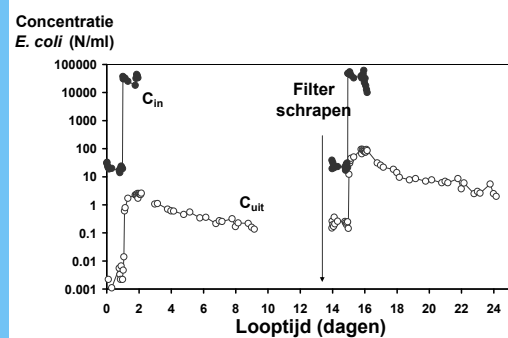
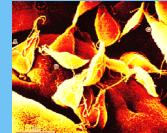
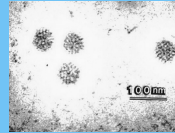
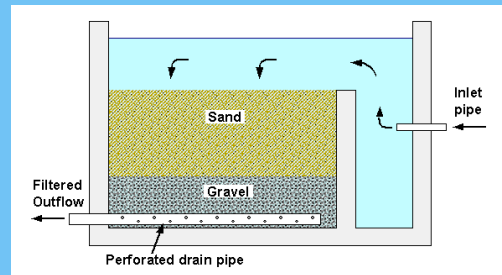




Procesmodel voor de eliminatiecapaciteit van langzame zandfiltratie voor virussen en bacteriën en de rol van predatie in de verwijdering van micro-organismen

RECTIFICATIE 2017

BTO 2013.020

Maart 2013

Procesmodel voor de eliminatiecapaciteit van langzame zandfiltratie voor virussen en bacteriën en de rol van predatie in de verwijdering van micro-organismen

RECTIFICATIE 2017

BTO 2013.020
Maart 2013

© 2013 KWR

Alle rechten voorbehouden.

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

Bestemd voor: Themagroep Hygiëne en Veiligheid
 Betreft: BTO 2013.020 RECTIFICATIE Procesmodel langzame zandfiltratie
 Van: Patrick Smeets
 Datum: 30 oktober 2017

Inleiding

In het BTO speerpuntonderzoek *Verwijdering Cryptosporidium langzame zandfiltratie WBG* (projectnummer 401317) in 2016 is geconstateerd dat een aantal gegevens van de langzame zandfilters incorrect in de rapportage was overgenomen. In het kader van zijn afstudeeronderzoek bij Waternet heeft Erik Vissink in samenwerking met Yolanda Dullemont de correcte waarden vastgesteld (zie bijgevoegde tabel). Daarnaast bleek een aantal waarden inconsequent te zijn toegepast in het rapport. Daarop is afgesproken deze rectificatie aan het rapport BTO 2013.020 toe te voegen, waarin de relevante waarden voor Weesperkarspel zijn aangepast. De verdere berekeningen, discussies en conclusies zijn niet aangepast aan deze waarden.

Rectificaties

Pagina 9: In Tabel 2.1 zijn kenmerken van de filters genoemd, deze komen niet overeen met Tabel 3.6. Mogelijk refereren zij aan andere proeven of publicaties daarover, zie tabel Vissink in deze memo. Met onderstaande rectificatie zijn de waarden consistent met Tabel 3.6.

Tabel 2.1. Overzicht van de proeffilters die in het onderzoek zijn gebruikt

Locatie	Filtratie snelheid [cm.h ⁻¹]	Korrel- grootte d ₅₀ -d ₁₀ ; U _c [mm]	Filterbed diepte [m]	Oppervlakte (m ²)	Flow (m ³ /h)	Bodem
Leiduin	30 (4,28)	0,29-0,19; 1,60	1,54 (1,50)	2,56	0,8	Nicolondoek 0,5 m ³ 16-32 mm
Weesperkarspel	45 (0,61)	0,50-0,38; 1,39	1,15	2,56	1,15	Nicolondoek 0,5 m ³ 16-32 mm
Scheveningen	30	0,53-0,38; 1,74	1,24	2,56	1,3	Nicolondoek 0,5 m ³ 16-32 mm
de Punt	20	0,50-0,30; 1,70	1,61	2,45	0,3	Spoeldoppen 0,58 m ³

Pagina 16: genoemde waarden in de tekst zijn incorrect. Zie daarvoor de gerectificeerde tabel in deze memo.

Pagina 17: De Tabellen 3.6 en 3.7 zijn hier gerectificeerd op basis van de Vissink tabel in deze memo. Voor Weesperkarspel is de sticking efficiency opnieuw berekend ten behoeve van het lopende project. Voor Leiduin valt dit buiten de scope van het project

Tabel 3.6. Conditie doseerproeven *Cryptosporidium*

Lokatie	Leiduin	Weesperkarspel
Datum	maart-augustus 2005	5 juli 2010
Referentie	Hijnen et al. (2007)	Dullemont e.a., 2012
Bron oöcystensuspensie	Hert (Moredun)	Rund (Waterborne)
Grootte microorganisme (µm)	5	5
Korrelgrootte zand (mm)	0,29 0,28	0,65 0,61
Diepte filterbed (m)	1,44 1,50	1,26 1,29
Filtratiesnelheid (cm/uur)	30	45
Temperatuur (°C)	8 – 18 (gemiddeld 13)	19,5 19,4
Leeftijd Schmutzdecke aan het begin van de proef (dagen)	1095 1120	196
Porositeit	0,39 0,41	0,37 0,33
Verwijdering (¹⁰ log)	5,3	4,2 4,3
Berekende single collector efficiency, η_0 (Tufenkji and Elimelech, 2004, inclusief temperatuurafhankelijke dynamische viscositeit van water)	0,016	0,0059
Sticking efficiency, α op basis van langzame zandfiltratiemodel, inclusief effect Schmutzdecke met $f_0=0,00021$ en $f_1=0,099$	0,06	0,35 0,22

Tabel 3.7. Sticking efficiëncys en berekende verwijdering van *Cryptosporidium* per lokatie voor enkele condities

Lokatie	Leiduin	Weesperkarspel	DUNEA	Groningen
Grootte microorganisme (µm)	5	5	5	5
Korrelgrootte zand (mm)	0,29 0,28	0,65 0,61	0,53	0,50
Diepte filterbed (m)	1,44 1,50	1,26	1,21	1,61
Filtratiesnelheid (cm/uur)	30	45	30	20
Temperatuur (°C)	8 – 18 (gem. 13)	19,5 19,4	13	16,8
Leeftijd Schmutzdecke aan het begin van de proef (dagen)	1095 1120	196	137	189
Porositeit	0,39 0,41	0,37 0,33	0,40	0,32
Sticking efficiency, α	0,06	0,06	0,28	0,027
Berekende verwijdering (¹⁰ log)	5,3	2,1	3,8	1,8

Pagina 31: α berekend van 0,43 0,22

Volgende pagina: Overzichtstabel met proefcondities van Vissink en Dullemont.

Proef	T	a	u	d ₁	z	ρ	bedreestand	DEC HS2	DEC F.col	DEC Crypta	Referentie
	[°C]	[dag]	[cm/h]	[mm]	[cm]	[-]	cm WK	[$\frac{m}{kg}$]	[$\frac{m}{kg}$]	[$\frac{m}{kg}$]	(m ³ t ⁻¹ h ⁻¹)
Meting proefinstallatie	7,5 (6,9-8,1)	56	45	0,53	110	0,39	36	0,57	2,5		Schijven, RIVMrapport 330204001/2008 tabel 4
Fit DEC two-site kinetic model	7,5	56	45	0,50	115	0,45		0,39	1,4		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Modelresultaten SSF-model											
Modelresultaten SSF-model	7 en 8	59	45	0,50	115	0,45					
Meting proefinstallatie	3,8-4,4	327	45	0,69	132	0,35	25	0,32 en 0,34	0,89 en 0,99		Dullefont, Doceerexp. micro-organisamen op lrf bij lage temp. te WPK
Fit DEC two-site kinetic model	4,0	327	45	0,65	132	0,33		0,082	0,94		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Modelresultaten SSF-model											
Modelresultaten SSF-model	4,0	329	45	0,65	132	0,33		0,44	0,88		
Meting proefinstallatie	18,6-19,7	217	45	0,69	126	0,33*	16	1,66	3,42		File: LZFOATA201.0RIVM
Fit DEC two-site kinetic model	19,5	217	45	0,65	126	0,37		1,5	3		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Modelresultaten SSF-model											
Modelresultaten SSF-model	19 en 20	221	45	0,65	126	0,37		0,79 en 0,83	2,8 en 2,9		
Meting proefinstallatie	15,7 (14,5-16,9)	553	30	0,29	154	0,39	39/40**	2,2,2 en 3,5			Hijnen, BTO 2002.133
Fit DEC two-site kinetic model	16,0	553	30	0,29	154	0,39		3,1			Schijven, Water Research 47,2592-2602
Modelresultaten SSF-model											
Modelresultaten SSF-model	16	554	30	0,30	150	0,39		3,4	6,2		Hijnen, BTO 2002.133
Meting proefinstallatie	11,7 (10,6-12,6)	12	30	0,29	154	0,39	28	1,7/1,8	2,1/2,3		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Fit DEC two-site kinetic model	11,7	12	30	0,29	154	0,39		1,4	2,0		
Modelresultaten SSF-model											
Modelresultaten SSF-model	12	14	30	0,30	150	0,39		1,6	2,3		
Meting proefinstallatie	10,6 (9,9-11,2)	81	30	0,29	144	0,39	61/63**	1,8/2,2	3,9/4,2		Hijnen, BTO 2002.133
Fit DEC two-site kinetic model	10,6	81	30	0,29	144	0,39		1,8	3,6		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Modelresultaten SSF-model											
Modelresultaten SSF-model	9,4 (8,4-10,2)	4	30	0,29	144	0,39	40/44**	1,7/1,9	2,0/2,8		Hijnen, BTO 2002.133
Fit DEC two-site kinetic model	9,4	4	30	0,29	144	0,39		1,6	2,4		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Modelresultaten SSF-model											
Modelresultaten SSF-model	~9,9	1105	30	0,27	150	0,39	34/37**		4,8		Dullefont, Recent Progress, Mulheim 2006
Meting proefinstallatie	9,9	1105	30	0,29	154	0,39			4,3		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Fit DEC two-site kinetic model											
Modelresultaten SSF-model	10	1000	30	0,30	150	0,39			4,4		
Meting proefinstallatie	13	137	30	0,53	124	0,40		3,1	4,4		Dullefont, Recent Progress, Mulheim 2006
Fit DEC two-site kinetic model	13	137	30	0,53	124	0,40	76/75**	3,4	4,9		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Modelresultaten SSF-model									4,5		
Modelresultaten SSF-model	14	4	30	0,53	124	0,40	5		3,1		Dullefont, Recent Progress, Mulheim 2006
Meting proefinstallatie	14	4	30	0,53	124	0,40		2,8	3,1		Water Research 47,2592-2602
Fit DEC two-site kinetic model											
Modelresultaten SSF-model	16	53	30	0,53	124	0,40	7/9**		2,9		
Meting proefinstallatie	16	53	30	0,53	124	0,40		3,9	5,6		Dullefont, Recent Progress, Mulheim 2006
Fit DEC two-site kinetic model	16	53	30	0,53	124	0,40		3,3	5,1		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Modelresultaten SSF-model											
Modelresultaten SSF-model	16,8	189	20	0,50	161	0,32	?	1,6	2,1		mail Hijnen d.d. 19-02-2014
Meting proefinstallatie	16,8	189	20	0,50	161	0,32		1,5	2,5		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Fit DEC two-site kinetic model											
Modelresultaten SSF-model	16,8	189	20	0,50	161	0,32					
Meting proefinstallatie	4,5	312	20	0,50	161	0,32	?				mail Hijnen d.d. 19-02-2014
Fit DEC two-site kinetic model	4,5	312	20	0,50	161	0,32		0,4	1,0		Schijven, Water Research 47,2592-2602
Modelresultaten SSF-model								0,3	1,1		
Modelresultaten SSF-model	19,4	196	45	0,61	129	0,33	11/14**				
Meting proefinstallatie										4,3	Hijnen, BTO rapport 2013.020
Fit DEC two-site kinetic model											
Modelresultaten SSF-model											
Modelresultaten SSF-model	8,2-18,8	1120	30	0,28	150	0,41	38-47		4,7*** en 5,3		Hijnen, Water Research 41(2007), 2151-2162 + Dullefont Mulheim(met 5,3)
Meting proefinstallatie											
Fit DEC two-site kinetic model											
Modelresultaten SSF-model											
Modelresultaten SSF-model											

* uit RIVM profielinstallatiedoeringen.pdf (voorplaatje man met kind op strand) W3 foutief op 40 cm/juur in deze presentatie

** verschil tussen digitaal en afgelezen ter plekke

*** berekend via massabalans

Colofon

Titel

Procesmodel voor de eliminatiecapaciteit van langzame zandfiltratie voor virussen en bacteriën en de rol van predatie in de verwijdering van micro-organismen

Opdrachtnummer

B111691

Rapportnummer

BTO 2013.020

Onderzoeksprogramma

Microbiologie

Projectmanager

Niels Dammers, Edwin Kardinaal

Opdrachtgever

BTO

Kwaliteitsborger(s)

Gertjan Medema^a

Auteurs

Wim Hijnen, Jack Schijven^a, Harold van den Berg^b, Anke Brouwer-Hanzens^a, Peter Wind^c, Yolanda Dullemont^c, Gerhard Wubbels^d en Wim Oorthuizen^e

^a KWR Watercycle Research Institute

^b RIVM

^c Waternet

^d Waterlaboratorium Noord

^e Dunea

Verzonden aan

Dit rapport is verspreid onder BTO-participanten en is openbaar

Voorwoord

In het BTO onderzoeksprogramma van de PBC Microbiologie is van 2008-2012 is een project uitgevoerd naar de eliminatiecapaciteit van langzame zandfilters voor pathogene micro-organismen. Doel was om hiervoor een procesmodel te ontwikkelen en de rol van predatie in de microbiologische veiligheid te onderzoeken. Een groot deel van de gegevens die zijn gebruikt voor het procesmodel waren afkomstig van experimenten uitgevoerd bij de locaties Leiduin en Weesperkarspel van het Waterbedrijf Waternet. Voor Dunea is één doseerexperiment uitgevoerd op de locatie Leiduin. In de periode van het onderhavige onderzoek zijn aanvullende doseerproeven uitgevoerd bij de locatie Weesperkarspel van Waternet en de Punt van Waterleidingbedrijf Groningen.

De doseerexperimenten zijn uitgevoerd door RIVM bij Waternet en door KWR bij Groningen en in hoofdstuk 2 staan de procescondities van de verschillende proeffilters samengevat. Het procesmodel werd ontwikkeld door RIVM en is in dit rapport beschreven door Jack Schijven in hoofdstuk 3 en bijlage 2. Basis voor deze delen van het rapport vormden twee artikelen, één voor het Nederlandse tijdschrift H2O en een voor een Engelstalig peer-reviewed wetenschappelijk tijdschrift (Water Research). Hoofdstuk 3 beschrijft het procesmodel en bespreekt een aantal onzekerheden. De rol van predatie bij de verwijdering van micro-organismen en *Cryptosporidium* in het bijzonder staat beschreven in hoofdstuk 4 geschreven door Wim Hijnen en Yolanda Dullemont. In hoofdstuk 5 worden de verschillende resultaten van het totale onderzoek geëvalueerd met als doel vast te stellen wat de opbrengsten zijn van het onderzoek en of meer onderzoek nodig is over de effectiviteit van langzame zandfiltratie voor het verwijderen van micro-organismen.

Samenvatting

In het BTO onderzoeksprogramma is in 2008 een vervolgproject gestart naar het bepalen van de eliminatiecapaciteit van langzame zandfiltratie bij de Nederlandse Waterleidingbedrijven. Aanleiding van dit project vormde de constatering dat bij de doseerproeven met pilot plant filters de verwijdering van *E. coli* en MS2 bacteriofagen door langzame zandfilters onder verschillende condities variabel was. Er was behoefte aan meer kennis over de effecten van temperatuur, filtratiesnelheid, korreldiameter, Schmutzdecke en predatie op de verwijdering. Daarnaast werd bij de wettelijk verplichte Analyse Microbiologische Veiligheid van Drinkwater (AMVD) bij de bedrijven ook vastgesteld dat met de indicatorbacteriën als procesindicatoren de verwijdering van pathogenen op praktijkschaal niet bepaald kon worden, omdat de aanvoer concentraties te laag waren en SSRC als procesindicator ongeschikt is gebleken. In de aanloop van het project is door RIVM een procesmodel ontwikkeld waarmee de verwijdering van bacteriën, virussen en protozoën onder verschillende procescondities voorspeld kon worden. Een belangrijk doel van het huidige project was het verifiëren, valideren en verbeteren van dit procesmodel. Hiertoe werden op pilot plantschaal een aantal aanvullende doseerproeven gedaan. In een eerder experiment met oöcysten van *Cryptosporidium* werden sterke aanwijzingen gevonden dat predatie in het filterbed van deze persistente ziekteverwekker optreedt. Op laboratoriumschaal werd ook aangetoond dat oöcysten door Rotifera worden opgenomen. Aangezien deze organismen in grote aantallen voorkomen in zowel het filterbed als het filtraat rees de vraag of doorslag van opgenomen oöcysten een aanvullend veiligheidsrisico vormt. In het kader van de verificatie en doorontwikkelen van het procesmodel werd een doseerproef met oöcysten uitgevoerd waarbij tevens het doel was om met intensief bemonsteren van de zooplankton dit veiligheidsrisico kon worden onderzocht.

De aanvullende doseerproeven met *E. coli* en MS2 waren gericht op de procescondities bij Weesperkarspel en de Punt met ander water, een grotere korreldiameter en een lagere snelheid (de Punt) dan bij Leiduin, de locatie waar de meeste proeven waren uitgevoerd. Met alle resultaten van de doseerproeven is het procesmodel verder ontwikkeld. Basis van het procesmodel vormde het colloid filtratiemodel dat ook wordt gebruikt bij het grondwatermodel voor virusverwijdering. Twee belangrijke procesvariabelen die de mate van verwijdering beïnvloeden zijn de Schmutzdecke en de watertemperatuur. De invloed van de Schmutzdecke vormt geen onderdeel van het colloid filtratiemodel en de invloed van de temperatuur op de verwijdering kon niet met het colloid filtratiemodel worden verklaard. Daarom zijn deze twee variabelen aan het model toegevoegd in de vorm van een logistische groeifunctie. In het daarmee ontstane rekenmodel zijn de drie belangrijke procesvariabelen, de hechtingsefficiëntie of α , een schaalfactor f_0 en een snelheidscoëfficiënt f_1 . Met een statistische techniek, likelihood ratio test, zijn voor de verzamelde gegevens van *E. coli* en MS2 verwijdering de waarden van deze parameter geschat. Hieruit bleek dat de f_0 en f_1 voor alle filters hetzelfde waren (op basis van de gegevens konden geen verschillen worden aangetoond) en de α -waarde afhangt van het micro-organisme en het filterbed. Dit laatste betekent dat het model toepasbaar voor andere situaties onder de voorwaarde dat de specifieke α -waarde voor het micro-organisme en het betreffende filterbed bekend zijn.

Hoofdstuk 3 laat zien dat het ontwikkelde procesmodel met de daarbij berekende waarden voor α , f_0 en f_1 de verwijdering met een geringe foutmarge voorspelt. Tevens laat het hoofdstuk zien dat met het model locatiespecifiek kan worden gerekend en ook toegepast kan worden om met tijdreeksen van procesvariabelen de variatie in verwijdering over de tijd te kunnen voorspellen. Een aanzet voor een rekentool is beschreven en deze kan worden geïmplementeerd in de systematiek van de AMVD.

De uitbreiding van het model naar de verwijdering van *Cryptosporidium* is mogelijk. Hierover bestaat echter nog onzekerheid die ondermeer wordt veroorzaakt door het ontbreken van een locatiespecifieke α -waarde voor deze ziekteverwekker en het filterbed in de Punt. De discussie over de α -waarde van de oöcysten van verschillende herkomst toont dat voor een goede toepassing van het colloid filtratie model aanvullende kennis nodig is. Deze kan worden verzameld door met laboratorium kolomproeven de α -waarde voor de specifieke combinatie van oöcysten, filtermateriaal en watertype bij de Punt, in vergelijking tot Leiduin en Weesperkarspel, te bepalen.

