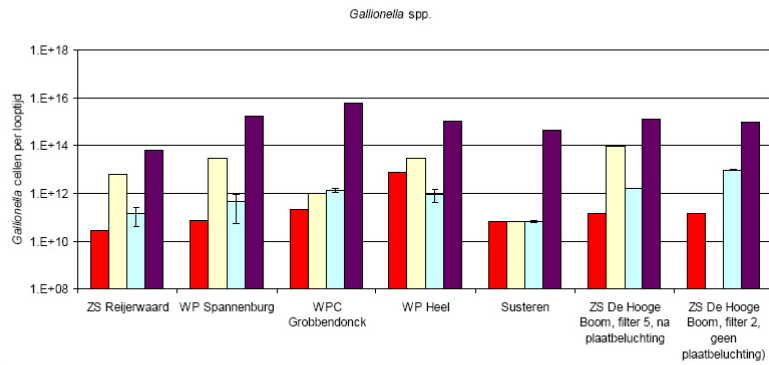


19 oktober 2010 | KWR workshop ontijzering, biologische ijzeroxidatie

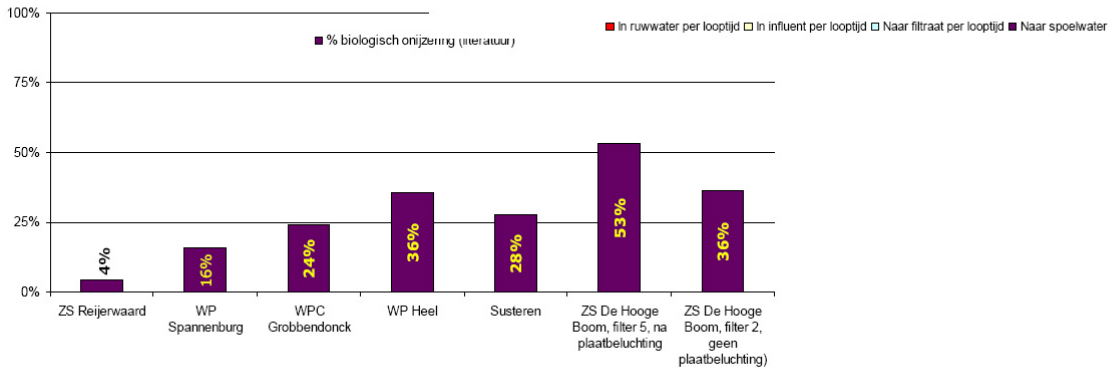
15 van 23



Gallionella screening



Aandeel biologische ijzeroxidatie in ij

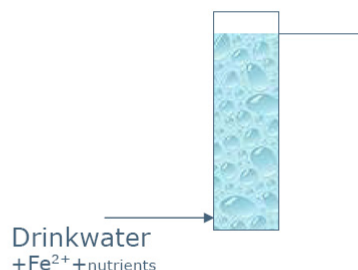
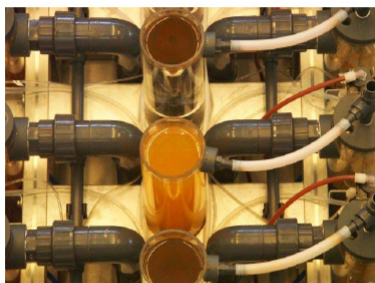


19 oktober 2010 | KWR workshop ontijzering, biologische ijzeroxidatie

16 van 23

Oxidatiekolommen

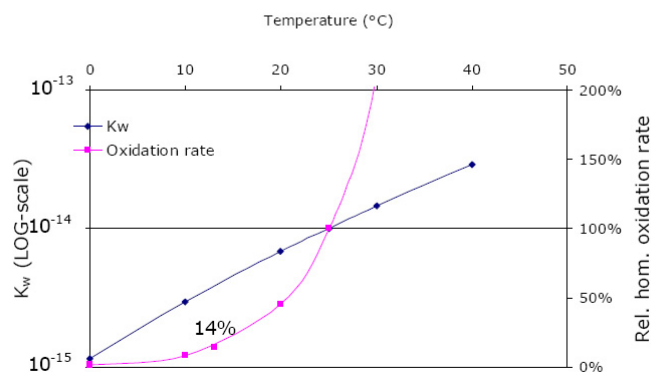
pH afhankelijkheid van *Gallionella* groei en ijzer-oxidatiesnelheid



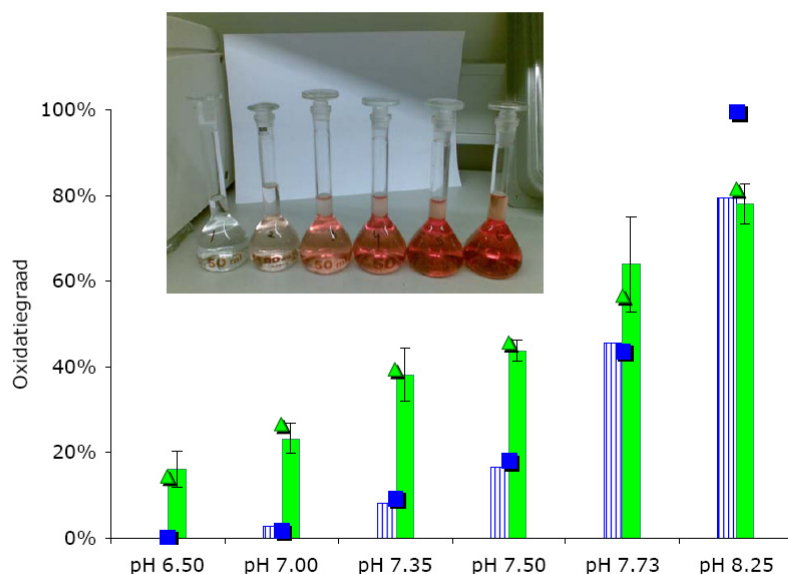
- $D=0.089$ m; verblijftijd 16 min
- Drinkwater, 13 °C, $DO > 80\%$
- 3.2 ± 0.1 mg L^{-1} Fe^{2+}
- pH correctie met HCl of NaOH; dosering uit titratiecurven in drievoud

Homogene chemische ijzer oxidatie

- ... oxidatiesnelheid sterk afhankelijk van pH (Sung, 1980) ...
- $$-dFe/dt = k_1 * [OH^-]^2 * P_{O_2} * [Fe^{2+}]^m \quad \text{met} \quad k_1 = 4 \times 10^{13} \text{ M}^{-2} \text{ atm}^{-1} \text{ min}^{-1} (25^\circ\text{C}, 0.009M)$$
- ... maar ook van de temperatuur (K_w):



Oxidatiegraad na oxidatiekolommen



Legenda

- Blauw gestreepte balken: na 5 dagen (~alleen homogene oxidatie)

- Groene balken: gemiddelde en StDev. 2 t/m 7 de week

Waarom is heterogene oxidatie zo traag?

Eind van 7 weken onderzoek met oxidatiekolommen:

- Gemiddelde ferri ijzer concentratie is 9 tot 18 mM
- Heterogene oxidatiesnelheidsconstante $k_2 * Fe^{3+}$ is 1-35 min^{-1} (voor de pH 6,5 tot 8,25 resp.)
- Na 15 minuten verblijftijd zou de chemische oxidatie in alle oxidatiekolommen nagenoeg volledig moeten zijn.

$$-dFe/dt = (k_1 + k_2 * [Fe^{3+}]) * [Fe^{2+}]$$

Where

$$k_1 = k_{hom} * [OH^-]^2 * P_{O_2}$$

(homogeneous oxidation rate constant)

$$k_2 = k_{s,o} * [O_2] * K * [H^+]^{-1}$$

(heterogeneous oxidation rate constant)