In het project is ook kennis ontwikkeld op het gebied van predatie als verwijderingsmechanisme en als mogelijke risicofactor bij doorslag van persistente ziekteverwekkers. Aan predatie als verwijderingsmechanisme is geen direct onderzoek verricht. De hoge invloed van de temperatuur en enkele berekeningen op basis van literatuurgegevens maken het aannemelijk dat predatie als onderdeel van de totale biologie in het filterbed een belangrijke bijdrage levert aan de verwijdering naast hechting. Maar er zijn meer biologische processen die bij een rol spelen bij de eliminatie van micro-organismen (inactivatie in de totale microbiële matrix, enzymactiviteit). Aanvullend kwantitatief onderzoek hiernaar kan een bijdrage leveren aan het optimaliseren van het procesmodel. Predatie als risicofactor voor doorslag van oöcysten van *Cryptosporidium* wordt op grond van de gepresenteerde resultaten van dit onderzoek niet als een risicofactor beschouwd.

Algemeen kan worden geconcludeerd dat het onderzoek een procesmodel heeft opgeleverd waarmee de verwijdering van bacteriën en virussen door de Nederlandse langzame zandfilters goed kan worden voorspeld onder verschillende praktijkcondities m.b.t. zand- en waterkwaliteit en procescondities als filtratiesnelheid, korrelgrootte, leeftijd Schmutzdecke, temperatuur en bedweerstand zoals die bij de verschillende bedrijven momenteel worden toegepast. Veranderingen van waterkwaliteit die invloed zijn op de bedweerstand en daarmee mogelijk ook op de verwijdering, zijn niet in het huidige procesmodel opgenomen.

Wanneer de toekomstige procescondities bij de verschillende bedrijven niet buiten de bandbreedte van de procescondities vallen die zijn toegepast in het huidige onderzoek, dan voldoet het model goed om met tijdreeksen van de watertemperatuur de verwijdering van bacteriën en virussen over een jaar te voorspellen. Het procesmodel aanpassen door naast de adsorptie, ook de bijdrage van de biologische activiteit als een mechanisme te voorspellen is op grond van bovenstaande conclusie niet noodzakelijk. Tot slot heeft het onderzoek laten zien dat predatie van oöcysten van *Cryptosporidium* in het filterbed niet kan worden gezien als een extra risicofactor voor de microbiologische veiligheid.

De volgende aspecten zijn met de resultaten van het huidige onderzoek nog niet duidelijk en worden aanbevolen als aanvullend onderzoek:

- toepassing van het model op de verwijdering van de protozoën levert voor *Cryptosporidium* (wordt gezien als procesindicator voor *Giardia*) nog een onzekerheid op die gebaseerd is op het ontbreken van de hechtingsefficiëntie parameter voor het filterbed van de Punt. Hierover kan meer duidelijkheid worden verkregen door het bepalen van de sticking efficiëntie α van *Cryptosporidium* voor het zand van de Punt in vergelijking tot het zand van Weesperkarspel en Leiduin in een laboratorium kolomopstelling;
- implementatie van de ontwikkelde kennis in de AMVD van de betrokken bedrijven. Op welke wijze worden de verzamelde gegevens betrokken bij toekomstige AMVD projecten? Dit onderwerp vormt onderdeel van het huidige BTO onderzoeksprogramma waarin de AMVD systematiek verder wordt geoptimaliseerd en geharmoniseerd.

Inhoud

Voorwoord	1
Samenvatting	3
1 Inleiding	7
2 Proeffilters en doseerproeven	9
3 Een rekenkundig model	11
3.1 Samenvatting	11
3.2 Inleiding	11
3.3 Het rekenmodel	12
3.4 Toepassing	13
3.5 Verwijdering <i>Cryptosporidium</i> door langzame zandfiltratie	16
3.6 Effect van pH	17
3.7 conclusies en aanbevelingen	17
4 Rol van predatie	19
4.1 Rol bij de eliminatie van <i>E. coli</i> en bacteriofagen	19
4.2 Rol bij de transport en doorbraak	20
4.2.1 Proeffilter	20
4.2.2 Waterkwaliteit en verwijdering van bacteriën	20
4.2.3 Doseerproef met <i>Cryptosporidium</i>	21
4.2.4 Zoöplankton in het water en het zand	22
4.2.5 Predatie en vertraagd transport	23
4.3 Vormt predatie in langzame zandfiltratie een risico voor doorslag van <i>Cryptosporidium</i> ?	25
4.3.1 Samenvatting	25
4.3.2 Microbiologische veiligheid drinkwater	25
4.3.3 Verwijderingscapaciteit van langzame zandfiltratie	25
4.3.4 Predatie experiment op labschaal	25
4.3.5 Doseerexperiment op proefinstallatieschaal	26
4.3.6 Zoöplankton in het water en de Schmutzdecke	26
4.3.7 Studie naar vectorgedrag in een proeffilter	27
4.3.8 Toegevoegd doorslagrisico van opgenomen oöcysten	28
5 Discussie, conclusies en aanbevelingen	29
5.1 Projectdefinitie: doelstelling, resultaten en hypothesen	29
5.2 Procesmodel om verwijdering van bacteriën en virussen te voorspellen	29
5.3 Modelaanname en variabiliteit van de belangrijkste procesconstanten	30
5.4 Verwijdering van <i>Cryptosporidium</i> en <i>Giardia</i>	31
5.5 Meer onderzoek nodig?	31
5.6 Algemene conclusie en restvragen van de bedrijven	32

6	Literatuur	33
	Bijlage 1: H2O verslag workshop langzame zandfiltratie	35
	Bijlage 2: Development of the process model, Water Research	39
	Bijlage 3: aanvullende overwegingen bij het procesmodel	57
	Bijlage 4: gegevens over predatie snelheden	63

1 Inleiding

In het BTO onderzoeksprogramma is uitvoerig aandacht besteed aan de effectiviteit van langzame zandfiltratie (LZF) voor de verwijdering van micro-organismen. De bevindingen van deze onderzoeken zijn gepubliceerd (Dullemont e.a., 2004; 2006; Visser e.a., 2004) en gepresenteerd op een workshop in 2006 (Hijnen e.a., 2007; Bijlage 1). Resultaat van de workshop was dat door de betrokken bedrijven de invloed van temperatuur, filtratiesnelheid, Schmutzdecke en predatie op de verwijdering van micro-organismen als onderwerpen voor nader onderzoek werden aangemerkt. Uit doseerproeven met *E. coli* en MS2 bacteriofagen op pilot plantschaal bleek dat de verwijdering van deze micro-organismen door verschillende filters een duidelijke variatie vertoonde. Aanvullend bleek dat door verregaande voorzuivering van het influent van de langzame zandfilters in de praktijk de concentratie indicatorbacteriën was gedaald en in het effluent deze micro-organismen niet meer aantoonbaar waren. Daarmee verviel de mogelijkheid de effectiviteit van het proces 'in situ' en locatiespecifiek te bepalen.

Op grond van de beschikbare gegevens van de doseerproeven met *E. coli* en MS2 bacteriofagen heeft RIVM een eerste procesmodel ontwikkeld (Schijven e.a., 2008b) waarmee de invloed van filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering kon worden voorspeld, ook voor de verwijdering op de locaties Weesperkarspel (Waternet) en de Punt (Groningen). Het was de vraag in hoeverre de met het model voorspelde waarden overeenkwamen met de werkelijkheid. Er was behoefte aan validatie, verificatie en optimalisatie van het procesmodel.

Door de grote invloed die de temperatuur op de verwijdering had, was het vermoeden dat predatie in het filterbed, naast hechting, een belangrijk verwijderingsmechanisme is waar nog weinig kwantitatieve kennis over is. Daarnaast kunnen hogere organismen een mogelijke vector zijn voor transport van persistente indexpathogenen zoals *Cryptosporidium* door het filterbed. Op basis van deze onderzoeksbehoeften is een projectdefinitie opgesteld aan de hand waarvan dit project is uitgevoerd. In deze projectdefinitie staat de volgende doelstelling geformuleerd:

Doelstellingen

Het valideren en verbeteren van het RIVM procesmodel om de effectiviteit van langzame zandfilters op praktijkschaal te kunnen berekenen en te bewaken door het bepalen van de invloed van temperatuur en filtratiesnelheid (eventueel aangevuld met pH) op de effectiviteit van langzame zandfiltratie op twee praktijklocaties (Weesperkarspel, de Punt; eventueel Dunea) om enterovirussen, *Campylobacter* bacteriën en *Cryptosporidium*/*Giardia* te elimineren. Een kwantitatief beeld van het optreden van predatie door zooplankton en de invloed hiervan op de afname in het filterbed en de mogelijke doorslag naar het filtraat.

In de periode 2008 – 2012 zijn aanvullende doseerproeven met pilot plant filters op de locaties Weesperkarspel (Waternet) en de Punt (Groningen) uitgevoerd om deze doelstellingen te realiseren. In dit rapport zijn in hoofdstuk 2 kort de procescondities van de proefinstallatiefilters samengevat die bij de verschillende locatiespecifieke pilot plant filters zijn toegepast. Hoofdstuk 3 beschrijft het ontwikkelde procesmodel en de model validatie, de toepassing van het model op de verwijdering van *Cryptosporidium*, in het kort het effect van de pH (geen onderzoek uitgevoerd) en tot slot een aantal kritische punten en ontbrekende kennis. In hoofdstuk 4 wordt op basis van wat literatuur het predatie effect op de verwijdering beschreven (geen experimentele gegevens verzameld) en staat een doseerproef met *Cryptosporidium* beschreven waarbij de verwijdering werd bepaald en gekeken is naar de mogelijke doorslag van oöcysten opgenomen door zooplankton. Hoofdstuk 5 is een discussie en eindevaluatie van het project om te komen tot de vraag of en in welke mate er nog behoefte is aan aanvullend collectief onderzoek.

2 Proeffilters en doseerproeven

In tabel 2.1 wordt een overzicht gegeven van de proeffilters waarmee de verschillende doseerexperimenten zijn uitgevoerd. De werkwijze van de verschillende doseerproeven is uitgebreid eerder beschreven (Schijven e.a., 2008a; Hijnen e.a., 2004; 2007).

Tabel 2.1. Overzicht van de proeffilters die in het onderzoek zijn gebruikt

<i>Locatie</i>	<i>Filtratie snelheid [cm.h⁻¹]</i>	<i>Korrel- grootte d₅₀-d₁₀; U_c [mm]</i>	<i>Filterbed diepte [m]</i>	<i>Opperlakte (m²)</i>	<i>Flow (m³/h)</i>	<i>Bodem</i>
Leiduin	30 (4 ^{0,28})	0,29-0,19; 1,60	1,54 1,50	2,56	0,8	Nicolondoek 0,5 m ³ 16-32 mm
Weesperkarspel	45 0,61	0,50-0,38; 1,39 0,65-0,39; 1,73	1,15 1,32 1,29	2,56	1,15	Nicolondoek 0,5 m ³ 16-32 mm
Scheveningen	30	0,53-0,38; 1,74	1,24	2,56	1,3	Nicolondoek 0,5 m ³ 16-32 mm
de Punt	20	0,50-0,30; 1,70	1,61	2,45	0,3	Spoeldoppen 0,58 m ³

3 Een rekenkundig model

Titel H2O publicatie: Een rekenkundig model voor de verwijdering van menspathogene virussen en bacteriën door langzame zandfiltratie onder wisselende bedrijfscondities

Door Jack Schijven, Yolanda Dullemont, Wim Oorthuizen, Gerhard Wubbels

3.1 Samenvatting

Op grond van tien jaar proefinstallatieonderzoek naar de effectiviteit van de verwijdering van virussen en bacteriën door langzame zandfiltratie werd door het RIVM in samenwerking met KWR, Waternet, DUNEA en Waterbedrijf Groningen een rekenmodel ontwikkeld dat de verwijdering kan voorspellen onder verschillende bedrijfscondities: temperatuur, leeftijd Schmutzdecke, korrelgrootte en filtratiesnelheid. Dit model kan worden gebruikt als onderdeel van de bij wet verplichte kwantitatieve microbiologische risicoschattingen voor drinkwater.

3.2 Inleiding

Langzame zandfiltratie (LZF) is een effectieve zuiveringstap in de drinkwaterproductie voor de verwijdering van (ziekteverwekkende) micro-organismen. De effectiviteit van LZF hangt ondermeer af van de eigenschappen van het te zuiveren water, de temperatuur, en van de Schmutzdecke. De Schmutzdecke is een biologisch actieve slijm laag, die zich geleidelijk ontwikkelt op een zandfilter. De effectiviteit van LZF hangt af van de bedrijfscondities. Als de filterbedweerstand te hoog oploopt, wordt de Schmutzdecke afgeschraapt, waardoor het langzame zandfilter tijdelijk minder effectief is. De watertemperatuur varieert met de seizoenen tussen ongeveer 5 °C en 20 °C.

In Nederland wordt op veertien locaties oppervlaktewater gebruikt voor drinkwaterproductie.

Bij zes daarvan wordt LZF binnenshuis toegepast als laatste zuiveringstap. Omdat LZF de laatste zuiveringstap is, zijn de concentraties van indicatororganismen meestal onder de detectiegrens in zowel het influent als het effluent, zodat schattingen van de verwijdering van micro-organismen door LZF onzeker zijn.

Daarnaast worden op de verschillende productielocaties verschillende soorten zand en verschillende filtratiesnelheden toegepast. Voor het vaststellen van de verwijdering van micro-organismen door LZF onder al deze verschillende en veranderlijke bedrijfscondities zijn uitgebreide meetprogramma's nodig. Echter, omdat concentraties veelal onder detectiegrenzen liggen, wordt het moeilijk de effectiviteit van LZF te bepalen en maakt het dergelijke meetprogramma's tijdrovend en kostbaar. Een rekenmodel dat de verwijdering van micro-organismen door LZF als functie van de bedrijfscondities kan voorspellen biedt uitkomst.

Hiertoe werd een onderzoek gestart met als doel het ontwikkelen van een rekenmodel om de verwijdering van menspathogene virussen en bacteriën door LZF onder verschillende bedrijfscondities te kunnen voorspellen. Dit model zou tevens gebruikt kunnen worden als onderdeel van de in Nederland wettelijk voorgeschreven kwantitatieve microbiologische risicoschatting (QMRA) voor drinkwaterconsumptie.

Van 2002 tot 2012 werden dertien experimenten uitgevoerd in proefinstallaties voor LZF voor Weesperkarspel, Leiduin, Dunea (Scheveningen) en Groningen. De proefinstallaties werden parallel aan de praktijkfilters bedreven met hetzelfde zand, water, temperatuur en filterbeddiepte. De watertemperatuur varieerde tussen 4 en 20 °C, de filtratiesnelheid was 20, 30 of 45 cm/uur, de korrelgroottes van het zand bedroegen 0.29, 0.53 of 0.65 mm, de leeftijd van de Schmutzdecke lag tussen 4 en 1105 dagen en de filterbeddiepte lag tussen 1,15 en 1,61 m. Bacteriofaag MS2 en bacterie *E. coli* WR1 (ECWR1) werden gebruikt als modelorganismen voor de verwijdering van menspathogene virussen en bacteriën.

Details over de uitvoering en resultaten van de experimenten staan beschreven in Schijven et al (2008a) en details over de ontwikkeling van het rekenmodel in Schijven et al. (2013).

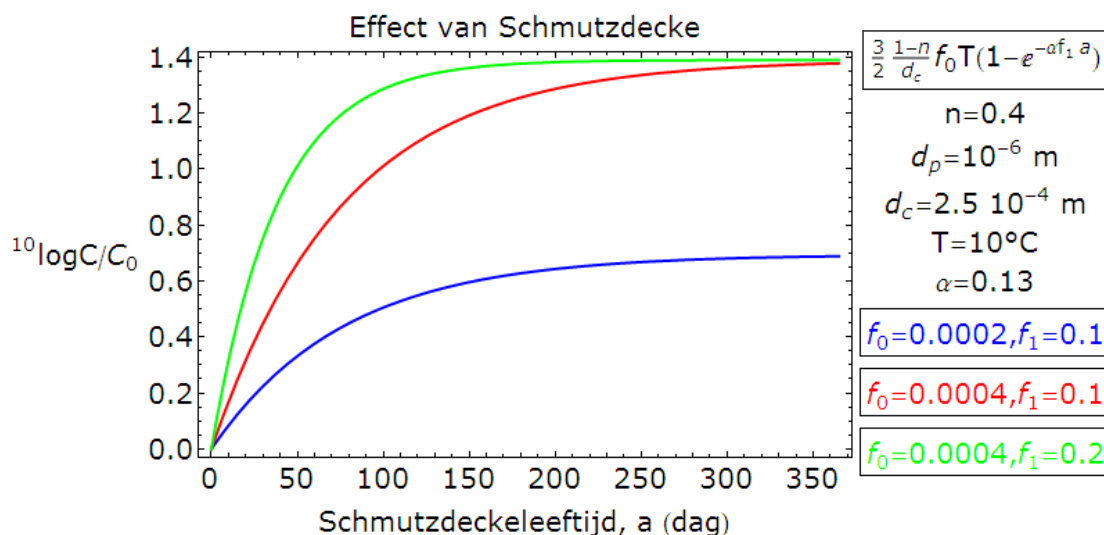
3.3 Het rekenmodel

Verwijdering van MS2 lag tussen 0,089 en 3,3 $10\log$ en die van *E. coli* WR1 tussen 1 en 4,5 $10\log$ ten gevolge van de werking van de Schmutzdecke en door hechting aan het zand. De werking van de Schmutzdecke nam toe met de leeftijd, hogere zogenaamde sticking efficiëntie voor hechting, hogere temperatuur en fijner zand. De werking van de Schmutzdecke werd gemodelleerd als een logistische groeifunctie met schaalfactor f_0 and snelheidscoëfficiënt f_1 . Vergelijking (1) toont het rekenmodel voor LZF:

$$\ln \frac{C}{C_0} = -\frac{3}{2} \frac{1-n}{d_c} \left(\alpha \eta_{0,d_p,d_c,u,T,n} z + f_0 T (1 - e^{-\alpha f_1 a}) \right) \quad (1)$$

hierin is a de sticking efficiëntie, d_c de korreldiameter van het zand (collector), [m], d_p de diameter van het microorganisme, [m], u is de filtratiesnelheid [m.dag⁻¹], T is de watertemperatuur, [°C], z de filterbeddiepte, [m], n de porositeit en $\eta_{0,d_p,d_c,u,T,n}$ de botsingsefficiëntie. De indexen duiden dat de botsingsefficiëntie een functie is van d_p , d_c , u , T , n . f_0 is een schaalfactor, [m °C⁻¹], f_1 een snelheidscoëfficiënt, [dag⁻¹], and a is de Schmutzdeckeleeftijd, [dag]. Voor de berekening van $\eta_{0,d_p,d_c,u,T,n}$ werden de colloïdfiltratietheorievergelijkingen van Tufenkji en Elmalech (2004) gebruikt met de toevoeging dat de dynamische viscositeit van het water temperatuurafhankelijk is.

Figuur 3.1 demonstreert de bijdrage van de Schmutzdecke aan de verwijdering voor een aantal parameterwaarden. Schaalfactor f_0 bepaalt het maximum effect van $\frac{3}{2} \frac{1-n}{d_c} f_0 T$, terwijl snelheidscoëfficiënt f_1 de snelheid bepaalt waarmee dit maximum wordt bereikt. Die snelheid hangt ook af van de sticking efficiëntie. Bij lage temperaturen draagt de Schmutzdecke weinig bij aan de verwijdering. Als de Schmutzdecke wordt afgeschraapt is er alleen hechting ($a=0$).



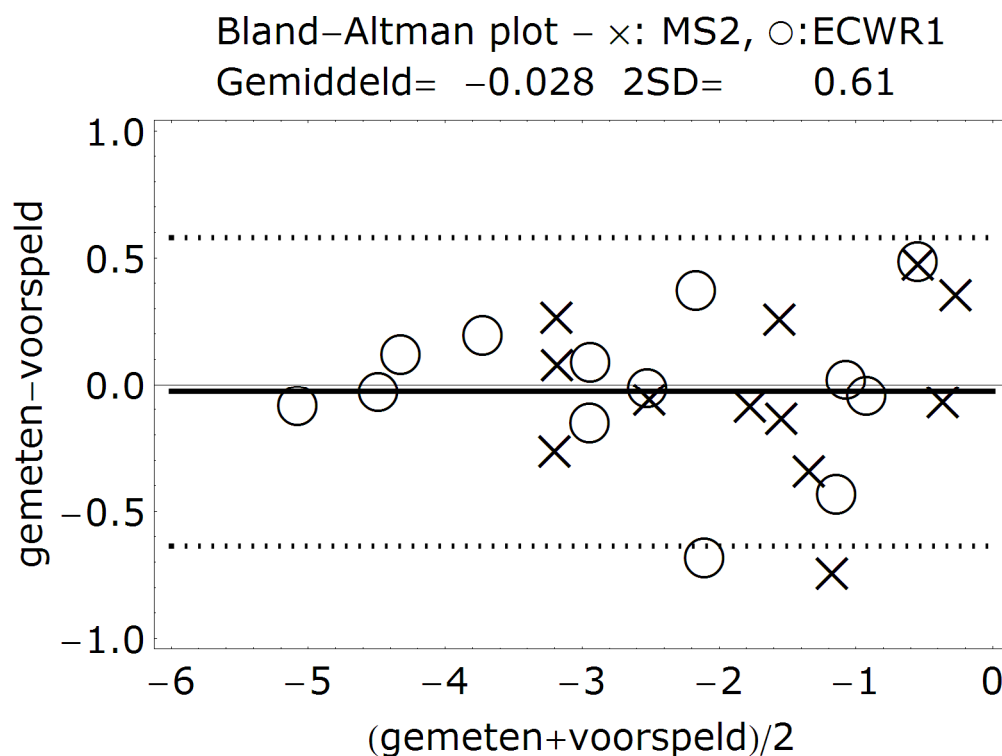
Figuur 3.1 Werking van de Schmutzdecke als functie van de Schmutzdeckeleeftijd, schaalfactor f_0 en snelheidscoëfficiënt f_1 .

Tabel 3.1 Geschatte waarden van α , f_0 en f_1 voor MS2 en ECWR1.

		Gemiddelde	Standaardafwijking		
f_0		2.1×10^{-4}	4.3×10^{-6}		
f_1		9.9×10^{-2}	6.0×10^{-3}		
	Filter	MS2	ECWR1		
		Gemiddelde	Standaardafwijking	Gemiddelde	Standaardafwijking
α	Weesperkarspel+Leiduin	9.2×10^{-3}	2.2×10^{-4}	1.5×10^{-1}	6.7×10^{-3}
	DUNEA	4.4×10^{-2}	8.8×10^{-3}	7.1×10^{-1}	1.1×10^{-2}
	Groningen	5.6×10^{-3}	7.8×10^{-4}	5.2×10^{-2}	2.6×10^{-3}

Standaardafwijking volgens een kruisvalidatie met standaardfout van 0.3 log verwijdering

Tabel 3.1 toont de geschatte waarden van sticking efficiëntie α , f_0 en f_1 op basis van de experimentele gegevens. Sticking efficiëntie α is specifiek voor elke micro-organismen-filter combinatie, maar per micro-organisme hetzelfde voor de filters van Weesperkarspel en Leiduin. Zowel f_0 als f_1 bleken onafhankelijk te zijn voor zowel MS2 en ECWR1, als de zandfilters. Figuur 3.2 laat zien dat er een zeer goede overeenstemming is tussen waargenomen en met de rekenformule voorspelde verwijdering over een bereik van 5 logeenheden. De verwijdering wordt met een nauwkeurigheid van ± 0.6 log voorspeld. Voor verwijdering van meer dan 3 log is de voorspelling nauwkeuriger.



Figuur 3.2. Verschil tussen gemeten en voorspelde verwijdering van MS2 en ECWR1 als functie van het gemiddelde van gemeten en voorspelde verwijdering.

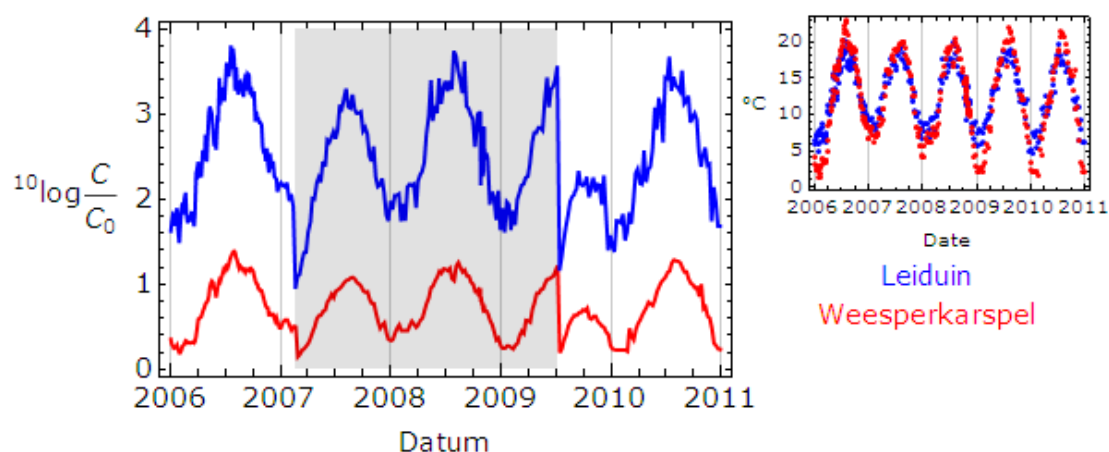
3.4 Toepassing

Het rekenmodel kan worden gebruikt om de variabiliteit in verwijdering door LZF te berekenen. Om deze toepassing te demonstreren werden verwijdering van MS2 en ECWR1 berekend voor productielocaties Weesperkarspel and Leiduin op basis van 358 watertemperatuurgegevens van 2006 tot 2011. Tevens werd het scenario toegepast, waarbij de berekeningen starten met een één jaar oude Schmutzdecke, die vervolgens begin 2007 (lage temperatuur) werd afgeschraapt en nog eens medio 2009 (hoge temperatuur). De zandfilters van deze twee productielocaties verschillen in korrelgrootte, maar de parameterwaarden van α , f_0 en f_1 zijn hetzelfde (Tabel 3.1). De resultaten van de berekeningen worden

getoond voor MS2 in Figuur 3.3. De grote periodieke variabiliteit in de verwijdering van MS2 kan worden toegekend aan de variabiliteit van de watertemperatuur. Het verschil in verwijdering van MS2 tussen de twee locaties kan worden toegekend aan het verschil in korrelgrootte. Afschrapen van de Schmutzdecke geeft de grootste afname in verwijdering wanneer dit gebeurt in een periode met hoge temperatuur. De eerste keer na afschrapen van de Schmutzdecke berekend het model dat de maximale verwijdering in 2007 lager is dan in 2006 en 2008, ondanks dat de maximale temperatuur voor alle jaren hetzelfde is. Dezelfde variabiliteit kan worden gedemonstreerd voor de verwijdering van ECWR1, maar dan met hogere verwijdering.

Deze voorspellingen werden uitgevoerd met een filtratiesnelheid van 45 cm/uur voor Weesperkarspel en 30 cm/uur voor Leiduin. Verlaging van de filtratiesnelheid naar 30 cm/uur voor Weesperkarspel en 22 cm/uur voor Leiduin leidt gemiddeld tot een toename in de verwijdering van MS2 met 0.06 $^{10}\log$ te Weesperkarspel en 0.26 $^{10}\log$ te Leiduin. Voor ECWR1 neemt de verwijdering dan toe met respectievelijk 0.07 en 0.27 $^{10}\log$.

Dit laat zien dat de temperatuur en de Schmutzdecke zeer belangrijk zijn, terwijl een verandering in filtratiesnelheid binnen het toegepaste bereik slechts een klein effect heeft op de verwijdering van de micro-organismen.



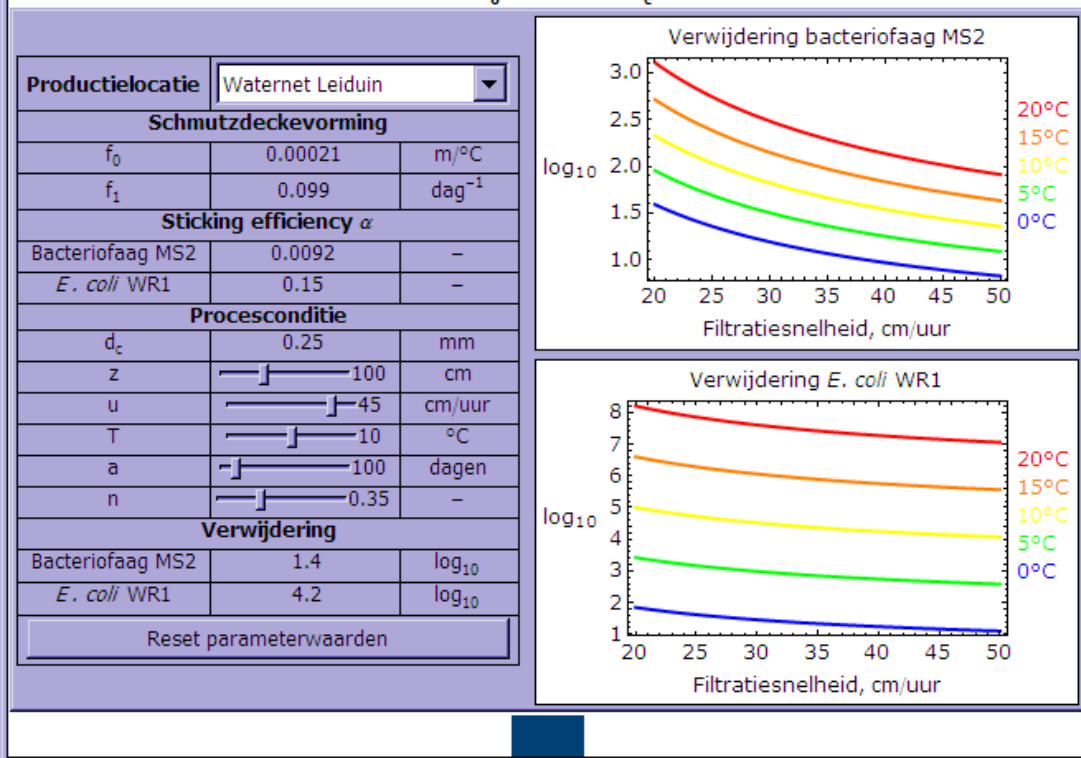
Figuur 3.3 Berekende $^{10}\log$ -verwijdering van MS2 te Weesperkarspel en te Leiduin op grond van 358 watertemperaturen van 2006 tot 2011. Filtratiesnelheid te Weesperkarspel was 45 cm/uur en te Leiduin 30 cm/uur. De periodieke variabiliteit in de verwijdering wordt bepaald door variabiliteit in de watertemperatuur. In 2006, was Schmutzdeckeleeftijd op 1 jaar gesteld. Begin 2007 (bij lage temperatuur) en medio 2009 (bij hoge temperatuur) werd de Schmutzdecke afgeschraapt.

Het model werd ook geïmplementeerd in een rekentool in Mathematica (versie 8.04; Wolfram In., Illinois). Deze rekentool is interactief en toont de verwijdering door LZF van MS2 en ECWR1 als functie van de bedrijfscondities voor de onderzochte productielocaties (Figuur 3.4). De drinkwaterbedrijven hebben de beschikking over deze tool in Computable Document Format.

Op verzoek van Waternet is de modelcode aan hun overgedragen en door Waternet omgebouwd naar een dynamisch Matlab/Simulink® model in Stimela (vander Helm en Rietveld, 2002). Dit model zal worden ingebouwd in het integral Stimela model van drinkwaterzuivering Weesperkarspel (Rietveld et al., 2010). Tijdens het omzetten van het model is de modelcode door Waternet gecontroleerd (2^e lijnscontrole; peer review; A. van der Helm/Waternet).

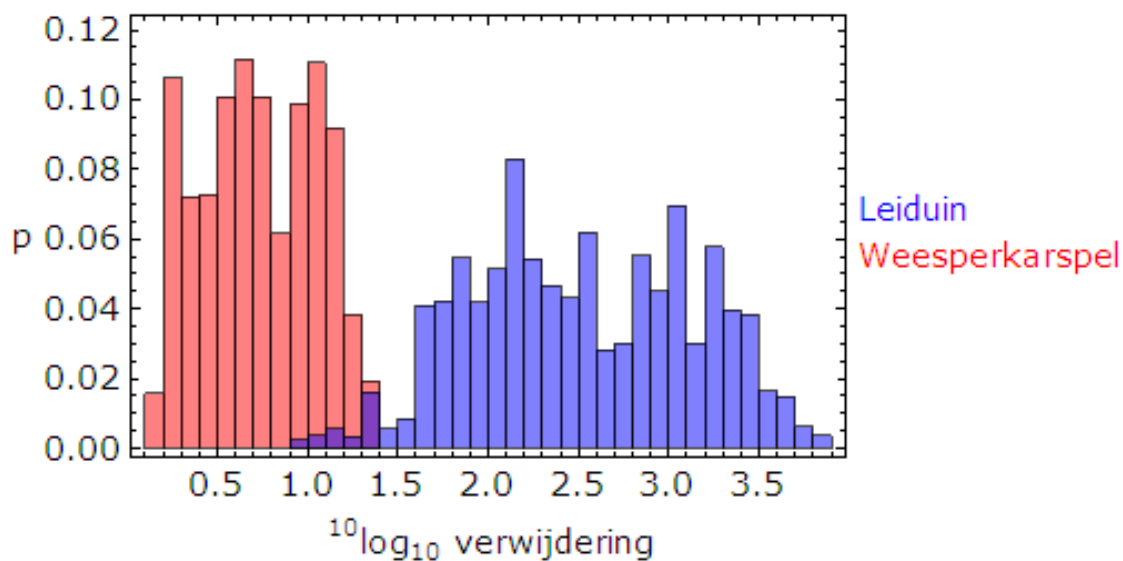


$$\text{Langzame zandfiltratie: } \log_{10} \frac{C}{C_0} = -\frac{1}{\ln 10} \frac{2}{3} \frac{1-n}{d_c} (\alpha \eta_{d_p, d_c, u, T, n} Z + f_0 T (1 - e^{-\alpha f_1 a}))$$



Figuur 3.4 Rekentool LZF.CDF waarmee locatiespecifieke verwijdering van MS2 en ECWR1 onder verschillende bedrijfscondities kan worden voorspeld.

Tenslotte is het de bedoeling om het model voor verwijdering van virussen en bacteriën door LZF toe te passen als onderdeel van de bij wet verplichte kwantitatieve microbiologische risicoschattingen voor drinkwater zoals is voorgeschreven in het Drinkwaterbesluit. Het model kan verwijderinggegevens genereren, zoals gedemonstreerd wordt in Figuur 3.3. Door uit deze gegevens tienduizend willekeurige trekkingen te doen, kan een verdeling van de verwijdering geconstrueerd worden, die de variabiliteit in de verwijdering voorstelt (Figuur 3.4). Deze verdeling kan worden meegenomen in de tool QMRAspot (Schijven et al., 2011), welke standaard wordt gebruikt voor de uitvoering van de kwantitatieve microbiologische risicoschattingen voor drinkwater. Hierbij dient te worden opgemerkt dat de verwijdering door LZF het effectiefst is bij hoge watertemperatuur, terwijl dan in het algemeen concentraties van ziekteverwekkende micro-organismen het laagst zijn. Met deze correlatie dient rekening te worden gehouden in de risicoschattingen. In elk geval moet worden onderzocht in welke mate deze correlatie bepalend is voor de geschatte infectierisico's. Indien dit effect verwaarloosbaar is, dan kan gebruikt worden gemaakt van een willekeurige reeks trekkingen, zoals gedemonstreerd met Figuur 3.5. Indien de correlatie een significant effect heeft op de risicoschatting, dienen de tijdsafhankelijkheden van pathogeenconcentraties en verwijdering door LZF te worden gekoppeld. Dit vergt nog enige ontwikkelinspanningen in QMRAspot.



Figuur 3.5. Histogram van tienduizend Monte Carlo trekking uit voorspelde verwijdering van MS2 door LZF (zie Figuur 3.4) voor toepassing in kwantitatieve microbiologische risicoschatting voor drinkwater.

3.5 Verwijdering *Cryptosporidium* door langzame zandfiltratie

De verwijdering van oöcysten van *Cryptosporidium parvum* door langzame zandfiltratie werd onderzocht in twee doseerproeven op proefinstallatieschaal te Waternet. De eerste proef werd in 2005 te Leiduin uitgevoerd en betrof een langdurige dosering. Dit experiment is beschreven door Hijnen et al. (2007). In deze proef werd de verwijdering van *Cryptosporidium* geschat op $5,3 \log$. De tweede proef werd in 2010 te Weesperkarspel uitgevoerd en de verwijdering geschat op basis van de doorbraakcurve bedroeg toen $4,2 \log$. Tabel 3.6 geeft een overzicht van de condities van beide proeven.

Volgens het ontwikkelde langzame zandfiltratiemodel zijn Schmutzdeckeparameters f_0 en f_1 onafhankelijk van de filters en de microorganismen (bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1). We nemen aan dat dit ook van toepassing is voor *Cryptosporidium*. De geschatte sticking efficiencies blijken erg verschillend in waarde te zijn en het is aanemelijk dat dit toegeschreven kan worden aan de verschillende bronnen van de oöcystensuspensies (hert en rund). In de review van filtratieproeven met *Cryptosporidium* van Park et al. (2012) blijkt dat er een groot bereik aan sticking efficiencies kan worden gevonden. Park et al. (2012) geven niet aan wat de herkomst en specifieke kenmerken, voor zover bekend, van de oöcysten waren. Hijnen et al. (2005) schatte in kolomproeven met duinzand van Castricum en dezelfde oöcysten als in de Leiduinproef sticking efficiencies van 0,038 en 0,049, maar 0,4 en 0,95 voor zand van Roosteren. Kennelijk bestaat er een zeer grote variatie in de hechting van oöcysten. Een dergelijke variatie in hechting bestaat er overigens ook voor *E. coli* (Bolster et al., 2010; Foppen et al., 2010; Lutterodt et al., 2009), maar hier is gekozen voor *E. coli* WR1 als referentiestam.

Gegeven de grote onzekerheid met betrekking tot de hechting van *Cryptosporidium* wordt uit voorzorg gekozen voor de laagste waarde van de sticking efficiency van de Leiduinproef: 0,06.

Uit de proeven met MS2 en *E. coli* WR1, bleek dat de sticking efficiencies van beide microorganismen voor Waternet (Weesperkarspel en Leiduin) 4,7 keer kleiner waren dan die voor DUNEA. Die bacteriofaag MS2 was 4,7keer kleiner dan die van Op grond daarvan wordt dat dit dan ook geldt voor *Cryptosporidium* met MS2 en *E. coli* WR1. Voor de proeven bij Groningen bleek de verhouding van de sticking efficiencies van MS2 en *E. coli* WR1 anders te zijn. Die voor MS2 is 1,6 keer kleiner en die voor *E. coli* is 2,9 keer kleiner.

In Tabel 3.7 worden deze sticking efficiencies gegevens samen met berekende verwijdering voor de gegeven condities. We kiezen hier voor een gemiddelde factor, namelijk 2,2 keer kleiner. De op deze wijze berekende verwijdering van *Cryptosporidium* zijn dan ongeveer gelijk aan die van *E. coli* WR1.

Tabel 3.6. Conditie doseerproeven *Cryptosporidium*

Lokatie	Leiduin	Weesperkarspel
Datum	maart-augustus 2005	5 juli 2010
Referentie	Hijnen et al. (2007)	Dullemont e.a., 2012
Bron oöcystensuspensie	Hert (Moredun)	Rund (Waterborne)
Grootte microorganisme (μm)	5	5
Korrelgrootte zand (mm)	0,29 0,28	0,65 0,61
Diepte filterbed (m)	1,44 1,50	1,26 1,29
Filtratiesnelheid (cm/uur)	30	45
Temperatuur ($^{\circ}\text{C}$)	8 - 18 (gemiddeld 13)	19,5 19,4
Leeftijd Schmutzdecke aan het begin van de proef (dagen)	1095 1120	196
Porositeit	0,39 0,41	0,37 0,33
Verwijdering ($^{10}\log$)	5,3	4,2 4,3
Berekende single collector efficiency, η_0 (Tufenkji and Elimelech, 2004, inclusief temperatuurafhankelijke dynamische viscositeit van water)	0,016	0,0059
Sticking efficiency, α op basis van langzame zandfiltratiemodel, inclusief effect Schmutzdecke met $f_0=0,00021$ en $f_1=0,099$	0,06	0,35 0,22

Tabel 3.7. Sticking efficiëncys en berekende verwijdering van *Cryptosporidium* per lokatie voor enkele condities

Lokatie	Leiduin	Weesperkarspel	DUNEA	Groningen
Grootte microorganisme (μm)	5	5	5	5
Korrelgrootte zand (mm)	0,29 0,28	0,65 0,61	0,53	0,50
Diepte filterbed (m)	1,44 1,50	1,26	1,21	1,61
Filtratiesnelheid (cm/uur)	30	45	30	20
Temperatuur ($^{\circ}\text{C}$)	8 - 18 (gem. 13)	19,5 19,4	13	16,8
Leeftijd Schmutzdecke aan het begin van de proef (dagen)	1095 1120	196	137	189
Porositeit	0,39 0,41	0,37 0,33	0,40	0,32
Sticking efficiency, α	0,06	0,06	0,28	0,027
Berekende verwijdering ($^{10}\log$)	5,3	2,1	3,8	1,8

3.6 Effect van pH

Effect pH: Bij hogere pH in het algemeen minder hechting. Op basis van literatuur is het wel mogelijk iets meer te zeggen. Tussen pH 7 en 8 lijkt er weinig verschil. Met name MS2 zit vanaf pH 5-6 al op zijn meest negatieve lading. Voor nu is het onderdeel van de waterkwaliteit die een rol speelt, en die niet in model is uitgewerkt. De waarde van α hangt af van de pH.