$$k_{s,o} = 4380 M^{-1} min^{-1}$$

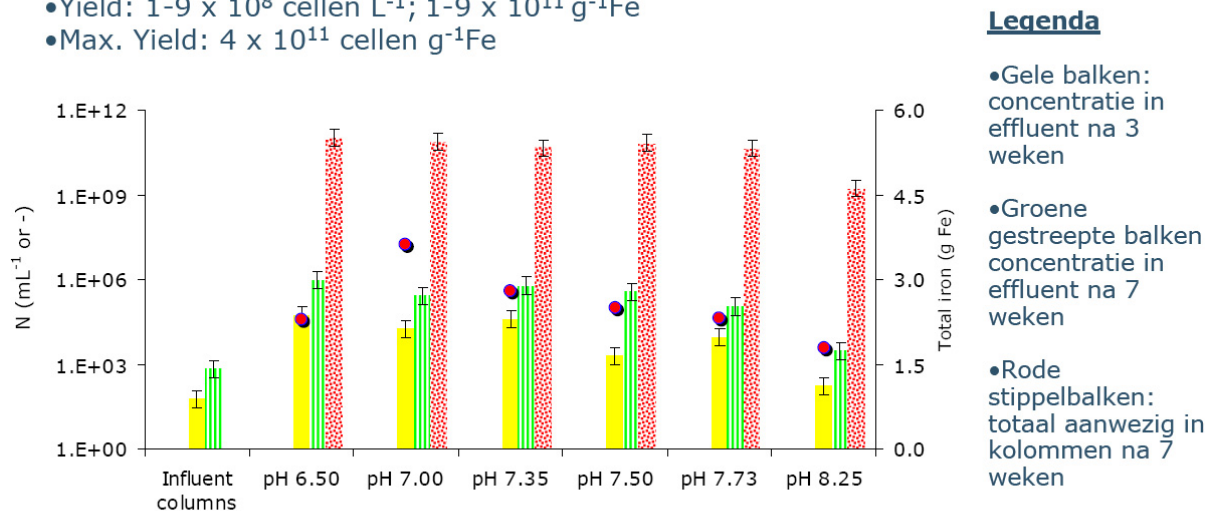
(Surface rate)

$$K = 10^{-4.85}$$

(Adsorption constant of Fe^{2+} on $FeOOH$)

Gallionella spp. groei in oxidatiekolommen

- Na 7 weken: extra Fe geoxideerd 1 mg L^{-1}
- Yield: $1-9 \times 10^8$ cellen L^{-1} ; $1-9 \times 10^{11} \text{ g}^{-1}\text{Fe}$
- Max. Yield: 4×10^{11} cellen g^{-1}Fe



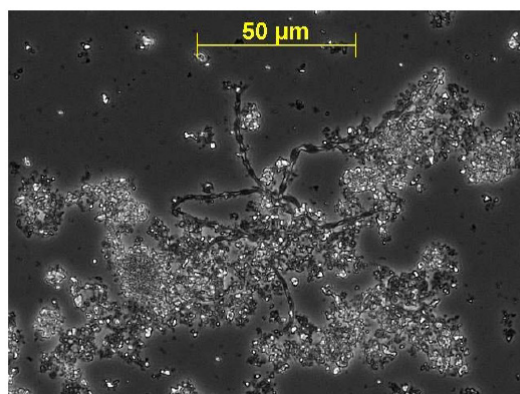
Trage heterogene oxidatie en Gallionella groei in brede pH range

Biologische ontijzering..

- ..treedt op onder onverwachte omstandigheden;
- ..kan een grotere rol spelen dan verwacht;
- ..verdient aandacht bij onderzoek en ontwerp.

oaseo

Dank jullie voor de aandacht
en de verstandige suggesties!



35 jaar praktijkervaring ontijzering

Opvallende zaken en suggesties voor
praktijk en onderzoek

Gert Reijnen
19 oktober 2010

Opvallende zaken *aard ijzeroxiden*

- Verschillende tinten rood
 - donkerbruin, rood, geel
- Substantie
 - Aankoekend aan sproeiers, wanden en grind
 - Soms korrels zonder grindkern
 - Vervangen grind droogfilters met hoge Vf na 3 jaar ^{x)}
 - Alleen Fe slib tussen grind na spoelen
 - Nauwelijks aangroei
 - Grind zwart na spoelen
- Spoelwater
 - IJzer in spoelwater bezinkt snel, laatste beetje kan heel langzaam bezinken

x) WMO 1 maal per 1-3 jaar grind uit filters

Opvallende zaken

troebelheid en deeltjes

- Relatie Fe en troebelheid lineair
 - Per locatie anders
 - Voor- en nafilters verschillend
 - Eerste filtraat na spoelen afwijkend
- Oorzaak: verschil deeltjesgrootte
 - Aanvankelijk aanname
 - Aangetoond BTO klassieke zuivering
- Troebelheidsmeter effectief voor optimaliseren en bewaken
 - Benutting kan (veel) beter