3.7 conclusies en aanbevelingen

Een model voor de voorspelling van verwijdering van microorganismen door langzame zandfiltratie werd ontwikkeld op basis van proefinstallatie-experimenten met bacteriofaag MS2 en *E. coli* WR1. Dit model is gevalideerd en er is een gevoeligheidsanalyse gedaan van het model (zie hoofdstuk 2, het Water Research artikel). Tevens is in het Water Research artikel aangegeven wat het toepassingsgebied is van het model en wat de beperkingen ervan zijn. Dat laatste is een resultante van overleg met de betrokken drinkwaterbedrijven. Hieronder is daarvan een samenvatting gegeven.

- Het model werd ontwikkeld voor en van toepassing op de langzame zandfiltratie zoals toegepast in Nederland. Dit zijn langzame zandfilters die binnenshuis worden bedreven als laatste stap in de drinkwaterproductie.
- Het onderzoek suggereert dat er sprake van invloed van de eigenschappen van het zand. Het DUNEA-zand bevatte meer ijzer-hydroxides, en dat zou een verklaring kunnen zijn waarom er meer verwijdering door dit zand plaatsvindt. Echter, organisch materiaal kan een dergelijk effect tenietdoen. Het is zinvol om hiernaar nader onderzoek te doen om te zien of dergelijk zand om die reden inderdaad effectiever is en zo mogelijk op meerdere locaties kan worden gebruikt.
- Het onderzoek gaf aanwijzingen dat de kwaliteit van het water dat door de langzame zandfilters wordt behandeld ook van invloed is op de werking van de langzame zandfiltratie. Snelfiltraat zal eerder leiden tot het moeten schrapen van filters dan actief koelfiltraat. Dergelijke effecten zitten niet in het model.
- Er ligt ook de vraag van het effect van pH. Bij hogere pH zou minder verwijdering het geval kunnen zijn. Er is in dat opzicht veel informatie vanuit de literatuur; ook kwantitatieve relaties.
- Ook van belang is de bedweerstand. Er is vooralsnog geen kwantitatieve relatie gelegd tussen de bedweerstand van een langzaam zandfilter en de mate van verwijdering van microorganismen.
- Verwijdering van oöcysten van *Cryptosporidium* werd in twee experimenten onderzocht. Hierbij werden twee verschillende oöcysten-suspensies toegepast (van hert en van rund). De herten-oöcysten werden duidelijk minder verwijderd dan de runder-oöcysten. Vooralsnog gaan we uit van de meest conservatieve: de herten-oöcysten en moet er geëxtrapoleerd worden naar de verschillende locaties. Aanbevolen wordt om via onderzoek met kolommen een vergelijking te maken in de verwijdering van oöcysten tussen het zand van langzame zandfilters van Groningen, Waternet en DUNEA. In combinatie met de huidige gegevens kan dan beter naar de praktijk worden geëxtrapoleerd.
- Verwijdering van *Giardia*: Aanbevolen wordt om aan te nemen dat *Giardia* tenminste even goed wordt verwijderd als *Cryptosporidium*. Deze aanname vindt onderbouwing in Hijnen et al (2005).
- Hoe het model op te nemen in de QMRA (QMRAspot) moet nog worden uitgewerkt. Belangrijk is de relatie met filterwerking en concentratie pathogeen; beide zijn seizoensafhankelijk. Bij lage temperatuur minder goede filterwerking, maar vaak hogere pathogeenconcentraties, en omgekeerd.
- De rekentool om verwijdering te voorspellen door LZF is uitgebreid met *Cryptosporidium*. Er is behoefte aan verdere uitbreiding om te kunnen rekenen met tijdreeksen van proces-condities.

4 Rol van predatie

4.1 Rol bij eliminatie van *E. coli* en bacteriofagen

Uit het totaal van de experimentele gegevens van de verschillende doseerproeven die zijn verzameld en gebruikt voor het ontwikkelen van een procesmodel (Schijven e.a., 2013) voor het voorspellen van de eliminatiecapaciteit van de langzame zandfilters van de betrokken waterbedrijven (Waternet, Dunea, Groningen) zijn de volgende algemene resultaten gekomen:

- de verwijdering van virussen is lager dan de verwijdering van bacteriën;
- de verwijdering van *E. coli* en MS2 door de verschillende filters zijn lineair gecorreleerd;
- verwijdering van de Schmutzdecke heeft een kortdurend (<50 dagen) verlagend effect op de verwijdering;
- de procesconditie die het grootste effect heeft op de verwijderingscapaciteit is de watertemperatuur.

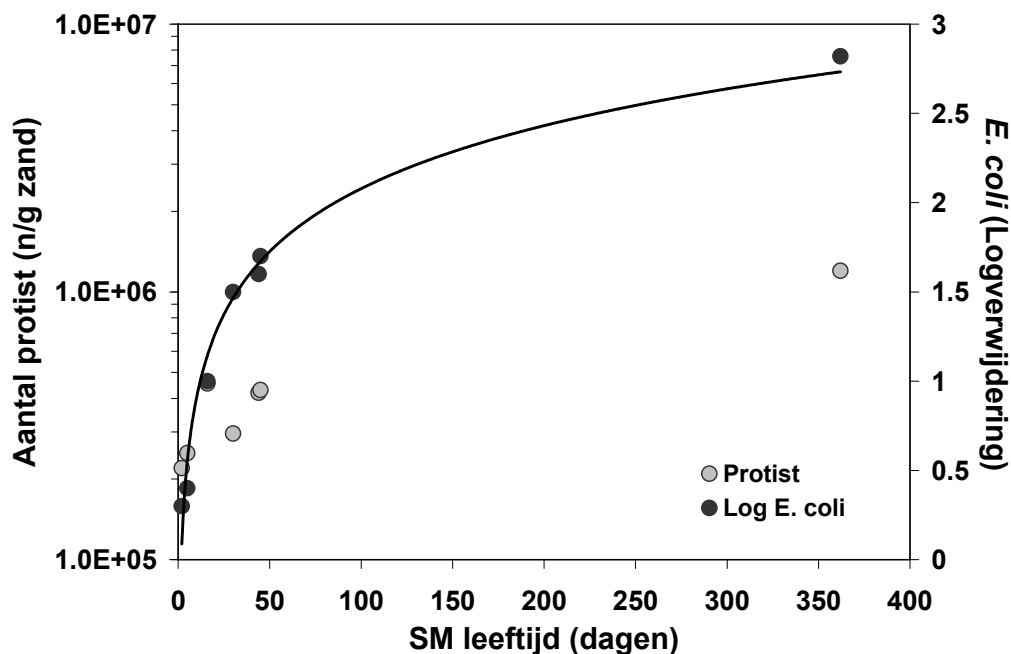
Dit laatste wordt toegeschreven aan de invloed van de biologische activiteit in het filterbed. In het huidige project zijn geen metingen verricht aan de proeffilters om de bijdrage van predatie aan de verwijdering van *E. coli* en MS2. Het procesmodel is gebaseerd op het colloid-filtratie model (Yao e.a., 1971) aangevuld met een logistische groeifunctie voor de werking van de Schmutzdecke met een schaalfactor f_0 en een snelheidscoëfficiënt f_1 . De kwantitatieve invloed van biologische processen op de verwijdering van micro-organismen als predatie en proteolytische activiteit is gekoppeld aan de hechtings of sticking efficiency α , f_0 en f_1 die zijn geschat m.b.v. de Likelihood-ratio testen.

De rol van (micro)biologische activiteit bij de verwijdering van micro-organismen in langzame zandfilters is algemeen bekend (Weber-Shirk and Dick, 1997) en beschreven in de literatuur sinds 1961 (Burman and Lewin, 1961; Lloyd, 1973). De mechanismen zijn beschreven als predatie van organismen op bacteriën en detritus gehecht aan de zandkorrels (Huisman and Woods, 1975; Poynter and Slade e.a., 1977), maar ook micro-organismen en detritus in suspensie worden door organismen opgenomen (Lloyd, 1973).

Recent onderzoek gedaan onder leiding van Prof. M.R. Collins (Unger and Collins, 2006; Gyles e.a., 2008) heeft de rol van biologische processen bij de verwijdering van bacteriën in biologisch actieve filters duidelijk aangetoond. In de eerste studie werd aangetoond dat de *E. coli* verwijdering in een filterbed significant toeneemt bij een toenemende activiteit gemeten met de CO₂ respiratie. Tevens werd in deze studie de potentiële bacterieconsumptie snelheid geschat van $1,5 \times 10^6$ per cm².h⁻¹ op basis van het aantal flagelaten in het filterbed en een in de literatuur genoemde opnamesnelheid (Kinner, e.a., 1998). Deze waarde lag ver boven de werkelijke *E. coli* belasting van het filter bed in hetzelfde onderzoek. Voor Weesperkarspel werd een potentiële bacterieconsumptie snelheid van 4×10^4 – 4×10^5 per cm³ Schmutzdecke per uur geschat op basis van een waargenomen ciliaat en amoeba aantallen (respectievelijk 1250 en 4280 cellen/gram zand) en een conservatieve geschatte opnamesnelheid van 10 – 100 bacteriën per organisme per uur (Bijlage 3; Yolanda Dullemont, persoonlijke mededeling).

Bij de doseerproeven van het huidige onderzoek was de *E. coli* belasting ongeveer een factor 5 hoger dan deze potentiële opnamesnelheid. Een relatie tussen de concentratie protisten in de eerste 0,5 cm van een zand kolom op de eliminatie van *E. coli* bij een temperatuur van 10°C is door Gyles e.a. (2008) aangetoond in een kolom studie (Figuur 4.1).

Ook voor bacteriofagen zijn er aanwijzingen dat biologische activiteit en predatie in het filterbed een significante bijdrage kan leveren aan de verwijdering naast hechting (Eliot e.a., 2011). Een recente studie (Pinheiro e.a., 2007) toonde dat de ciliaat *Tetrahymena thermophila* in staat was een bacteriofaag T4 op te nemen en te inactiveren. Naast predatie kan ook de proteolytische activiteit van bacteriën een rol spelen bij de inactivatie van virussen (Walker and Toth, 2000).



Figuur 4.1. De relatie tussen de Schmutzdecke leeftijd, de concentratie protisten (n/g) in de eerste 0,5 cm van het filterbed en de logverwijdering van *E. coli* (bron: Gyles e.a., 2008)

4.2 Rol bij transport en doorbraak

De eerste studie naar de verwijdering van *Cryptosporidium* door langzame zandfiltratie was een lange duur proef met een lage dosering (Hijnen e.a., 2007). Bij deze proef werden aanwijzingen gevonden voor de rol van predatie bij de verlaging van het aantal oöcysten die in het filterbed waren geaccumuleerd. Hierbij werd een relatie gelegd met de activiteit van Rotifera in het filterbed waarvan predatie bekend was. Aangezien dergelijke organismen ook in het filtraat in aanzienlijke aantallen worden aangetroffen was het de vraag in welke mate er sprake kon zijn van de doorbraak van oöcysten opgenomen in deze organismen. Een dergelijk proces van opname en vertraagd transport was eerder aangetoond voor aktievekoolfilters (Bichai e.a., 2010). In het onderhavige onderzoek is dit fenomeen op een vergelijkbare wijze onderzocht tijdens en na de uitvoering van een doseerproef in 2010. Deze proef is uitgevoerd om, in het kader van de validatie van het procesmodel, de eliminatiecapaciteit van langzame zandfilters te Weesperkarspel voor *Cryptosporidium* te bepalen.

4.2.1 Proeffilter

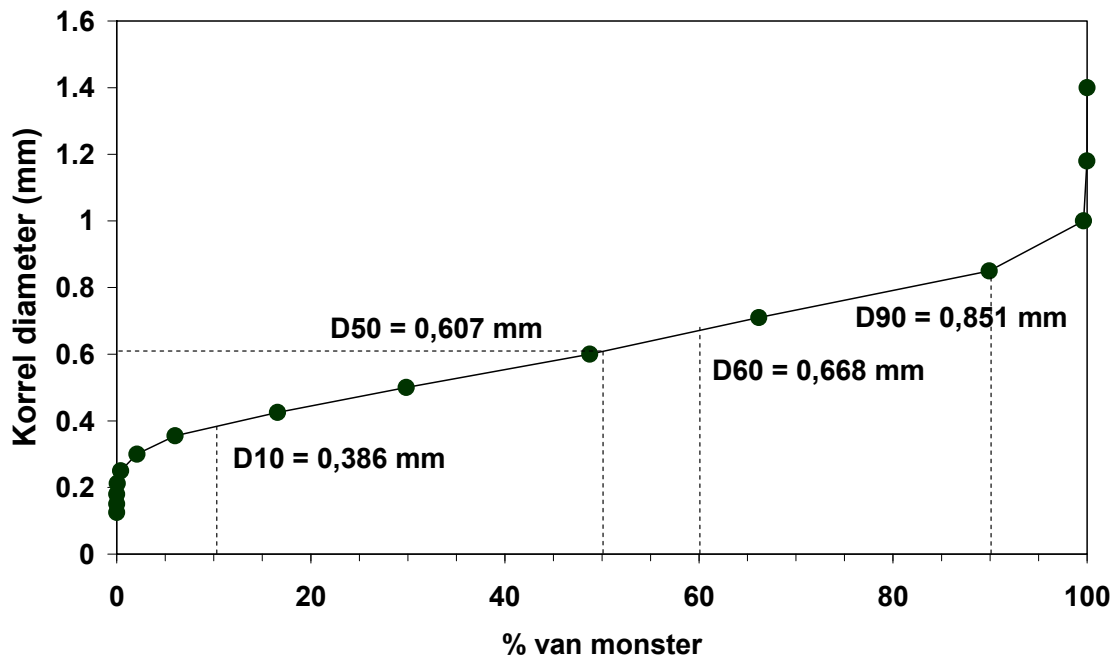
Het proeffilter LZF2 is sinds 4 maart 2008 in bedrijf en had op het moment van de proef een bedweerstand van 14 cm WK en was 196 dagen geleden gekrabd. Het filter heeft een beddikte van 1,29 m en een oppervlak van 2,56 m². Bij een volumebelasting van 1,3 m³/h en een overstort hoeveelheid van 0,15 m³/h is de filtratiesnelheid 0,45 m/h. De gemiddelde korreldiameter van het zand is 0,61 mm (zie figuur 4.2) en de uniformiteitscoëfficiënt is 1,73.

Op 16 juni 2010 is een tracertest op dit filter uitgevoerd en de gegevens zijn weergegeven in figuur 4.3. Hierbij is een pulsdosering toegepast. Op grond hiervan zijn de porositeit en dispersiviteit berekend op resp. 33% en 0,2 cm (gegevens LZF 1, *E. coli* proef).

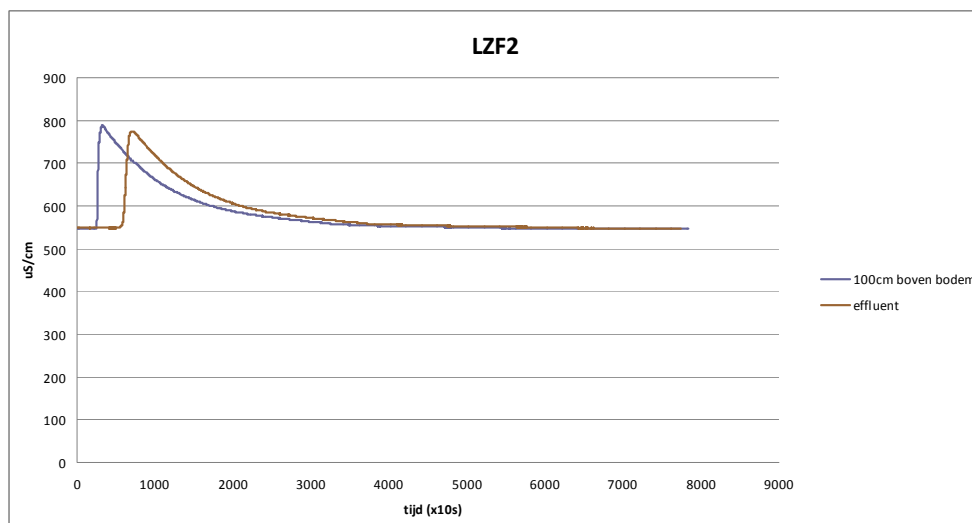
4.2.2 Waterkwaliteit en verwijdering van bacteriën

Het filter wordt gevoed met het filtraat van de ozon/AKF installatie van de proefinstallatie Weesperkarspel met een temperatuur van 19,4°C. De pH van het water was 8,4. Vanaf 22 april tot aan de doseerproef zijn metingen verricht met Flowcytometrie (FC) en directe celltelling (DC) om de eliminatiecapaciteit van het filter te bepalen. Het gemiddelde aantal cellen (n = 9) bepaald met FC en DC in het aangevoerde water was respectievelijk $2,6 \times 10^5$ ($\pm 5,7 \times 10^4$) en $5,6 \times 10^4$ ($\pm 1,4 \times 10^4$). Deze aantallen

werden verlaagd tot $1,4 \times 10^5$ ($\pm 2,8 \times 10^4$) voor de FC en $4,7 \times 10^4$ ($\pm 2,1 \times 10^4$) voor de DC bepaling. De hieruit berekende DEC waarden waren resp. 0,26 ($\pm 0,16$) en 0,08 ($\pm 0,16$) log.



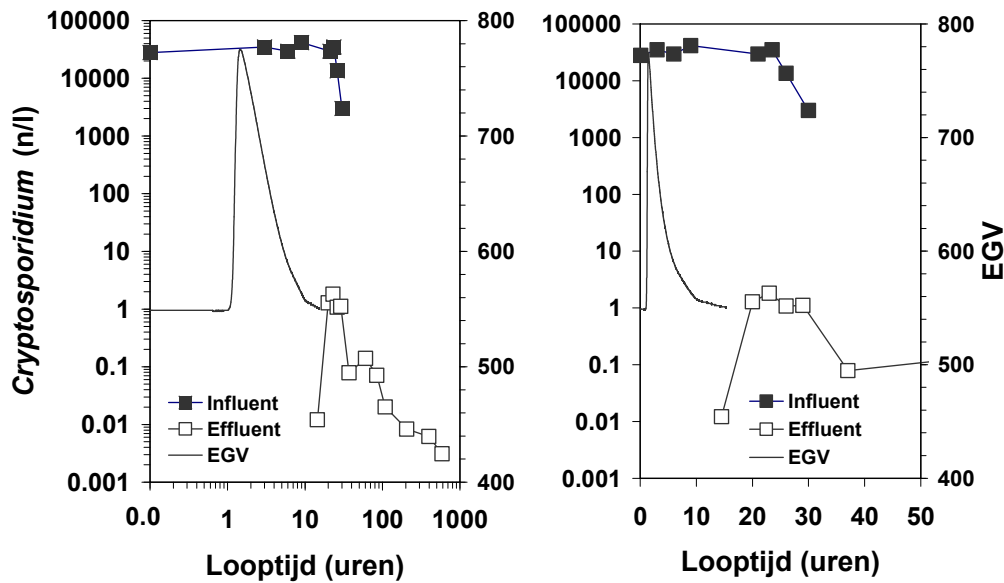
Figuur 4.2. Korrelgrootte verdeling van het zand in LZF2 Weesperkarspel



Figuur 4.3. EGV verloop van het water (to = 30 minuten voor toevoeging van het zout)

4.2.3 Doseerproef met *Cryptosporidium*

De doseerproef met UV bestraalde oöcysten van *C. parvum* is uitgevoerd op 12 juli en verder. De influent concentratie tijdens de doseerperiode van de proef was gemiddeld $3,3 \times 10^4$ (± 5093) per liter (Figuur 4.4). Tijdens de doseerproef zijn 8 monsters van 1 liter van het filtraat zonder concentrering onderzocht (directe celtelling; DC) en 8 monsters van 1,4 m³ met de hemoflow concentrering (HC).