Opvallende zaken

“doorslag “ deeltjes

- (veel) doorslag deeltjes na spoelen
 - Stel tot 1 uur
 - Harderbroek 50% totale deeltesafgifte (BTO/Vitens)
 - Tailing = verblijftijd spreiding (soms vele uren tot > 10!)
 - *Doorslag nooit helemaal te voorkomen (! Of ?)*
- Doorslag deeltjes na snelheidsverhoging
 - Afschuif spanning
 - Gevoeligheid verschilt per locatie
 - Droogfilters zeer gevoelig!

Opvallende zaken

techniek

- Zelden gelijkmatige filterbelasting
 - Reinwaterberging (vaak) niet voor kwaliteit maar voor kwantiteit
 - Brand, leveringszekerheid, gemak(szucht)
 - Geen productie prognose
 - (te) hoge filterbelasting na spoelen
 - Gesloten filters zonder filterregeling
 - Schoonste filter hoogste belasting
 - Slechte debiet verdeling over filters
 - Vooral als filterweerstand relatief groot deel van totale weerstand over beluchting en (regel)kleppen uitmaakt

Opvallende zaken

techniek (vervolg)

- Voorkeurstromen door niet homogeen spoelen
 - Vermoedelijk (te) vaak slechte spoelluchtverdeling over filteroppervlak
 - Watergolven onder doppenbodem
 - Te kleine gaatjes in dompelpijpjes → lucht onder dompelpijpje
 - Niet te zien aan oppervlak tijdens spoelen!
 - Te hoge watersnelheid bij gemengde spoeling
 - Locale collapse pulsing ?
 - Slechte waterverdeling bij spoelen?
 - Te lage drukval spoeldoppen (< 0,5 à 1 mWk)
 - Critisch bij expansie spoelen (wave)

Waarom *ontstaan deeltjes*

- Putten/formatie
 - Aandeel gering?
- Vervuilde toevoerleidingen
 - Dichtslaan filters Peij Echt
- Beluchttings installatie
- Spoelen lucht en water
 - Losmaken ijzer is feitelijk ook doel gemengde spoeling
 - Verklaring deeltjes Susteren adsorptief biologische ontijzering pH 6,8
- Focculente aandeel ontijzering (bovenwater)

Aandacht!

- Filters zeer slechte ontijzering: geen biologische processen
 - 2 locaties
 - Geen ammonium
 - BTO Guus Ijpelaar (rapport?)
- Geen rest ontijzering nafilters Susteren
 - Geen NH₄ in grondwater
- Wel rest ontijzering nafilters Beegden
 - Wel nitrificatie en bacteriegroei nafilters

Kansen verbetering *technisch*

- “Goedkope” deeltjesvanger in eerste filtraat
 - Uitkomst uitvinderssessie BTO klassieke zuivering
 - Ceramische microfiltratie?
 - 1 snelfilter inrichten voor polishing eerste filtraat
 - Eerste filtraat langer naar spoelw. hergebruik installatie
 - Recirculatie eerste filtraat (Brabant Water)
 - Langzaam snelheid opvoeren naar filtratiesnelheid (prof. Huisman)
- Langzaam snelheid verhogen prod. toename
 - BTO fuzzy logic metingen De Punt (voor 2000)

Kansen verbetering *technisch (vervolg)*

- Geen/weinig pH verhoging (als effectief)
- Gelijkmatische belasting zuivering
 - Kelderinhoud effectief ca 25% max dag productie
 - Installeer prognose regeling productie
 - Leg samen met operators minimale kelderniveau vast (WML 40% + 2 uur productie)
- Troebelheid op scada
 - Benoem verantwoordelijke kwaliteitsgericht produceren
 - Evalueer verloop op kwaliteitsoverleg

Kansen verbetering *onderzoek*

- Meet en gebruik lading ijzerdeeltjes
 - “Tool” voor oorzakelijke verbanden
 - Aandacht invloed pH
- Onderzoek relatie biofilm en ijzerafzetting (zie N.B.)
 - Toename BVS in gietijzer
 - IJzerafzetting (IJAS) biofilm monitor
 - Versterkt ijzer biofilmvorming?
 - Is invangen ijzer in biofilm nevenaspect?
- Techniek meten voorkeurstromen snelfilters
 - ATA proof

N.B. Geen nagroei net Plasmolen, wel troebelheid 0,5 FTU: schoonste net WML!!

Redenen *niet verbeteren ontijzering*

- Ontijzeren kunnen we wel
- Onderzoek “smoelt niet” in high tech tijd
 - Modelleren effectieve “boost”?
- Net moet toch regelmatig schoongemaakt
 - Gietijzeren leidingen
 - Aeromonas en beestjes
- Weinig klachten
 - Deel klachten geregistreerd
 - Bij WML veel minder dan raming Jan Vreeburg
 - Mensen klagen niet snel

III Deelnemerslijst discussieworkshop

Stephan vd Wetering	Brabant Water
Bas Hofs	KWR
Kees van Beek	KWR
Menno van Leenen	Oasen
Weren de Vet	Oasen, TU Delft
Koen Huysman	Pidpa
Koen Joris	Pidpa
Mark van Loosdrecht	TU Delft, KWR
Jacques van Paassen	Vltens
Jantinus Bruins	WLN
Robert Schots	WLN
Luc Palmen	WML
Gert Reijnen	WML/pensioen

IV Lijst van de gevonden literatuur

De lijst hieronder is de lijst met alle literatuur die gevonden is over ijzerverwijdering via zoektochten bij KWR, via Scopus (www.scopus.com) en dankzij verwijzingen van diverse personen. Dit is niet de lijst met referenties! Deze lijst is niet uitputtend; zie bijvoorbeeld Van Beek *et al.*, 2010 voor meer referenties.