Figuur 4.4. Dosering en doorbraak van *Cryptosporidium* oöcysten en zout (EGV; gecorrigeerd voor 30 minuten, zie figuur 4.3) bij het proeffilter van Weesperkarspel

De recovery van de DC was $77,2(\pm 13,9)\%$ en van de HC $20,6(\pm 8,8)\%$. In de eerste vier monsters van dag 1 werden geen oöcysten gevonden. In de hemoflow monsters van het effluent genomen tijdens de daarop volgende periode was de concentratie 0,012 per liter (gecorrigeerd voor de recovery; Figuur 4.4). In de liter monsters (DC) tijdens de tweede dag was het aantal oöcysten 1,08 – 1,81 oöcysten per liter. In de dagen daarna werden alleen hemoflow monsters onderzocht en nam de concentratie af van 1,1 per liter tot 0,003 oöcysten per liter na 24 dagen. *Gebaseerd op de gemiddelde oöcysten concentratie in het influent en de maximale waarde in het effluent is een Decimale Eliminatie Capaciteit van 4,3 log berekend.*

4.2.4 Zoöplankton in het water en het zand

Om de rol van predatie en transport op het aantal oöcysten in het filtraat te onderzoeken, is het zoöplanktonbestand in het influent en effluent van het filter en in het zand van de eerste 10 cm filterbed bepaald. Op dag 3 en 17 van het onderzoek is het zoöplankton met een grootte van $\geq 30 \mu\text{m}$ in de concentraten van 250 liter water en op dag 31 van 100 liter water geteld (Tabel 4.1). De hoogste aantallen in het influent van het filter werd waargenomen voor de *Rotifera* en de *Harpacticoida*, gevolgd door *Acari*, *Cyclopoida*, *Ciliata*, *Ostracoda*, *Amoebida*. In het effluent waren het meest talrijk *Rotifera* gevolgd door *Harpacticoida*, *Acari* en *Nematoda*. Het totaal aantal organismen $\geq 30 \mu\text{m}$ nam in het filterbed af met 0,7 – 1,0 log. Op dag 3 was het aantal groepen in het influent talrijker dan in het effluent. Op de andere twee dagen was dat omgekeerd. Bij de groepen *Amoebida*, *Testacea*, *Cyclopoida*, *Acari* (+ larven), *Harpacticoida*, *Waterlooien* en *Nematoda* is zowel afname als een toename (uit > in) waargenomen terwijl de *Oligochaeta* aantallen alleen toenamen. Het aantal monsters is te gering om uitspraken te kunnen doen over de betekenis hiervan.

Op dag 9 en dag 45 zijn steekmonsters van het filterbed genomen waarin het aantal organismen is bepaald (Tabel 4.2). Uit deze gegevens blijkt dat het bestand aan zoöplankton in dit proeffilter duidelijk hoger was dan in het proeffilter van Leiduin dat eerder is onderzocht (Hijnen e.a., 2007).

De aanwezige dominante soorten komen over het algemeen overeen met de soorten die ook in het in- en effluent worden gevonden (Tabel 4.1). Op basis van deze twee metingen lijkt er tussen dag 9 en dag 45 een afname van het aantal soorten en verschuiving in de dominante soorten te hebben plaatsgevonden.

Tabel 4.1. Zoöplanktongegevens ($\geq 30 \mu\text{m}$) van het influent en effluent van LZF 2; de soorten zijn gerangschikt naar hoogste aantal in het influent

15 juli Dag 3 Monstervolume	Zoöplanktonn/m ³ 250 liter		29 juli Dag 17 Monstervolume	Zoöplanktonn/m ³ 250 liter		12 augustus Dag 31 Monstervolume	Zoöplanktonn/m ³ 100 liter	
	In	Uit		In	Uit		In	Uit
<i>Oligochaeta</i>	0	64	<i>Amoebida</i>	0	18	<i>Waterlooien</i>	0	65
<i>Nematoda</i>	0	0	<i>Testacea</i>	0	9	<i>Harpacticoida</i>	0	270
<i>Chironomidae</i> larven	0	0	<i>Tardigrada</i>	0	0	<i>Cyclopoida</i>	0	46
<i>Acari</i> larven	0	0	<i>Waterlooien</i>	0	0	<i>Oligochaeta</i>	0	18
<i>Ostracoda</i>	0	0	<i>Cyclopoida</i>	0	39	<i>Nematoda</i>	0	110
<i>Waterlooien</i>	14	0	<i>Acari</i>	0	56	<i>Acari</i>	0	220
<i>Testacea</i>	25	9	<i>Acari</i> larven	0	84	<i>Acari</i> larven	0	190
<i>Tardigrada</i>	25	0	<i>Harpacticoida</i>	14	270	<i>Ostracoda</i>	0	0
<i>Amoebida</i>	51	0	<i>Chironomidae</i> larven	14	0	<i>Testacea</i>	45	18
<i>Ciliata</i>	57	0	<i>Oligochaeta</i>	28	44	<i>Tardigrada</i>	45	0
<i>Nauplius</i> larven	130	16	<i>Nauplius</i> larven	41	20	<i>Ciliata</i>	45	0
<i>Cyclopoida</i>	420	0	<i>Nematoda</i>	46	18	<i>Nauplius</i> larven	45	28
<i>Acari</i>	430	0	<i>Ostracoda</i>	180	0	<i>Chironomidae</i> larven	45	0
<i>Rotifera</i>	4100	1000	<i>Ciliata</i>	230	0	<i>Amoebida</i>	140	0
<i>Harpacticoida</i>	6200	16	<i>Rotifera</i>	3500	340	<i>Rotifera</i>	10000	890
Totaal	11452	1105	Totaal	4053	898	Totaal	10365	1855
Soorten	10	5	Soorten	8	10	Soorten	7	10
Toename	1		Toename	7		Toename	7	
	<i>Oligochaeta</i>			<i>Amoebida, Testacea Cyclopoida Acari (+ larven) Harpacticoida Oligochaeta</i>			<i>Waterlooien Harpacticoida Cyclopoida Oligochaeta Nematoda Acari (+larven)</i>	

Tabel 4.2. Zoöplankton in het zand van LZF2; monsters van de eerste 10 cm van het filterbed (voor elke monsternamen geldt dat een mengmonster van twee locaties is onderzocht)

	Zoöplankton per 30 g	
	21-juli Dag 9	26-augustus ^a Dag 49
<i>Turbellaria</i>	3	0
<i>Oligochaeta</i>	15	0
<i>Amoebida</i>	90	0
<i>Acari</i>	90	0
<i>Harpacticoida</i>	210	90
<i>Testacea</i>	240	180
<i>Nauplius</i> larven	270	0
<i>Rotifera</i>	1260	5700
<i>Ciliata</i>	2100	0
<i>Nematoda</i>	3300	4350
total	7578	5190

^a "droog" zandmonster

4.2.5 Predatie en vertraagd transport

De vraag van het onderzoek was of door predatie de in het filterbed opgenomen oöcysten het effluent konden bereiken. Om dit vast te stellen werd een uitvoerig monsterprogramma op het filtraat uitgevoerd om voldoende zoöplankton te onderzoeken. Er werden gedurende 4 weken na de doseerproef 'korte duur' submonsters driemaal daags genomen van 100 liter effluent gefiltreerd over een 30 μm planktonnet en direct gefixeerd met glutaraaldehyde (temperatuur 4°C) om uitscheiding van opgenomen oöcysten te voorkomen. Van alle concentraten van één week werd een mengmonster gemaakt (zoöplankton uit een totaal volume van ca. 1,5 (5x300 liter) m³ effluent). Tevens werden er 24 uren monsters dagelijks (werkdagen) genomen en voor elke week samengevoegd tot een mengmonsters van ca. 100 m³ (4x 25 en 1x 4 m³). De zoöplanktonmonsters zijn onderzocht op de aanwezigheid van vrij gesuspenderde oöcysten en vervolgens na een voorbehandeling met hoge energetisch sonificatie (HES)

zoals beschreven door Bichai e.a. (2010) onderzocht op oöcysten opgenomen door zooplankton. De HES behandeling is bedoeld om zooplankton in de monsters te desintegreren. Omdat het om hoog troebele monsters ging is een extractie methode met IMS op de concentraten toegepast om de vrije en opgenomen oöcysten te bepalen.

Uit de resultaten is gebleken dat in de zooplanktonconcentraten geen vrije oöcysten konden worden aangetoond en slechts in één van de lange duur mengmonsters (week 3) één oöcyst is gevonden na desintegratie door de standaard HES bepaling (Tabel 4.3). Na correctie voor de recovery betekent dat er 7 oöcysten zijn gevonden in het zooplankton in het effluent. Wanneer ervan uit wordt gegaan dat de oöcysten zijn opgenomen door 7 individuen van de *Rotifera* populatie dan is de geschatte oöcysten dichtheid in deze groep van zooplankton 1 per 5634 *Rotifera* (7 oöcysten in $3,9 \times 10^4$ *Rotifera*; 116 m³ bemonsterd met een *Rotifera* concentratie van 340/m³, zie tabel 4.2; dag 17).

Tabel 4.3. Aantal oöcysts in zooplankton verzameld uit het effluent

Treatment:	Korte duur sub monsters (n/m ³) zooplankton in ca. 1.5 m ³		Lange duur sub monsters zooplankton in ca. 100 m ³	
	Geen HES	HES	geen HES	HES
Week 1 (dag 4 – 10)	< 6,2	< 0,11	< 9,7	< 0,32
Week 2 (dag 11 – 17)	< 68	< 0,04	< 67	< 0,46
Week 3 (dag 18 – 24)	< 2,8	-	< 8,5	0,06
Week 4 (dag 25 – 31)	< 6,8	< 0,11	< 67	< 0,95
Recoveries%				
week 1	10,8	8,8	6,9	2,9
week 2	1,0	22,5	0,0	2,0
week 3	24	-	7,8	15
week 4	9,8	7,8	0,0	1,0

Hieruit kan worden geconcludeerd dat het proces van door zoöplanktongefaciliteerd transport van oöcysten geaccumuleerd in het filterbed mogelijk is, maar dat het percentage van het totaal in het bed geaccumuleerde oöcysten dat op deze manier uitspoelt, zeer laag is. Bij een dosering van $9,1 \times 10^8$ (24 uur x 1150 liter/uur x $3,3 \times 10^4$ per liter) gaat het om 0,000005% over een periode van 1 maand. Een onzekere, maar wel belangrijke, factor hierbij is de lage recovery percentages van de analyses in de zoöplanktonconcentraten (0 – 22,5%; Tabel 4.3).

In de zandmonsters is ook het aantal vrije en opgenomen oöcysten bepaald na dag 9 en dag 49. Uit de gegevens blijkt dat er sprake was van een duidelijke afname van het aantal vrije oöcysten. Het aantal daalde van 458 per gram zand op dag 9 naar 11 per gram zand na dag 49 (Tabel 4.4). Gecorrigeerd voor het aantal vrije oöcysten in de zoöplanktonmonsters nam het aantal opgenomen oöcysten in de zoöplankton toe van 0,3 per gram naar 2,6 per gram. Gebaseerd op het aantal *Rotifera*, de vermoedelijke predator, en onder de aanname dat de oöcysten uniform en gelijk verdeeld zijn over de *Rotifera* populatie, is de oöcyst dichtheid 1 per 140 *Rotifera* op dag 9 en 1 oöcyst per 73 *Rotifera* op dag 49. In het filtraat werd een oöcyst dichtheid van 1 per 5634 *Rotifera* gevonden. Uitgaande van een uniforme verdeling van 1 oöcyst per *Rotifer* zou dit betekenen dat ongeveer 1% van de *Rotifera* die oöcysten hebben opgenomen en aanwezig zijn in de eerste 10 cm van het filterbed, het filtraat hebben bereikt.

De resultaten van dit onderzoek laten zien dat het mechanisme van vertraagd transport zeer waarschijnlijk optreedt, zoals dat ook voor akieve koolfilters is vastgesteld. De mate waarin is echter zeer laag en levert waarschijnlijk geen significante bijdrage aan het infectierisico. Hierbij moet worden opgemerkt dat de recovery in het experiment laag was. Op basis van de gegevens gepresenteerd door Bichai et al. 2010 voor een GAC experiment is onder deze condities een oöcysten dichtheid van 1 per ca. één *Rotifer* berekend in het GAC filterbed 1 week na de doseerproef en een dichtheid van 1 per 28 *Rotifera* in het filtraat na ca. 4 weken. De geschatte doorslag van *Rotifera* met oöcysten is onder deze condities ca. 4%.

Tabel 4.4. Het aantal vrije en opgenomen oöcysten per gram zand bemonsterd op twee momenten tijdens het onderzoek (mengmonsters van twee afzonderlijke monsters genomen op twee locaties in het filter bed)

Time (days)	Zand monster	Zoöplanktonmonster uit zand	
	Geen HES Oöcysten n/g (vrij)	Geen HES oöcysten n/g (vrij)	HES oöcysten n/g (gebonden)
9	458 (314) ^a	0,45	0,75
49	11	<0,41	2,6

^a na 1 week in de koeling en een week bij 15°C

4.3 Vormt predatie in langzame zandfiltratie een risico voor doorslag van *Cryptosporidium*?

Door Yolanda Dullemont, Martine Rosielle, Anke Brouwer-Hanzens, Wim Hijnen

4.3.1 Samenvatting

Door de gezamenlijke Nederlandse drinkwaterbedrijven met langzame zandfiltratie als zuiveringsstap zijn doseerexperimenten ondernomen om de eliminatie capaciteit van deze zuiveringsstap te bepalen ten aanzien van pathogene micro organismen. De Decimale Eliminatie Capaciteit (DEC) van langzame zandfiltratie ten aanzien van oöcysten van *Cryptosporium parvum* is hoog, namelijk 4,3-4,7 logeenheden. Predatie en gefaciliteerd transport van oöcysten door zoöplankton, het zogenaamde vectorgedrag, blijkt inderdaad te kunnen plaatsvinden, maar het risico hiervan voor de veiligheid van drinkwater is verwaarloosbaar.

4.3.2 Microbiologische veiligheid drinkwater

In het Waterleidingbesluit zijn kwaliteitseisen opgenomen voor ziekteverwekkende (pathogene) micro-organismen in drinkwater. De algemene eis is dat de concentratie van deze pathogenen zo laag moet zijn dat de jaarlijkse kans op infectie via drinkwater minder is dan 10^{-4} per persoon. Omdat deze concentratie niet meetbaar is, dient een Analyse Microbiologische Veiligheid Drinkwater (AMVD; Wetsteyn, 2005) te worden uitgevoerd. Bij de kwantitatieve risicoanalyse wordt de concentratie pathogenen in het drinkwater bepaald uit de concentratie in het ruwe water en de verwijdering tijdens de drinkwaterproductie.

4.3.3 Verwijderingscapaciteit van langzame zandfiltratie

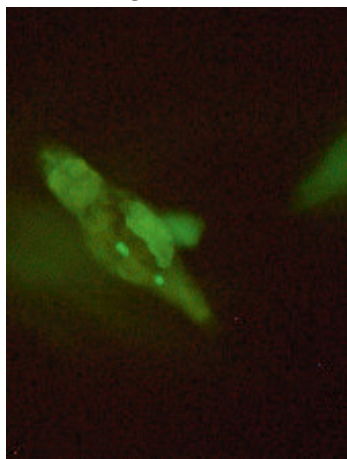
Ten behoeve van het opstellen van deze AMVD's is door drie Nederlandse drinkwaterbedrijven in samenwerking met KWR en het RIVM onderzoek gedaan naar de Decimale Eliminatie Capaciteit (DEC) van langzame zandfiltratie voor de in het Drinkwaterbesluit genoemde index pathogenen; Wetsteyn, 2005; Hijnen e.a., 2004; Dullemont e.a., 2006). Aan de hand van de resultaten van deze doseerexperimenten wordt door het RIVM momenteel een procesmodel ontwikkeld om de DEC te kunnen bepalen onder verschillende condities (filtratiesnelheden, watertemperatuur en korrelgrootte; Schijven e.a., 2008b).

In een van de doseerexperimenten is de DEC bepaald voor de oöcysten (soort sporen) van de pathogeen *Cryptosporium parvum* met de proefinstallatie te Leiduin (filtratiesnelheid 0,3 m/uur, $d_{50} = 0,28$ mm, Hijnen e.a., 2007). De eliminatiecapaciteit van het proeffilter voor de oöcysten was hoog, namelijk 4,7 logeenheden. Uit de massabalans gegevens van de oöcysten bleek dat in het filterbed het aantal oöcysten sterk was afgenomen en predatie werd hiervoor als verantwoordelijke mechanisme voorgesteld. Predatie van oöcysten door raderdieren is eerder in de literatuur aangetoond (Stott e.a., 2003). Op grond hiervan en de waarneming dat raderdieren veelvuldig in het effluent voorkomen, rees de vraag of het mogelijk is dat in het zoöplankton opgenomen oöcysten het filterbed kunnen passeren (het zgn. vectorgedrag). De berekende 4,7 logeenheden verwijdering zou daarmee een mogelijk overschatting van de DEC kunnen zijn.

4.3.4 Predatie experiment op labschaal

Uit zand van de Schmutzdecke van een langzaam zandfilter, de bovenste laag van 2-3 cm, waarin zich de hoogste concentratie aan zoöplanktonorganismen bevindt, is in het laboratorium het zoöplankton verzameld. Het zand is geschud en gefiltreerd over 100 µm- en 30 µm- zoöplanktonfilters. Het

zoöplankton kreeg na een uithongeringsperiode van ca.18 uur een suspensie van met Easystain gekleurde *C. parvum* oöcysten aangeboden in een concentratie van 80.000 oöcysten/ml en werd vervolgens gedurende 1,5, 3, 4,5 en 24 uur geïncubeerd voor microscopische analyse. Na de incubatieperiode werd het zoöplankton afgedood met 4% ijskoude gluteraldehyde (2% eindconcentratie) om uitscheiding van ingeslikte oöcysten te voorkomen (Sibille e.a., 1988). De doorzichtige zoöplanktonorganismen werden ieder afzonderlijk d.m.v. fluorescentie-microscopie beoordeeld op inname van de gekleurde oöcysten. Alleen raderdieren van het geslacht *Rotaria sp.* en/of *Philodina sp.* bleken de oöcysten te eten. Bij gemiddeld 5% van deze organismen werden 1 of meerdere oöcysten in het lichaam aangetroffen.



Figuur 4.5. Raderdier (*Philodina sp.* of *Rotaria sp.*) met drie ingeslikte oöcysten na 3 uur incubatietijd.

Figuur 4.6. Speciaal aangepaste zoöplankton monsternamen apparatuur voor het totale filtraat met een debiet van 1,15m³/uur

Aan de scherpe begrenzing van oöcysten is te zien dat de oöcysten het kauwapparaat, de mastax, ongeschonden zijn gepasseerd. In de literatuur zijn nog geen aanwijzingen gevonden dat de opgenomen oöcysten worden gemetaboliseerd (Hijnen e.a., 2007). Het beeld dat 1 oöcyst zich na 3 uur incubatie dicht bij de anus bevindt en nog intact lijkt, zou kunnen worden gezien als een bevestiging hiervan. Tevens laat dat zien dat passage door het lichaam optreedt in een tijdsbestek van maximaal drie uur. Vanwege deze resultaten worden de raderdieren van het geslacht *Philodina sp.* en/of *Rotaria sp.* als mogelijke vectororganismen gezien voor oöcysten.

4.3.5 Doseerexperiment op proefinstallatieschaal

Onderzoek naar het vectorgedrag van zoöplankton is eerder uitgevoerd met een actief koolfilter (Bichai e.a., 2010), waarbij een methodiek ontwikkeld is waarmee het vectorgedrag van zoöplankton bij filtratie kan worden aangetoond. In het kader van de ontwikkeling van het procesmodel (Schijven e.a., 2008b) is een tweede doseerproef op een proeffilter te Weesperkarspel met een hogere filtratiesnelheid (0,45 m/h) en grovere korreldiameter ($d_{50} = 0,61$ mm) uitgevoerd. Hierbij is ook het vectorgedrag van zoöplankton onderzocht. Er werd een hoge concentratie UV bestraalde oöcysten (*C. parvum*; $3,3 \times 10^4$ (± 5093) per liter) gedurende 24 uur gedoseerd (totaal aantal $9,1 \times 10^8$). Het proeffilter werd gevoed met filtraat van een actief koolfilter. Tijdens de doseerproef zijn in de eerste 24 uur 8 monsters van 1 liter direct en in de daarop volgende 4 weken 8 monsters van 1,4 m³ met hemoflow concentrering onderzocht op oöcysten doorslag. Gebaseerd op de gemiddelde oöcysten concentratie in het influent en de maximale gevonden waarde in het effluent is een Decimale Eliminatie Capaciteit (DEC) van 4,3 logeenheden berekend (concentraties zijn gecorrigeerd voor de recovery van de analyse bepaald met colorseeds).