- [1] O.A. Adekoya, Optimisation of iron removal in an aeration/filtration process, in, TU Delft, 1995.
- [2] H. Brink, S. Dost, M. Boorsma, Biologisch ontijzeren in Dalen: nieuw licht op een oude technologie, *H2O*, 40 (2007) 23-25.
- [3] J.H. Bruins, H. Wolters, G.H. Wubbels, Gallionella ferruginea: 'lust of last'?, *H2O*, 31 (1998) 20-23.
- [4] R. Buamah, Adsorptive removal of manganese, arsenic and iron from groundwater, in, TU Delft/WUR, 2009, pp. 184.
- [5] R. Buamah, B. Petrusevski, J.C. Schippers, Oxidation of adsorbed ferrous iron: kinetics and influence of process conditions, *Water science and technology : a journal of the International Association on Water Pollution Research*, 60 (2009) 2353-2363.
- [6] C.S. Chan, S.C. Fakra, D.C. Edwards, D. Emerson, J.F. Banfield, Iron oxyhydroxide mineralization on microbial extracellular polysaccharides, *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 73 (2009) 3807-3818.
- [7] C.S. Chan, S.C. Fakra, D. Emerson, E.J. Fleming, K.J. Edwards, Lithotrophic iron-oxidizing bacteria produce organic stalks to control mineral growth: implications for biosignature formation, *ISME Journal*, (2010).
- [8] J. Cromphout, Design and operation of a 24000 m³/day groundwater production plant based on bacterial iron removal, in: European Water Filtration Congress, Oostende, Belgium, 1993, pp. 2.39-32.43.
- [9] A. de Lathouder, COFICO Mededeling 9, Richtlijnen ten dienste van het ontwerpen en de behandeling van snelfilters, in, KIWA, 1965.
- [10] W.W.J.M. de Vet, I.J.T. Dinkla, G. Muyzer, L.C. Rietveld, M.C.M. van Loosdrecht, Molecular characterization of microbial populations in groundwater sources and sand filters for drinking water production, *Water Research*, 43 (2009) 182-194.
- [11] W.W.J.M. de Vet, L.C. Rietveld, M.C.M. Van Loosdrecht, Influence of iron on nitrification in full-scale drinking water trickling filters, *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA*, 58 (2009) 247-256.
- [12] G.K. Druschel, D. Emerson, R. Sutka, P. Suchecki, G.W. Luther Iii, Low-oxygen and chemical kinetic constraints on the geochemical niche of neutrophilic iron(II) oxidizing microorganisms, *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 72 (2008) 3358-3370.
- [13] D. Emerson, E.J. Fleming, J.M. McBeth, Iron-oxidizing bacteria: An environmental and genomic perspective, in: Annual Review of Microbiology, 2010, pp. 561-583.
- [14] M. Harrison, Optimisation of rapid sand filter for iron removal from groundwater at Gilze, WNWB, in, TU Delft, 1999.
- [15] T. Hatva, Iron and manganese in groundwater in Finland: occurrence in glacial aquifers and removal by biofiltration, Helsinki, 1989.
- [16] F.A.M. Hettinga, C.G.E.M. van Beek, G.K. Reijnen, SWO 87.311, Onderzoek naar het toepassen van ondergrondse ontijzering bij Vrumona B.V. in Bunnik, in, KWR, 1987.
- [17] T. Hiemstra, W.H. van Riemsdijk, Adsorption and surface oxidation of Fe(II) on metal (hydr)oxides, *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 71 (2007) 5913-5933.
- [18] G. Ijpelaar, Biologische ontijzering: hoe realistisch is dit?, *H2O*, 36 (2003) 8-9.
- [19] R.E. James, F.G. Ferris, Evidence for microbial-mediated iron oxidation at a neutrophilic groundwater spring, *Chemical Geology*, 212 (2004) 301-311.
- [20] J. Kappelhof, M. Kennedy, Nieuwe ontwikkelingen in ontijzering, *H2O*, 32 (1999) 44.
- [21] I. Katsoyiannis, A. Zouboulis, H. Althoff, H. Bartel, As(III) removal from groundwaters using fixed-bed upflow bioreactors, *Chemosphere*, 47 (2002) 325-332.
- [22] I.A. Katsoyiannis, A.I. Zouboulis, Biological treatment of Mn(II) and Fe(II) containing groundwater: Kinetic considerations and product characterization, *Water Research*, 38 (2004) 1922-1932.
- [23] I.A. Katsoyiannis, A.I. Zouboulis, Application of biological processes for the removal of arsenic from groundwaters, *Water Research*, 38 (2004) 17-26.
- [24] E.A. Koreman, W. Heuvingh, Pellet-ontijzering: milieuvriendelijker en effectief, *H2O*, 30 (1997).

- [25] E.A. Koreman, W. Heuvingh, Pelletontijzering ondersteunt milieugerichte productontwikkeling, *H2O*, 31 (1998) 22-23.
- [26] C.F. Lerk, Enkele aspecten van de ontijzering van grondwater, in, TU Delft, Delft, 1965.
- [27] S. Mettler, M. Abdelmoula, E. Hoehn, R. Schoenenberger, P. Weidler, U. Von Gunten, Characterization of iron and manganese precipitates from an in situ ground water treatment plant, *Ground Water*, 39 (2001) 921-930.
- [28] S. Mettler, M. Wolthers, L. Charlet, U.v. Gunten, Sorption and catalytic oxidation of Fe(II) at the surface of calcite, *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 73 (2009) 1826-1840.
- [29] B. Morgan, O. Lahav, The effect of pH on the kinetics of spontaneous Fe(II) oxidation by O₂ in aqueous solution - basic principles and a simple heuristic description, *Chemosphere*, 68 (2007) 2080-2084.
- [30] P. Mouchet, From conventional to biological removal of iron and manganese in France, *Journal American Water Works Association*, 84 (1992) 158-167.
- [31] R. Munter, H. Ojaste, J. Sutt, Complexed iron removal from groundwater, *Journal of Environmental Engineering*, 131 (2005) 1014-1020.
- [32] G. Reijnen, SWE 85.005, Verwijdering van ijzer, mangaan en ammonium-ionen, in, KIWA, Nieuwegein, 1985.
- [33] G. Reijnen, Filtratie van grondwater, Tekst DW2 voor cursus "Toepassing van filtratie bij de drinkwaterbereiding", in, Stichting Postacademisch Onderwijs Gezondheidstechniek en Milieutechnologie, 1992.
- [34] G. Reijnen, Betere zuivering grondwater spaart kosten distributie, *H2O*, 33 (2000) 43-44.
- [35] G. Reijnen, W. Akkermans, Biologisch-adsorptieve ontijzering op pompstation Susteren, *H2O*, 41 (2008) 36-39.
- [36] G. Reijnen, J. Kappelhof, C. van Bennekom, Optimalisatie ontijzering levert aanzienlijke kosten besparing, *H2O*, 31 (1998) 30-31.
- [37] G.K. Reijnen, SWO 88.323, De oorzaak van het capaciteitsverlies van een ontijzeringsinstallatie, in, KWR, 1988.
- [38] G.K. Reijnen, J. Reilman, J.W.N.M. Kappelhof, W.B.P. van den Broek, L.L.M. Keltjens, A.J.M.E. Bekkers, J.A.M. van Paassen, A. de Lathouder, M. Sollman, C.A. van Bennekom, W. van der Meer, SWE 98.004, Filtratietechniek grondwater Technische aspecten, in: G.K. Reijnen (Ed.), KWR, Nieuwegein, 1998.
- [39] J.A. Rentz, C. Kraiyya, G.W. Luther Iii, D. Emerson, Control of ferrous iron oxidation within circumneutral microbial iron mats by cellular activity and autocatalysis, *Environmental Science and Technology*, 41 (2007) 6084-6089.
- [40] U. Rott, Anwendung und Grundlagen einen neuen Verfahrens zur Enteisung und Entmanganung von Grundwasser im Boden, *Vyredox methode, BRR*, 26 (1975) 357-362.
- [41] U. Rott, C. Meyer, M. Friedle, Residue-free removal of arsenic, iron, manganese and ammonia from groundwater, in: *Water Science and Technology: Water Supply*, 2002, pp. 17-24.
- [42] S.K. Sharma, Adsorptive iron removal from groundwater, in, TU Delft/WUR, 2001, pp. 204.
- [43] S.K. Sharma, M.R. Greetham, J.C. Schippers, Adsorption of iron(II) onto filter media, *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA*, 48 (1999) 84-91.
- [44] S.K. Sharma, J. Kappelhof, M. Groenendijk, J.C. Schippers, Comparison of physicochemical iron removal mechanisms in filters, *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA*, 50 (2001) 187-198.
- [45] S.K. Sharma, B.S. Mendis, M.R. Greetham, J.C. Schippers, Modelling adsorptive iron removal in filters, *Water Supply*, 18 (2000) 604-608.
- [46] S.K. Sharma, B. Petrusevski, B. Heijman, J.C. Schippers, Prediction of iron(II) breakthrough in adsorptive filters under anoxic conditions, *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA*, 52 (2003) 529-544.
- [47] S.K. Sharma, B. Petrusevski, A. Jonoski, G.F. Ijpelaar, J.C. Schippers, Decision support system for optimisation of iron removal from groundwater, in: *Water Science and Technology: Water Supply*, 2002, pp. 257-263.
- [48] S.K. Sharma, B. Petrusevski, J.C. Schippers, Biological iron removal from groundwater: A review, *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA*, 54 (2005) 239-247.
- [49] S.K. Sharma, C. Sebwato, B. Petrusevski, J.C. Schippers, Effect of groundwater quality on adsorptive iron removal, *Journal of Water Supply: Research and Technology - AQUA*, 51 (2002) 199-208.