4.3.6 Zoöplankton in het water en de Schmutzdecke

Het zoöplankton met een grootte van ≥ 30 μm is uit 250 liter (dag 3 en 17) en 100 liter (dag 31) monsters van het in- en effluent geïsoleerd, gedetermineerd en geteld. Het totaal aantal organismen in het influent varieerde tussen 4000 en 11.000 per m³ en bestond voor een belangrijk deel uit raderdieren (Tabel 4.5). Het aantal nam af met 0,7 – 1,0 log af en ook in het effluent was het percentage raderdieren hoog.

Tabel 4.5. Aantal raderdieren per m³ en het percentage van het totaal aantal zooplankton organismen verzameld uit influent en effluent

Dag	influent aantal (%)	effluent (aantal (%))
3	4100 (36)	1000 (91)
17	3500 (86)	340 (38)
31	10000 (97)	890 (48)

27 en 21% van de raderdieren in respectievelijk het influent en effluent behoort tot het geslacht *Rotaria/Philodina* (gemiddelde van 3 metingen).

Op dag 9 en dag 45 zijn steekmonsters van de bovenste 10 cm van het filterbed genomen waarin de zooplankton organismen zijn gedetermineerd en geteld. De aanwezige dominante soorten komen over het algemeen overeen met de soorten die ook in het in- en effluent worden gevonden. Op basis van deze twee metingen lijkt er tussen dag 9 en dag 45 een afname van het aantal soorten en verschuiving in de dominante soorten te hebben plaatsgevonden. Opvallend is de toename van het aantal *Rotifera* van 1260 naar 5700 per 30 gram zand, mogelijk als gevolg van een groter aanbod in het influent (Tabel 4.5).

4.3.7 Studie naar vectorgedrag in een proeffilter

Om vast te stellen of de in het filterbed afgevangen oöcysten door predatie alsnog het effluent konden bereiken diende een zo groot mogelijke hoeveelheid zoöplankton in het effluent te worden afgefilterd, die onmiddellijk moest worden afgedood om voortijdige fecale uitscheiding en uitspoeling van de oöcysten door het planktonnet te voorkomen. Om deze reden werden gedurende 4 weken na de doseerproef driemaal daags korte duur (5 minuten) monsters van 100 liter van het effluent gefiltreerd over een 30 µm- planktonnet en direct gefixeerd met glutaraaldehyde. Ter verhoging van de detectiekans werden tevens 24-uurs zoöplanktonmonsters (30 µm) genomen die op dezelfde wijze werden gefixeerd. De afzonderlijke korte duur- en 24-uurs concentraten van een week werden samengevoegd tot twee verzamelmonsters van zoöplankton van respectievelijk ca. 1,5 m³ en ruim 100 m³.

De zoöplankton monsters zijn onderzocht op de aanwezigheid van vrij gesuspendeerde oöcysten en vervolgens na een voorbehandeling met hoge energetische sonificatie, HES (Bichai e.a., 2010) onderzocht op oöcysten opgenomen door zoöplankton. De HES behandeling is bedoeld om het zoöplankton in de monsters te desintegreren. De recovery van de analyse bepaald met colorseed was over het algemeen laag, gemiddeld 8% (0,0 – 24%).

Tabel 4.6. Aantal oöcysten in de zooplankton monsters verzameld uit het effluent

Treatment:	5 min. monsters (n/m ³) zooplankton uit ca. 1.5 m ³		24-uur monsters (n/m ³) zooplankton uit ca. 100 m ³	
	Geen HES	HES	Geen HES	HES
dag 4 – 10	< 6,2	< 0,11	< 9,7	< 0,32
dag 11 – 17	< 68	< 0,04	< 67	< 0,46
dag 18 – 24	< 2,8	-	< 8,5	0,06
dag 25 – 31	< 6,8	< 0,11	< 67	< 0,95

Uit de resultaten is gebleken dat in de zoöplankton concentraten geen vrije oöcysten konden worden aangetoond (Tabel 4.6) en slechts in één van de 24-uurs monsters (periode dag 18-24) één opgenomen oöcyst is gevonden. Na correctie voor de recovery betekent dat er 7 oöcysten zijn gevonden in het zoöplankton met een grootte van > 30 µm geïsoleerd uit totaal ca. 400 m³ effluent over de gehele periode van 30 dagen. Uit onderzoek in zandmonsters van het proeffilter bleek dat het aantal vrije oöcysten tussen dag 9 en dag 49 duidelijk afnam en het aantal opgenomen oöcysten toenam (Tabel 4.7). Dit is een bevestiging van eerder onderzoek (Hijnen e.a., 2007).

Tabel 4.7. Het aantal vrije en opgenomen oöcysten per gram zand bemonsterd op twee momenten tijdens het onderzoek (mengmonsters van twee afzonderlijke monsters genomen op twee locaties in het filter bed)

Time (dagen)	Zand monster	Zooplankton monster uit zand	
	Geen HES	Geen HES	HES
	Oöcysten n/g (vrij)	oöcysten n/g (vrij)	oöcysten n/g (gebonden)
9	458 (314) ^a	0,45	0,75
49	11	<0,41	2,6

^a na 1 week in de koeling en een week bij 15°C

4.3.8 Toegevoegd doorslagrisico van opgenomen oöcysten

In het filter vindt een sterke afname plaats van het aantal oöcysten dat in de bovenste 10 cm van het filter is geaccumuleerd. Dit wordt zeer waarschijnlijk veroorzaakt door predatie zoals blijkt uit de waargenomen toename van het door zoöplankton ingeslikte oöcysten (Tabel 4.7). Uit de gegevens van dit onderzoek (Tabel 4.6) blijkt dat het vectorgedrag van het zooplankton niet alleen bij actieve koolfiltratie optreedt maar ook bij langzame zandfiltratie. Uit het predatie experiment op labschaal en de doseerproefgegevens kan worden geschat of en in welke mate dit vectorgedrag de DEC van langzame zandfiltratie voor *Cryptosporidium* betekenisvol verlaagt.

Een *worstcase* benadering is gevolgd door te stellen dat in de 30 dagen van het onderzoek een doorslag van 2.0×10^4 opgenomen oöcysten mogelijk is als 5% van de raderdieren (*Rotaria/Philodina*) in het influent 3 oöcysten eten en hiervan 10% het filterbed passeert (1 log zoöplankton verwijdering). Hierdoor neemt de DEC van het langzame zandfilter voor vrije oöcysten af van 4,3 tot 4,2 log. De gemeten doorslag in het proeffilter was echter veel lager. In de 5-min. en 24-uurs zoöplankton monsters zou volgens bovenstaande benadering respectievelijk 143 en 9500 opgenomen oöcysten moeten zitten. Dit verschil kan zijn veroorzaakt (i) doordat de *worstcase* aannames te *worstcase* waren of (ii) doordat de proeffilter gegevens de werkelijkheid niet goed beschreven (lage recovery en/of 'uitscheiding' tijdens monsterneming).

Evenals in het voorgaande doseerexperiment blijkt dat de eliminatiecapaciteit van langzame zandfilters voor niet gebonden oöcysten met 4,3 logeenheden verwijdering zeer hoog is, ondanks grover zand en een hogere filtratiesnelheid. Het proces van door zoöplankton gefaciliteerd transport van oöcysten door het filterbed vindt inderdaad plaats, maar het toegevoegde doorslagrisico van deze opgenomen *Cryptosporidium* oöcysten aan het doorslagrisico van de vrije *Cryptosporidium* oöcysten bij deze filters is zeer klein.

5 Discussie, conclusies en aanbevelingen

5.1 Projectdefinitie: doelstelling, resultaten en hypothesen

In de projectdefinitie die in 2010 met de bedrijven en het RIVM is vastgesteld zijn de volgende doelstellingen, projectresultaten en hypothesen beschreven:

Doelstellingen

Het verifiëren, valideren en verbeteren van het RIVM procesmodel (Schijven e.a., 2008b) om de effectiviteit van langzame zandfilters op praktijkschaal te kunnen bepalen en te bewaken door het bepalen van de invloed van temperatuur en filtratiesnelheid (eventueel aangevuld met pH) op de effectiviteit van langzame zandfiltratie op twee praktijklocaties (Weesperkarspel, de Punt; eventueel Dunea) om enterovirussen, *Campylobacter* bacteriën en *Cryptosporidium/Giardia* te elimineren. Een kwantitatief beeld van het optreden van predatie door zooplankton en de invloed hiervan op de afname in het filterbed en de mogelijke doorslag naar het filtraat.

Projectresultaten

- Kwantitatieve informatie over de invloed van temperatuur, filtratiesnelheid en pH op de effectiviteit van langzame zandfiltratie om micro-organismen te verwijderen die gebruikt wordt bij het procesmodel dat door het RIVM wordt opgesteld;
- Een beeld van de invloed van predatie door hogere organismen op de verwijdering en/of doorbraak van micro-organismen door langzaam zandfiltratie.

Hypothese 1

Het RIVM procesmodel voorspelt het effect van filtratiesnelheid, watertemperatuur en pH op de effectiviteit van langzame zandfiltratie met een marge van 20%.

Hypothese 2

Predatie levert bij hogere temperatuur een significante bijdrage aan de verwijdering van virussen, bacteriën en protozoa in langzame zandfilters.

Hypothese 3

Predatie levert door vectorgedrag een statistisch significante verhoging van de concentratie (oo)cysten in het effluent van de langzame zand filters.

De toetsing van hypothese 1 vervalt voor het pH effect en de foutenmarge van het procesmodel is beschreven in hoofdstuk 3 met de Bland-Altman plot. Hypothese 2 kan niet hard worden gemaakt omdat er geen onderzoek naar is uitgevoerd. Op basis van het grote temperatuureffect is er een grote rol voor de biologie in het verwijderingsproces en de discussie in paragraaf 4.1 maakt aannemelijk dat predatie daar een rol in speelt. En hypothese 3 wordt verworpen: het vectorgedrag blijkt nauwelijks op te treden, waarmee een verhoging van het risico door doorslag van opgenomen oöcysten niet kan worden aanvaard.

5.2 Procesmodel om verwijdering van bacteriën en virussen te voorspellen

In hoofdstuk 3 wordt het verbeterde procesmodel beschreven om de verwijdering van bacteriën, virussen en protozoën door de langzame zandfilters van de waterbedrijven te kunnen voorspellen. Deze kwantitatieve kennis is nodig voor het uitvoeren van de verplichte Analyse Microbiologische Veiligheid Drinkwater (AMVD). Omdat het meten van de verwijdering van natuurlijke indicatorbacteriën en bacteriofagen op de verschillende locaties geen betrouwbaar beeld geeft van de lokale effectiviteit (concentraties zijn te laag) is er voor gekozen de AMVD voor deze bedrijven uit te breiden met een procesmodel voor dit proces.

Basis voor de validatie van het ontwikkelde model waren resultaten van doseerexperimenten met *E. coli* en MS2 bacteriofagen met proeffilters bedreven onder de procescondities die op de verschillende locaties heersen. Deze aanpak is gekozen omdat:

- eerder onderzoek heeft aangetoond dat deze doseerproeven de eliminatiecapaciteit van filters goed beschrijven (Hijnen e.a., 2004);
- de verwijdering locatiespecifiek bepaald moet worden;
- *E. coli* een goede procesindicator is voor de verwijdering van *Campylobacter* als één van de indexpathogenen in de AMVD;
- MS2 kan worden beschouwd als een goede procesindicator voor de verwijdering van virussen door zandfiltratie.

De wijze waarop het procesmodel is verbeterd en gevalideerd staat beschreven in Bijlage 2. Tevens is een gevoeligheidsanalyse uitgevoerd op de volgende belangrijke procescondities: temperatuur, korrelgrootte, leeftijd van de Schmutzdecke en de filtratiesnelheid. Hieruit bleek dat de voorspelling van het huidige model met de geschatte procesparameters (f_1 , f_0 en α) het meest gevoelig is voor de temperatuur, gevolgd door de Schmutzdecke leeftijd en redelijk ongevoelig is voor de filtratiesnelheid binnen het toegepaste bereik. De grote invloed van de temperatuur kan niet uit de colloid filtratie theorie worden verklaard en heeft dus een biologische oorsprong zoals ook besproken in paragraaf 4.1.

Wat ontbreekt is een analyse van de gevoeligheid van andere procesfactoren als beddikte en waterkwaliteit om vast te kunnen stellen in welke mate deze factoren de eliminatiecapaciteit beïnvloeden. Doordat het procesmodel een deel van deze parameters impliciet meeneemt in de berekeningen, worden deze per locatie automatisch meegenomen in de voorspelling van de verwijdering.

5.3 Modelaanname en variabiliteit van de belangrijkste procesconstanten

Rol van de Schmutzdecke en het volledige filterbed

Bij de ontwikkeling van het model is een belangrijke aanname gedaan: bij afwezigheid van een Schmutzdecke wordt de verwijdering volledig toegeschreven aan hechting (hoofdstuk 3, Bijlage 2). Onder condities bij lage temperaturen is dat aannemelijk maar bij hogere temperaturen gaat deze simplificatie voorbij aan het temperatuureffect en de bijdrage van biologische processen als predatie en proteolytische activiteit in het volledige filterbed. Het relatieve snelle herstel van de eliminatiecapaciteit (binnen 53 dagen) en de soms hoge leeftijden van de Schmutzdecke van een jaar tot meerdere jaren vormt een sterke aanwijzing dat de biologische processen waaronder predatie nog volop aanwezig zijn in een filter zonder Schmutzdecke.

Variabiliteit van de sticking efficiency

Een belangrijke waarneming die uit de modelontwikkeling komt is de variabiliteit van de sticking efficiency α voor de combinatie micro-organisme en filterbed. Dat betekent dat het gebruik van het model afhangt van de beschikbaarheid van een locatie specifieke α -waarde voor de verschillende micro-organismen. Hechting is echter niet het enige mechanisme dat de mate van verwijdering bepaald; ook de biologische activiteit (predatie, proteolytische activiteit) en straining afhankelijk van de bedweerstand dragen bij aan de verwijdering. En dat geldt niet alleen voor de Schmutzdecke maar ook voor de rest van het filterbed. Het is dan ook niet duidelijk in hoeverre de α alleen een hechtingsparameter is, of ook wordt beïnvloed door andere verwijderingsmechanismen. Bovendien wordt in bijlage 2 en ook in paragraaf 3.5 over de verwijdering van *Cryptosporidium*, sterk ingezoomd op verschillen in α -waarden van verschillende stammen van hetzelfde micro-organisme. Er worden inderdaad dergelijke verschillen in de literatuur beschreven. Maar de verschillen in α -waarden genoemd voor *Cryptosporidium* in bijvoorbeeld het onderzoek van Hijnen e.a. (2005) zijn niet veroorzaakt door een verschil in eigenschappen van de oöcysten maar door het verschil in eigenschappen van de bodemsoorten. De conclusie dat het verschil in α -waarde tussen Leiduin en Weesperkarspel is veroorzaakt door het verschil in oöcysten herkomst (herten of runderen) is dan ook moeilijk hard te maken. De α -waarde is uiteindelijk een procesparameter die aangeeft hoe goed een organisme hecht op basis van (i) de oppervlakte-eigenschappen van organismen én filtermaterialen en (ii) van de waterkwaliteit (pH en geleidbaarheid). Daarnaast wordt in paragraaf 3.5 aangenomen dat de schaalfactor f_0 en de snelheidscoëfficiënt f_1 ook toepasbaar zijn voor de *Cryptosporidium* gegevens. Toepassing van deze

waarden in het procesmodel op de eerdere gegevens van *Cryptosporidium* verwijdering bij Leiduin (Hijnen et al., 2007), geeft een lagere α -waarde voor deze combinatie van oöcysten – filtermateriaal van Leiduin van 0,06. Deze α -waarde is duidelijk lager dan de waarde van 0,207 berekend in de publicatie van 2007.

Variabiliteit van de schaalfactor en de snelheidscoëfficiënt

De verbetering van het procesmodel door de toevoeging van een logistische functie met de temperatuur en de Schmutzdecke leeftijd als twee belangrijke procesvariabelen heeft geleid tot de introductie van een schaalfactor f_0 en een snelheidscoëfficiënt f_1 . Uit het proces van optimaliseren van het procesmodel is naar voren gekomen dat voor beide procesindicatoren *E. coli* (WR1) en MS2 beide parameters voor alle onderzochte locaties hetzelfde zijn.

5.4 Verwijdering van *Cryptosporidium* en *Giardia*

In paragraaf 3.5 is in aanvulling op het procesmodel, dat is ontwikkeld op basis van de verwijdering van bacteriën en virussen, de verwijdering van *Cryptosporidium* door langzame zandfiltratie met het procesmodel berekend. Hierbij is uitgegaan van dezelfde f_0 - en f_1 -waarden als berekend voor *E. coli* en MS2 waarbij impliciet wordt aangenomen dat de verwijdering van *Cryptosporidium* in gelijke mate wordt beïnvloed door de temperatuur en leeftijd van de Schmutzdecke als de verwijdering van beide andere micro-organismen.

In Tabel 3.7 zijn deze modelberekeningen vermeld. Hierbij wordt op grond van de grote onzekerheid over de hechting van *Cryptosporidium* de laagste sticking efficiency (combinatie *Cryptosporidium* – Leiduin filter; $\alpha = 0,06$) gebruikt om de verwijdering van *Cryptosporidium* door de langzame zandfilters van Weesperkarspel te voorspellen. Hieruit komt een verwijdering van 2,1 log. De werkelijk waargenomen verwijdering berekenen onder de condities waarbij de doseerproef op die locatie is uitgevoerd (hoofdstuk 4) was 4,3 log (verschil tussen gemiddelde C_{in} en de maximale concentratie in het filtraat). Uit deze gemeten waarde wordt een sticking efficiency α berekend van 0,43. Conclusie hieruit is dat of het procesmodel met dezelfde waarden voor f_0 en f_1 onjuist is en/of de gekozen α -waarde van 0,06 veel te laag is.

Cryptosporidium verwijdering in Groningen

In het verloop van het onderzoek is in gezamenlijk overleg met alle partners besloten om de doseerproef te Groningen achterwege te laten met als argument dat de proef in Weesperkarspel voldoende zekerheid bood voor een goede verwijdering op de locatie Groningen. In paragraaf 3.5 is de verwijdering van *Cryptosporidium* door de langzame zandfilters van Groningen bepaald met de sticking efficiency bepaald in Leiduin en is op basis van de vergelijking van α -waarden voor *E. coli* en MS2 bij de diverse locaties deze α -waarde nog eens met een factor 2,2 verlaagd voor de locatie Groningen. Dit levert bij een watertemperatuur van 16,8°C een verwijdering van 1,8 log op en bij een temperatuur van 4°C een verwijdering van <1,0 log. Op grond van de bovenstaande constatering over de verwijdering van *Cryptosporidium* in Weesperkarspel wordt deze benadering als te conservatief beschouwd. Wanneer de α -waarde bepaald voor de *Cryptosporidium* – Weesperkarspel filter combinatie wordt gehanteerd van 0,43 en deze wordt ook gecorrigeerd met een factor van 2,2 voor het verschil in α -waarden tussen de locaties, dan wordt voor de temperaturen 16,8 en 4°C een verwijdering van 6,5 en 4,1 log berekend voor de filters van Groningen. Conclusie hieruit is dat de in hoofdstuk 3 geschatte verwijdering voor deze filters te conservatief is. Aanvullend kan nog worden gesteld dat het aannemelijk is dat de oöcysten in het ruwe water van de Punt eerder van runderen afkomstig zijn dan van herten.

Giardia verwijdering

In paragraaf 3.6 wordt gesteld dat *Giardia* cysten tenminste evengoed worden verwijderd als de oöcysten van *Cryptosporidium*.