- [50] E.G. Sogaard, R. Aruna, J. Abraham-Peskir, C. Bender Koch, Conditions for biological precipitation of iron by *Gallionella ferruginea* in a slightly polluted ground water, *Applied Geochemistry*, 16 (2001) 1129-1137.
- [51] E.G. Sogaard, R. Medenwaldt, J.V. Abraham-Peskir, Conditions and rates of biotic and abiotic iron precipitation in selected Danish freshwater plants and microscopic analysis of precipitate morphology, *Water Research*, 34 (2000) 2675-2682.
- [52] E.O. Sommerfield, *Iron and manganese removal handbook*, AWWA, 1999.
- [53] T. Stembal, M. Markić, N. Ribić, F. Brisić, L. Sipos, Removal of ammonia, iron and manganese from groundwaters of northern Croatia - Pilot plant studies, *Process Biochemistry*, 40 (2005) 327-335.
- [54] W. Stumm, J.J. Morgan, *Aquatic chemistry: chemical equilibria and rates in natural waters*, 3rd ed., Wiley-Interscience, New York, 1996.
- [55] P. Stuyfzand, Naar een effectievere diagnose, therapie en preventie van chemische put- en drainverstopping, *H2O*, 40 (2007) 44-47.
- [56] A.G. Tekerlekopoulou, I.A. Vasiliadou, D.V. Vayenas, Physico-chemical and biological iron removal from potable water, *Biochemical Engineering Journal*, 31 (2006) 74-83.
- [57] A.G. Tekerlekopoulou, D.V. Vayenas, Ammonia, iron and manganese removal from potable water using trickling filters, *Desalination*, 210 (2007) 225-235.
- [58] A.G. Tekerlekopoulou, D.V. Vayenas, Simultaneous biological removal of ammonia, iron and manganese from potable water using a trickling filter, *Biochemical Engineering Journal*, 39 (2008) 215-220.
- [59] K. Teunissen, BTO 2007.016, Iron removal at groundwater pumping station Harderbroek, in, KWR, 2007.
- [60] C.V. Tremblay, A. Beaubien, P. Charles, J.A. Nicell, Control of biological iron removal from drinking water using oxidation-reduction potential, *Water Science and Technology*, 38 (1998) 121-128.
- [61] C.G.E.M. van Beek, Mededeling 78: Ondergrondse ontijzering, een evaluatie van uitgevoerd onderzoek, in, KWR, Nieuwegein, 1983.
- [62] C.G.E.M. van Beek, T. Hiemstra, J. van de Vossen, B. Hofs, M.M. Nederlof, J. Van Paassen, G. Reijnen, Review of homogeneous (flocculent), heterogeneous (adsorptive, auto-catalytic, contact-) and biological oxidation of ferrous iron, submitted, (2010).
- [63] C.G.E.M. van Beek, H. Vaessen, Ontijzering van grondwater in het watervoerend pakket, *H2O*, 12 (1979) 15-19.
- [64] C. van Bennekom, D. de Ridder, BTO 2006.074, Biologische ontijzering: een literatuurscreening, in, KWR, 2006.
- [65] C.A. van Bennekom, SW 75.143, Menging in meerlaagsfilters, in, KWR, 1975.
- [66] G. Van den Berg, G. Cirkel, B. Drijver, Aanpak putverstopping door chemische neerslagen kan en moet effectiever, *H2O*, 40 (2007) 16-17.
- [67] J.K. Visser, SW 75.144, De invloed van een menglaag in een dubbellaagfilter op het filtratieproces, in, KWR, 1975.
- [68] A. Wolthoorn, Subsurface aeration of anaerobic groundwater; iron colloid formation and the nitrification process, in, Wageningen University, Wageningen, 2003.
- [69] A. Wolthoorn, E.J.M. Temminghoff, L. Weng, W.H. Van Riemsdijk, Colloid formation in groundwater: Effect of phosphate, manganese, silicate and dissolved organic matter on the dynamic heterogeneous oxidation of ferrous iron, *Applied Geochemistry*, 19 (2004) 611-622.