5.5 Meer onderzoek nodig?

Tot slot is een belangrijke vraag of het onderzoek beschreven in dit rapport alle vragen voldoende heeft beantwoord en daarmee aanvullend onderzoek niet meer nodig is. Gebaseerd op de doelstellingen van

het onderzoek en de gepresenteerde resultaten kan worden geconcludeerd dat er een gevalideerd en verbeterd procesmodel is waarmee de verwijdering van bacteriën en virussen op een goede manier kan worden voorspeld, rekening houdend met variaties in water temperatuur, korrelgrootte, leeftijd van de Schmutzdecke en filtratiesnelheid. Het model kan eveneens worden toegepast om de verwijdering van *Cryptosporidium* en *Giardia* te schatten.

In paragraaf 3.6 wordt ingegaan op de vraag of aanvullend onderzoek nodig is. Genoemd worden aspecten als de invloed van ijzer-hydroxides en de waterkwaliteit in relatie tot verstopping/bedweerstand/schraapfrequentie en pH. Het huidige procesmodel is ontwikkeld en gevalideerd op basis van proeven met pilot plant filters bedreven onder de praktijkcondities van de betrokken bedrijven. Binnen de bandbreedte van de hierbij geïntroduceerde verschillen in korreldiameter, filtratiesnelheid, temperatuur, Schmutzdecke leeftijden en bedweerstand is met het model en de specifieke procesparameter de gemiddelde verwijdering van bacteriën en virussen door de langzame zandfilters te voorspellen. Wanneer er in de toekomst geen grote aanpassingen in deze procescondities te verwachten zijn die buiten de bandbreedte vallen van het huidige onderzoek, is er geen aanleiding om verder onderzoek naar deze aspecten uit te voeren.

Er wordt ook meer onderzoek voorgesteld naar de onzekerheden rond de verwijdering van *Cryptosporidium*. Dit discussiepunt kan worden onderzocht door de specifieke α -waarde voor de relatie *Cryptosporidium* oöcysten - zand van de verschillende langzame zandfilters (Leiduin, Weesperkarspel, Groningen) te bepalen in een laboratorium kolomproef. De implementatie van het model in de AMVD en QMRAspot is een punt van aandacht. Dat vormt onderdeel van het huidige BTO onderzoeksprogramma in het Thema Hygiëne en Veiligheid. Hierbij kan worden gedacht aan verdere uitbreiding van het AMVD model om te kunnen rekenen met tijdreeksen van procescondities.

In hoofdstuk 4 wordt aangetoond dat predatie en biologische activiteit in het filterbed een belangrijke rol speelt bij de eliminatie van micro-organismen. In het huidige procesmodel is dit verwijderingsmechanisme impliciet meegenomen met de leeftijd van de Schmutzdecke en de temperatuur verwerkt in de aanvullende logistische functie van het model. Aanvullend onderzoek naar de kwantitatieve bijdrage van predatie aan de verwijdering zou kunnen leiden tot het meer expliciet meenemen van dit onderdeel van het proces in het model. Dit zal naar verwachting het inzicht in de rol van predatie vergroten en ook daarmee de invloed van ingrepen in de bedrijfsvoering van de filters op de verwijdering. Het risico van predatie en de doorbraak van persistente ziekteverwekkers als *Cryptosporidium* en *Giardia* wordt op basis van de metingen in hoofdstuk 4 als verwaarloosbaar ingeschat.

5.6 Algemene conclusie en restvragen van de bedrijven

Algemeen conclusie van het onderzoek is dat er voldoende vorderingen zijn gemaakt met het modelleren van de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie. Er is een geschikt en gevalideerd procesmodel aanwezig waarmee de verwijdering kan worden voorspeld onder variabele procescondities die in de praktijk voorkomen. Behoeft aan aanvullend onderzoek op het gebied van het proces is beperkt, maar kan per bedrijf verschillen.

De verwachting van Waternet was dat het meer een mechanistisch model zou worden. Met het huidige beschrijvende model ontstaat de mogelijkheid dat uitgangspunten niet goed gekozen zijn, waardoor met de verkregen uitkomsten verkeerde keuzen gemaakt kunnen worden. Tevens wordt door Waternet aandacht gevraagd voor het mogelijk maken van het rekenen met tijdreeksen van procescondities. Voor Groningen wordt de implementatie van het procesmodel in de AMVD van de bedrijven als hoogste prioriteit gezien en bestaat de wens dit binnen het BTO onderzoeksprogramma dan ook als prioritair onderwerp aan te pakken.

6 Literatuur

- Bichai, F., Barbeau, B., Dullemont Y. and Hijnen W. (2010) Role of predation by zooplankton in transport and fate of protozoan (oo)cysts in granular activated carbon filtration, *Water Research*, Vol. 44, pp. 1072-1081.
- Burman, N.P. and Lewin, J. (1961) Microbiological and operational investigation of relative effects of skimming and in situ sand washing on two experimental slow sand filters. *J. Inst. Water Eng.* 15, 355-367.
- Bolster, C.H.; Cook, K.Y.L.; Marcus, I.N.M.; Haznedaroglu, B.; Walker, S.L. Correlating transport behavior with cell properties for eight porcine *Escherichia coli* isolates. *Env. Sci. Tech.* **2010**, *44*, 5008-514.
- Dullemont, Y., A. Visser, J. Schijven and W. Hijnen (2004). Eliminatiecapaciteit van langzame zandfiltratie voor micro-organismen bepaald met doseerproeven. *H2O*, 13: 26-28.
- Dullemont, Y., J. Schijven, W. Hijnen, M. Colin, A. Magic-Knezev and W. Oorthuizen (2006) Removal of microorganisms by slow sand filtration. In 'Recent Progress in Slow Sand and Alternative Biofiltration Processes', ed. R. Gimbel, N.J.D. Graham and M.R. Collins, IWA publishing, Cornwall, UK.
- Dullemont, Y., M. Rosielle, A. Brouwer-Hanzens and W. Hijnen (2012). Vormt predatie in langzame zandfiltratie een risico voor doorslag van *Cryptosporidium*? *H2O*, 45(5): 29-31.
- Eisenmann, H., Harms, H., Meckenstock, R., Meyer, E.I. and Zehnder, A.J. (1998) Grazing of *Tetrahymena* sp. on adhered bacteria in percolated columns monitored by in situ hybridization with fluorescent oligonucleotide probes. *Appl Environ Microbiol* 64(4), 1264-1269.
- Elliott, M.A., Digiano, F.A. and Sobsey, M.D. (2011) Virus attenuation by microbial mechanisms during the idle time of a household slow sand filter. *Water Res* 45(14), 4092-4102.
- Foppen, J.W.F.; Lutterodt, G.; Röling, W.F.M.; Uhlenbrook, S. Towards understanding inter-strain attachment variations of *Escherichia coli* during transport in saturated quartz sand. *Wat. Res.* **2010**, *44*(4):1202-1212.
- Gyles, E., Lilley, S., Collins, M.R. and Kinner, N.E. (2008) Assessing the role of protists in removing *E. coli* in slow sand filters, pp. 1449-1462, AWWA, American Water Works Association.
- Hijnen, W., J. Schijven, P. Bonné, A. Visser and G. Medema 2004. Elimination of viruses, bacteria and protozoan oocysts by slow sand filtration. *Wat. Sci. Technol.* 50(1), 147-154.
- Hijnen, W.A.M., Brouwer-Hanzens, A.J., Charles, K. and Medema, G.J. (2005) Transport of MS2 phage, *Escherichia coli*, *Clostridium perfringens*, *Cryptosporidium parvum* and *Giardia intestinalis* in a gravel and a sandy soil. *Environ. Sci. Technol.* 39, 7860-7868.
- Hijnen, W., Y. Dullemont, J. Schijven, A. Hanzens-Brouwer, M. Rosielle and G. Medema (2007) Removal and fate of *Cryptosporidium parvum*, *Clostridium perfringens* and small-sized centric diatoms (*Stephanodiscus hantzschii*) in slow sand filters, *Water Research* 41, 2151-2162.
- Hijnen, W.A.M., Suylen, G.M.H., Bahlman, J.A., Brouwer-Hanzens, A.J. and Medema, G.J. (2010) GAC adsorption filters as barriers for viruses, bacteria and protozoan (oo)cysts in water treatment. *Water Res.* 44(1224-1234).
- Kinner, N.E., Harvey, R.W., Blakeslee, K., Novarino, G. and Meeker, L.D. (1998) Size-selective predation on groundwater bacteria by nanoflagellates in an organic-contaminated aquifer. *Appl Environ Microbiol* 64(2), 618-625.
- Lloyd, B. (1973) The construction of a sand profile sampler: its use in the study of the Vorticella populations and the general interstitial microfauna of slow sand filters. *Water Research* 7, 963-973.
- Lutterodt, G.; Basnet, M.; Foppen, J.W.A.; Uhlenbrook, S. The effect of surface characteristics on the transport of multiple *Escherichia coli* isolates in large scale columns of quartz sand. *Wat. Res.* **2009**, *43*(3) 595-604.
- Park, Y., Atwill, E.R., Hou, L., Packman, A.I. and Harter, T. (2012) Deposition of *Cryptosporidium parvum* oocysts in porous media: a synthesis of attachment efficiencies measured under varying environmental conditions. *Environ Sci Technol* 46(17), 9491-9500.
- Peters, F. (1994) Prediction of planktonic protistan grazing rates. *Limnol. Oceanogr.* 39(1), 195-206.

- Pinheiro, M.D., Power, M.E., Butler, B.J., Dayeh, V.R., Slawson, R., Lee, L.E., Lynn, D.H. and Bols, N.C. (2007) Use of *Tetrahymena thermophila* to study the role of protozoa in inactivation of viruses in water. *Appl Environ Microbiol* 73(2), 643-649.
- Poynter, S.F.B. and Slade, J.S. (1977) The removal of viruses by slow sand filtration. *Prog. Water Technol.* 9, 75-88.
- Rietveld, L.C., van der Helm, A.W.C., van Schagen, K.M., van der Aa, L.T.J. (2010). Good modelling practice in drinking water treatment, applied to Weesperkarspel plant of Waternet. *Environ. Model. Softw.*, 25(5), 661-669.
- Schijven, J.F., Colin, M., Dullemont, Y., Hijnen, W.A.M., Magic-Knezev, A., Oorthuizen, W., Rutjes, S.A. and De Roda Husman, A.M. (2008a) Effect filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie, RIVM, Bilthoven, the Netherlands, RIVM report 330204001/2008.
- Schijven, J.F., Colin, M., Dullemont, Y., Hijnen, W.A.M., Magic-Knezev, A., Oorthuizen, W., Wubbels, G., Rutjes, S.A. and De Roda Husman, A.M. (2008b) Effect filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie, RIVM, Bilthoven, the Netherlands, RIVM report 330204002/2008.
- Schijven, J.F., Teunis, P., Rutjes, S., de Roda Husman, A.M., (2011) QMRASpot: A computational user-friendly interactive tool for quantitative microbial risk assessment from surface water to drinking water. *Water Research* 45, 5564-5576.
- Schijven, J.F., van den Berg, H.H.J.L., Colin, M., Dullemont, Y., Hijnen, W.A.M., Magic-Knezev, A., Oorthuizen, W.A. and Wubbels, G. (2013) A mathematical model for removal of human pathogenic viruses and bacteria by slow sand filtration under variable operational conditions. *Water Research*, 47: 2592-2602.
- Sibille, I., T. Sime-Ngando, L. Mathieu and J.C. Block, 1988, Protozoan bacterivory *Escherichia Coli* survival in drinking water distribution systems. *Applied and Environmental Microbiology*. Vol. 64, no.1, pp 197-202.
- Stott, R., E. May, E. Ramirez and A. Warren. 2003, Predation of *Cryptosporidium* oocysts by protozoa and rotifers: implications for water quality and public health. *Water Science & Technology*. Vol. 47, no.3, pp 77-83.
- Tufenkji N, Elimelech M. 2004. Deviation from the classical colloid filtration theory in the presence of repulsive DLVO Interactions. *Langmuir*, 20:10818-10828.
- Unger, M. and Collins, M.R. (2006) Assessing the role of the Schmutzdecke in pathogen removal in riverbank and slow sand filtration. In 'Recent progress in slow sand and alternative biofiltration processes' ed. R. Gimbel, N.J.D. Graham and M.R. Collins, IWA publishing, Cornwall, UK.
- Van der Helm, A.W.C. and Rietveld, L.C. (2002). Modelling of drinking water treatment processes within the Stimela environment. *Water Sci. Technol.: Water Supply*, 2(1), 87-93.
- Visser, A., W. Hijnen, Y. Dullemont and G. Medema (2004). Langzame zandfilters als effectieve barrières voor microorganismen. *H2O*, 12: 28-30.
- Walker, S.C. and Toth, T.E. (2000) Proteolytic inactivation of simian-11 rotavirus: a pilot study. *Veterinary Microbiology* 74, 195-206.
- Weber-Shirk, M. and Dick, R.I. (1997) Biological mechanisms in slow sand filters. *Journ. AWWA* 89, 72-83.
- Wetsteyn, F.J. (2005) Analyse microbiologische veiligheid drinkwater, VROM-Inspectoraat, Haarlem NL.
- Yao, K.M., Habibia, M. and O'Melia, C.R. (1971) Water and wastewater filtration: concepts and applications. *Environ. Sci. Technol.* 5, 1105-1112.

Bijlage 1: H2O verslag workshop langzame zandfiltratie

Workshop over langzame zandfiltratie als veiligheidsbarrière

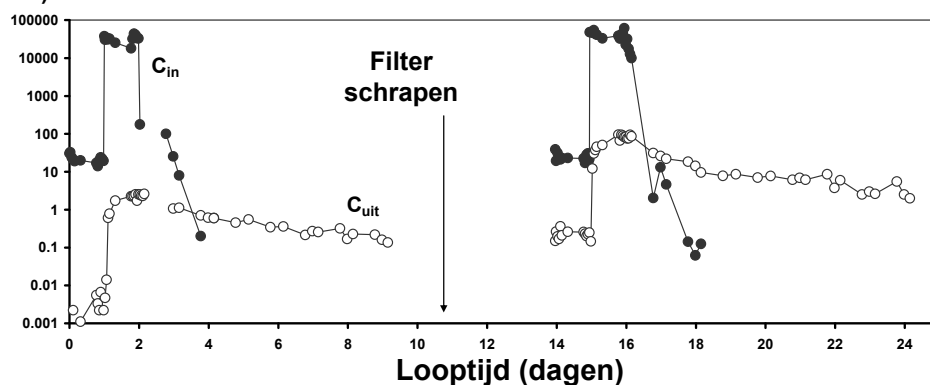
Langzame zandfiltratie in de integrale zuivering biedt een effectieve (micro)biologische veiligheidsbarrière is tegen lage kosten. Dat was één van de conclusies van de BTO-workshop “Langzame zandfiltratie als veiligheidsbarrière” van 25 oktober 2006, tien jaar na de vorige workshop in 1996. De dertig aanwezigen bespraken onder voorzitterschap van Rob Visser (DZH) de stand van de kennis over het proces als barrière voor ziekteverwekkende micro-organismen, deeltjes en AOC en wisselden bedrijfservaringen met kwantitatieve microbiologische risicoanalyse en langzame zandfilters uit. Onderzoek toont aan dat langzame zandfiltratie virussen, *Campylobacter* bacteriën, *Cryptosporidium* en *Giardia* gemiddeld met respectievelijk 2, 3 en 5 log verwijderd. Deze gegevens vergroten de betrouwbaarheid van de kwantitatieve microbiologische risicoanalyse bij de betrokken bedrijven. Langzame zandfiltratie is een robuust proces met lage kosten, ook voor verwijdering van deeltjes en AOC. Samen formuleerden de aanwezigen welk verder onderzoek naar langzame zandfiltratie gewenst is.

Veiligheidsbarrière voor ziekteverwekkende micro-organismen

Het aspect van veiligheidsbarrière voor ziekteverwekkers werd ingeleid door Yolanda Dullemont (Waternet). Zij heeft de door de wet voorgeschreven kwantitatieve risicoanalyse bij Waternet uitgevoerd. Deze leidde tot de voorlopige conclusie dat de zuivering te Weesperkarspel (Tabel 1) microbiologisch veilig is, maar dat aanvullend onderzoek naar de verwijdering door langzame zandfiltratie gewenst is. Belangrijke vragen hierbij waren: met welke capaciteit worden virussen, *Campylobacter* en de (oö)cysten van *Cryptosporidium* en *Giardia* verwijderd, welke invloed hebben de temperatuur en schrapen hierop en zijn *E. coli*, sporen van sulfiet-reducerende clostridia (SSRC) en centrische diatomeeën (CD) goede surrogaatparameters?

In een periode van vijf jaar is door Waternet, DZH, RIVM, HWL en Kiwa Water Research (KWR) onderzoek gedaan om deze vragen te beantwoorden, aldus Wim Hijnen (KWR). Met resultaten uit praktijkmetingen, doseerproeven aan kolommen en proeffilters (Fig. 1) en literatuuronderzoek werd de Decimale Eliminatie Capaciteit (DEC) van het proces voor virussen, bacteriën en *Cryptosporidium* en *Giardia* bepaald (Tabel 2). De watertemperatuur en de aanwezigheid van een actieve Schmutzdecke zijn van doorslaggevende invloed op de verwijdering (Fig. 2). Dit wijst op een belangrijke rol van de (hogere) biologie, bijvoorbeeld predatie door zooplankton dat ook werd gezien als de oorzaak van een relatief snelle afname van oöcysten van *Cryptosporidium* in een filterbed na een doseerproef. Verder bleek dat *E. coli* een veilige surrogaatparameter voor *Campylobacter* bacteriën is, maar dat SSRC en CD niet geschikt zijn als surrogaatparameter voor de protozoa.

Concentratie *E. coli*
(N/ml)



Figuur 1. Doorbraakcurven van *E. coli* bij de doseerproeven

Tabel 1. Gegevens van de voorlopige risicoanalyse Weesperkarspel 2006: de decimale eliminatie capaciteit van de processen en totale zuivering (log) en het jaarlijks infectierisico voor de diverse ziekteverwekkende micro-organismen

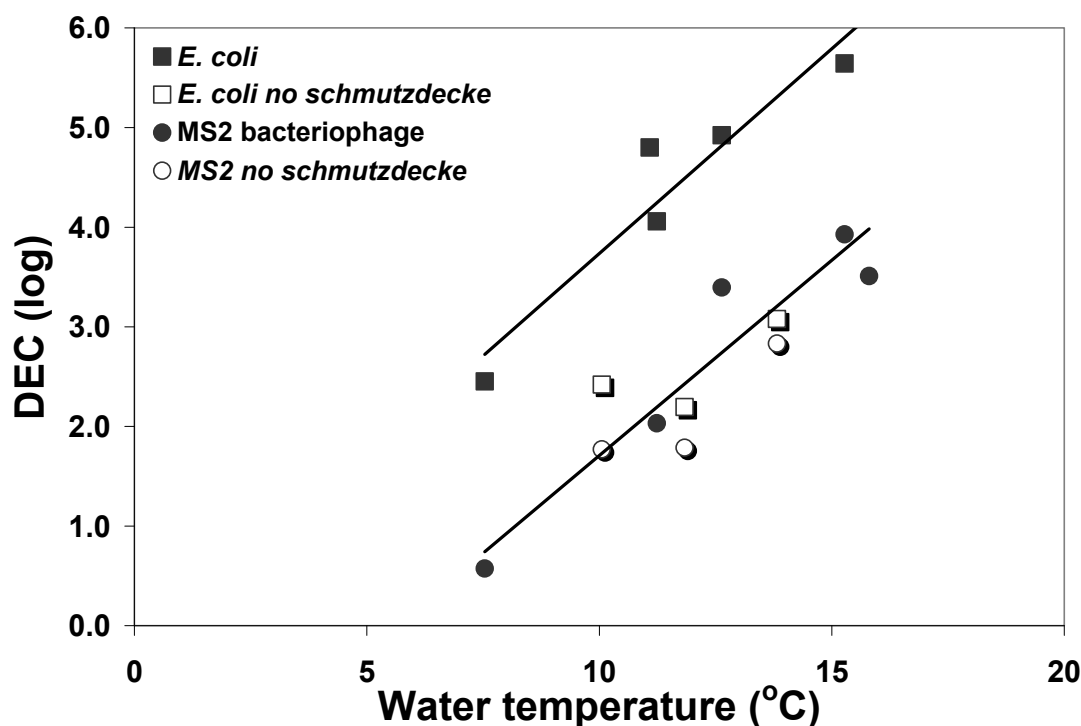
Ziekteverwekker: Surrogaat:	Virussen *bacteriofagen	<i>Campylobacter</i>	<i>Cryptosporidium</i> / <i>Giardia</i> (*SSRC)
Snelfiltratie	(0)	1,1	1,4*
Ozonisatie	1,1 – 3,4	3,9	0,3*
Koolfiltratie	(0)	(0)	1,2*
Langzame zandfiltratie	(0,6)	3,9	3,0 (aanname)
Zuivering DEC	1,1 – 3,4	8,9	5,9
Infectierisico jaarlijks ^a	<1,3x10 ⁻⁴ – <4,3x10 ⁻⁷	1,6x10 ⁻⁶	2,6x10 ⁻⁵ /4,8x10 ⁻⁷

^a vereist < 10⁻⁴

Tabel 2. DEC van langzame zandfiltratie voor virussen, bacteriën en *Cryptosporidium*/*Giardia* op basis van onderzoeksgegevens van afgelopen 5 jaar en literatuurgegevens

	Studies	Gemiddelde DEC (log)	Range (log)
Virussen	10	2,2	0,6 ^a – 4,0
Bacteriën	9	2,7	1,2 – 4,8
<i>Cryptosporidium</i> (<i>Giardia</i>)	5	4,9	2,7 – >6,5

^a suboptimale omstandigheden



Figuur 2. Verband tussen de DEC van een proeffilter, bepaald voor gedoseerde *E. coli* en MS2-bacteriophagen, surrogaatparameters voor respectievelijk *Campylobacter* en virussen, voor en na schrappen van het filteroppervlak, en watertemperatuur

De processen die de verwijdering bepalen zijn zeefwerking, hechting en overleving (afsterving en predatie). Jack Schijven (RIVM) presenteerde de waarden van de belangrijkste procesconstante, de hechttingsparameter $k_{\text{attachment}}$ voor virus- en bacterieverwijdering die zijn berekend uit de gegevens van het proefinstallatieonderzoek. Uit de resultaten van aanvullende kolomproeven bleek dat zeping voor bacteriën en protozoa ook een significante rol speelt bij de verwijdering. Met het model kan worden voorspeld wat bijvoorbeeld het effect is van de filtratiesnelheid op de verwijdering. Deze voorspelling

kan in vervolgonderzoek worden gevalideerd. Het model kan derhalve een belangrijke rol spelen bij ontwerp, beheer en evaluatie van langzame zandfilters en een belangrijk onderdeel vormen voor de kwantitatieve microbiologische risicoschatting.

Veiligheidsbarrière voor vervuiling en nagroei bij opslag en transport

Langzame zandfiltratie is ook belangrijk voor de biologische stabiliteit van het drinkwater, aldus *Dick van der Kooij* (KWR). Hij belichtte de ontwikkelingen op het gebied van de karakterisering van de biologische stabiliteit van water. Laatste ontwikkeling op dit gebied is de Boiler Biofilm Monitor BBM) waarmee de *Legionella*-groeipotentie van drinkwater kan worden bepaald. Recent onderzoek heeft uitgewezen dat het water na langzame zandfiltratie toch nog een geringe *Legionella*-groeipotentie kan hebben. Het proces is dus geen absolute barrière voor groeibevorderende verbindingen. Een relatie met het gehalte en de stabiliteit van het natuurlijk organisch materiaal (NOM) in het aangevoerde water wordt verondersteld.

Naast verlaging van het AOC-gehalte neemt ook het aantal deeltjes in het water door langzame zandfiltratie af. Deze eigenschap vormt de aanleiding voor een nader onderzoek naar het gebruik van het proces als deeltjesbarrière bij de drinkwaterproductie uit grondwater, aldus *Joost Kappelhof* (KWR). Langzame zandfiltratie is een van de alternatieve processen die worden bekeken. Met name de filtratiesnelheid en de schraapfrequentie zijn belangrijke procesvariabelen die zullen bepalen of aan de belangrijkste voorwaarde van een kostprijs van <5 eurocent/m³ kan worden voldaan.

Praktijkervaringen

Wim Oorthuizen (DZH), *Fred van Schooten* (Waternet) en *Jantinus Bruins* (Waterlaboratorium Noord, voor Waterbedrijf Groningen) lichtten hun bedrijfservaringen met langzame zandfilters nader toe. Hun uiteenzettingen bevestigen het beeld van de voorgaande sprekers: het proces van langzame zandfiltratie verwijdert effectief micro-organismen en levert biologisch stabiel drinkwater op met een lage troebelheid. De aandachtspunten die bij deze verhalen naar voren kwamen waren de kwaliteit van het gebruikte filterzand, de invloed van hogere biologie en voorzuivering op de schraapfrequentie van een filter. Bij Waternet heeft de gunstige ervaringen met fijn zilverzand op het gebied van bedrijfsvoering en werking geleid tot vervanging van grover zand in een ander filter.

Conclusies over langzame zandfiltratie

De belangrijkste conclusie van de workshop was dat de kwantitatieve kennis van langzame zandfiltratie als veiligheidsbarrière voor ziekteverwekkers in de afgelopen tien jaar (bedrijfstak)onderzoek aanzienlijk is vergroot. De aanwezigen gaven aan behoefte te hebben aan nader onderzoek naar de invloeden van temperatuur, filtratiesnelheid (economie en risico's), Schmutzdecke en hogere biologie op de effectiviteit van het proces en naar een methode voor beoordeling van de werking in de praktijk. De aanwezigen vonden dat verbetering van de biologische kwaliteit van het drinkwater na langzame zandfiltratie vooral moet worden gezocht in betere voorzuivering en niet in veranderingen in het proces. Tot slot was de algemene opinie over de rol van langzame zandfiltratie in de integrale zuivering dat het een effectieve (micro)biologische veiligheidsbarrière is tegen lage kosten.

Wim Hijnen, Gertjan Medema (Kiwa WR),
Jack Schijven (RIVM),
Yolanda Dullemont (Waternet)

Bijlage 2 Development of the process model, Water Research

A mathematical model for removal of human pathogenic viruses and bacteria by slow sand filtration under variable operational conditions

Jack F. Schijven^{1*}, Harold H.J.L. van den Berg¹, Michel Colin², Yolanda Dullemont², Wim A.M. Hijnen³, Alexandra Magic-Knezev⁴, Wim A. Oorthuizen⁵, Gerhard Wubbels⁶

¹ National Institute for Public Health and the Environment, Expert Centre for Methodology and Information Services, PO Box 1, 3720 BA Bilthoven, The Netherlands

*Corresponding author: tel. +31 30 274 2994, fax +31 30 274 4434,

E-mail Jack.schijven@rivm.nl

² Waternet, Amsterdam, The Netherlands

³ KWR Watercycle Research Institute, Nieuwegein, The Netherlands

⁴ Het Waterlaboratorium, Haarlem, The Netherlands

⁵ DUNEA, The Hague, The Netherlands

⁶ WLN, The Netherlands

Abstract

Slow sand filtration (SSF) in drinking water production removes pathogenic microorganisms, but detection limits and variable operational conditions complicate assessment of removal efficiency. Therefore, a model was developed to predict removal of human pathogenic viruses and bacteria as a function of the operational conditions. Pilot plant experiments were conducted, in which bacteriophage MS2 and *E. coli* WR1 were seeded as model microorganisms for pathogenic viruses and bacteria onto the filters under various temperatures, flow rates, grain sizes and ages of the Schmutzdecke. Removal of MS2 was 0.082 – 3.3 log₁₀ and that of *E. coli* WR1 0.94 – 4.5 log₁₀ by attachment to the sand grains and additionally by processes in the Schmutzdecke. The contribution of the Schmutzdecke to the removal of MS2 and *E. coli* WR1 increased with its aging, with sticking efficiency and temperature, decreased with grain size, and was modelled as a logistic growth function with scale factor f_0 and rate coefficient f_1 . Sticking efficiencies were found to be microorganism and filter specific, but the values of f_0 and f_1 were independent of microorganism and filter. Cross-validation showed that the model can be used to predict log removal of MS2 and ECWR1 within ± 0.6 log. Within the range of operational conditions, the model shows that removal of microorganisms is most sensitive to changes in temperature and age of the Schmutzdecke.

Key words

Slow sand filtration model; bacteriophage MS2; *E. coli*

1. Introduction

Slow sand filtration (SSF) in drinking water treatment is effective in the removal of turbidity and (pathogenic) microorganisms. SSF performance depends on source water characteristics, temperature, and surface ripening. As a consequence of the biologically active Schmutzdecke, the filter cake that gradually develops on top of a filter, SSF is a biological as well as a physical process (Amy et al., 2006; Campos et al., 2002; Elliot et al., 2011; Taylor Eighmy et al, 1992; WHO, 2011). SSF is utilized under a variety of conditions and scales ranging from household level to the large scale at a drinking water production plant (WHO, 2011).

In line with the WHO Guidelines (2011), the Dutch Drinking Water Act (Anonymous, 2001) requires a quantitative microbial risk assessment (QMRA) to demonstrate compliance with an infection risk of less than one infection per 10 000 individuals per year. Dutch drinking water suppliers must conduct a QMRA at least every three years for the so-called index pathogens: enterovirus, *Campylobacter*, *Cryptosporidium* and *Giardia*. This requires monitoring of the source water for the index pathogens, and monitoring of the associated indicator microorganisms (bacteriophages, *E. coli* and spores of sulphite reducing clostridia) in both the influents and effluents of all drinking water treatment steps to assess removal efficiencies (Anonymous, 2005). In order to collect raw data in the proper format and to automate the process of QMRA, an interactive user-friendly computational tool, QMRAspot, is used (Schijven et al., 2011).

In the Netherlands, there are fourteen locations where surface water is used for drinking water production. At six of these locations, SSF is applied as a final drinking water treatment step, therefore, concentrations of indicator organisms are commonly below detection limits in the influent and even more in the effluent, resulting in uncertain estimates of removal by SSF (Dullemont et al., 2006, Hijnen et al., 2004, 2007). The removal efficiency of SSF is subject to variable operational conditions, such as the presence, thickness and biological activity of a Schmutzdecke and temperature. In practice, a few centimeters of the Schmutzdecke are regularly scraped off, when filter bed resistance becomes too high. For indoors operated slow sand filters, this may be needed every few months to every few years dependent on the location, the quality of the influent water and the filtration rate (Dullemont et al., 2006, Mauclair et al., 2004). SSF is less effective until the Schmutzdecke is restored (Amy et al., 2006). Temperature of the filtered water shows seasonal variation, different types of sand are in use and different filtration rates are applied. Filtration rate may be varied as a consequence of the demand for drinking water.

In order to account for the variability of the SSF operational conditions between and within production locations, extensive monitoring of indicator organisms is required (Hijnen et al., 2004). However, detection limitations make quantification of performance variability of full-scale SSF as the final step in multibarrier treatment for drinking water production very hard, time-consuming and costly. Therefore, a computational model that predicts removal of microorganisms by SSF as a function of the operational conditions is very much desired. In that regard, a fuzzy rule-based model exists for SSF performance using filtration rate, sand bed depth and grain size as control parameters, but not temperature, to predict removal of total coliforms from wastewater (Sadiq et al., 2004). Another model exists for removal of *E. coli* and enterococci by SSF from wastewater assuming first order kinetics and in which it is assumed that equilibrium exists between mobile and retained microorganisms (Langenbach et al., 2010). The latter assumption is not appropriate (Foppen and Schijven, 2005; Schijven and Hassanizadeh, 2000). Campos et al (2002) showed that for uncovered slow sand filters biomass increase could be described by a simple logistic growth function and that for covered sand filters the biomass increase was much slower. Campos et al (2006) developed a model to predict head loss of sand filters due to the development of the Schmutzdecke and biomass. However, head loss increase was not linked with the removal of microorganisms by SSF. In our case, a model based on the removal processes is needed for SSF in drinking water

production that predicts removal of the indicator organisms for viruses and bacteria. Such a model does not yet exist.

Therefore, the aim of the present study was to develop a computational model that predicts removal of human pathogenic viruses and bacteria by SSF in drinking water production under various operational conditions. This model is aimed to be incorporated into the Dutch legislatively required QMRA and reduce monitoring for determining removal efficiency of SSF. To those aims, thirteen filtration experiments were conducted from 2002 to 2012 at three production locations at pilot plant scale running concurrently with the full scale slow sand filters using the same sand, water, flow rate and filter bed depth. Between experiments, water temperature, flow rate, grain sizes, age of Schmutzdecke and filter bed depth varied. Bacteriophage MS2 and *E. coli* bacterium WR1 were used to represent human pathogenic viruses and bacteria.

In a number of those experiments, *Campylobacter jejuni*, spores of sulphite reducing clostridia and oocysts of *Cryptosporidium* were also seeded. Descriptive analyses of those data have been reported previously with emphasis on comparing removal between microorganisms (Dullemont et al., 2006, Hijnen et al., 2004, 2007). From these experiments, it appeared that bacteriophage MS2 was removed the least. *E. coli* WR1 appeared a useful indicator for removal of *Campylobacter* by SSF, whereas spores of sulphite reducing clostridia were found to be inappropriate indicator organisms for removal of *Cryptosporidium* oocysts by SSF. Also, SSF was found to be highly effective for removal of *Cryptosporidium* by 3.4 to more than 5 log₁₀ (Hijnen et al., 2004, 2007). Performance of the pilot plant filters was found to be representative of the respective full-scale filters (Hijnen et al., 2004).

2. Materials and methods

2.1. Description of the pilot plants

2.1.1. Waternet, locations Weesperkarspel and Leiduin (W, L)

Drinking water company Waternet produces drinking water for Amsterdam at production locations Weesperkarspel and Leiduin. Weesperkarspel uses seepage water from the Bethunepolder that is pretreated by coagulation/sedimentation and stored for 90 days in a reservoir. Prior to SSF, the stored water is treated by rapid sand filtration, ozone disinfection, softening and activated carbon filtration. Leiduin takes water from the river Rhine that is pretreated by coagulation and rapid sand filtration and transported by pipeline to the dunes at the coastal area west of Amsterdam to feed infiltration canals. After dune passage by natural gradient, the water is recollected in open storage reservoirs and subsequently treated by rapid sand filtration, ozone disinfection, activated carbon filtration and SSF.

Waternet has a SSF pilot plant in parallel with full scale SSF at both production locations. The pilot plant filters have a surface of 1.6 m × 1.6 m. On top of the 1 – 1.5-m filter beds there is 1.2-m supernatant water. Leiduin has four pilot plant filters. At Weesperkarspel, dissolved organic carbon concentration (DOC) of the water was 3.0 (1.7 – 3.4) mg/l, turbidity was 0.31 (0.10 – 1.9) FTE and electric conductivity (EC) was 51 mS/m. At Leiduin, DOC of the water was 2.0 (1.3 – 2.7) mg/l, turbidity was 0.4 (0.008 – 4.0) FTE and EC was 65 mS/m. At both locations, pH of the water was 8±0.1.

Table 1 lists the operational conditions. The experiments at Weesperkarspel were designated experiments W1 – W3. At Leiduin, two of the pilot plant filters were fed with pretreated water (experiments L1, L2 and L5), whereas the other two filters were fed directly with rapid sand filtrated water (experiments L3 and L4).

2.1.2. DUNEA (D)

Drinking water company DUNEA infiltrates water from the river Afgedamde Maas into the dunes of Katwijk, Scheveningen and Monster. The dune filtered water is softened, passes a rapid sand filter, and, finally, SSF. Because DUNEA does not have a SSF pilot plant, one of the

pilot plant filters at Leiduin was filled with sand from DUNEA and fed with pretreated Leiduin water (experiments D1 – D3). DUNEA water that feeds their full scale slow sand filters, has a pH of 8.4 (8.1 – 8.7), a DOC of 2.0 (1.2 – 2.2) mg/l, a turbidity of 0.045 (0.00 – 0.123) FTE and an EC of 49 mS/m.

2.1.3. Groningen (G)

At production location De Punt of Groningen drinking water company, water from the river Drentsche Aa is stored for about 30 days in reservoir De Punt. The stored water is then treated by coagulation/flocculation, rapid sand filtration, activated carbon filtration, SSF and ultraviolet disinfection. The feeding water had a pH of 7.5 (7.1-7.7), a DOC of 5.7 (5.16.1) mg/l, turbidity of <0.1 (<0.1-0.3) FTE and an EC of 34 mS/m. A pilot plant filter with a diameter of 1.25 m and a filter bed depth of 1.25 m was used for experiments G1 – G2.

2.2. Microorganisms and enumeration

The experiments were carried out with bacteriophages MS2 (ATCC 15597-B1) and *Escherichia coli* WR1 (NCTC 13167). Bacteriophage MS2 is an icosahedral phage with a diameter of 26 nm and a measured, low isoelectric point of 3.5 – 4.1 (Penrod et al., 1996, Chrysikopoulos and Syngouna, 2012) and can be regarded as a conservative model virus because it attaches less to soil than most pathogenic viruses (Schijven et al., 2003). *E. coli* WR1, in this paper designated as ECWR1, is widely used as a reference strain for enumeration of *E. coli* (Mooijman et al., 1991) and is used here as reference for bacterial removal. A highly concentrated suspension of MS2 was prepared and MS2 concentrations were assayed as described in ISO-10705 (ISO, 2000). A highly concentrated suspension of *E. coli* WR1 was prepared by growing in buffered peptone water for 18 hours at 37°C, harvesting by centrifugation and washing in sterile water. *E. coli* WR1 was enumerated by membrane filtration and incubation onto Lauryl Sulphate for 5 hours at 25°C and 14 hours at 44°C (Schets et al., 2002).

2.3. Seeding and sampling of pilot slow sand filters

In order to assess pore water velocity and dispersivity, each filter was seeded with a 550 mg/l NaCl solution during 24 hours and breakthrough was monitored by measuring EC. Details on the seeding were described previously by Hijnen et al. (2004). Briefly, in all experiments, 3 litres of $10^7 - 3 \times 10^{10}$ of microorganisms per litre were added directly to the supernatant water on top of the sand filters and gently mixed with a rotor in order to immediately achieve the desired C_0 level of approximately $3 \times 10^4 - 10^8$ microorganisms per litre. This level was kept constant for 24 hours by proportionally adding seeding suspension. In experiments L1 – L3, microorganisms were seeded in two steps: at a low concentration for 24 hours and at a 1000 times higher concentration for the next 24 hours. Samples of 100 ml were taken from the influent on top of the filter bed as well as from the effluent during working hours. About 30 effluent samples were collected for 5 – 7 days. All samples were stored under refrigeration and analysed within 24 hours.

2.4. Inactivation

At the start of each seeding experiment, a sample was taken from the supernatant water and stored at the same temperature as the SSF. At regular time intervals sub-samples were taken from this sample for enumeration of the microorganisms. Inactivation rates of these organisms in the aqueous phase were estimated from linear regression of the log-transformed concentrations.

2.5. Modelling of the breakthrough curves

The major processes controlling the transport and removal of microorganisms in porous media are advection, dispersion, attachment, detachment, and inactivation (or die-off) of both free and

attached microorganisms (Foppen and Schijven, 2005; Schijven and Hassanizadeh, 2000). Inactivation may be due to predation (Hijnen et al., 2007; Weber-Shirk and Dick, 1999). Schijven *et al.* (2002, 2003) showed that a two-site kinetic model fitted the breakthrough curves of microorganisms from column and field experiments better than a one-site kinetic model. A two-site kinetic model describes two types of sites for attachment/ detachment. Interaction with kinetic site 1 is characterized by relatively fast attachment and slow detachment, whereas interaction with kinetic site 2 is characterized by both fast attachment and detachment. The governing equations for one-dimensional transport are as follows:

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

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

$$\frac{\rho_B}{n} \frac{\partial S_2}{\partial t} = k_{att2} C - k_{det2} \frac{\rho_B}{n} S_2 - \mu_{s2} \frac{\rho_B}{n} S_2 \quad (3)$$

where C is the concentration of free microorganisms [liter^{-1}]; S is the concentration of attached microorganisms [g^{-1}]; t is time [day]; x is distance [m]; α_L is dispersivity [m^{-1}]; v is average interstitial water velocity [$\text{m} \cdot \text{day}^{-1}$]; ρ_B is dry bulk density [$\text{g} \cdot \text{liter}^{-1}$]; n is porosity [-]; k_{att} and k_{det} are attachment and detachment rate coefficients, respectively [day^{-1}]; μ_l and μ_s are inactivation rate coefficients of free and attached microorganisms, respectively [day^{-1}]. Subscripts 1 and 2 refer to the two different kinetic sites.

2.6. Log removal of microorganisms by SSF

Determining log removal of microorganisms by SSF on the basis of maximum breakthrough concentrations or mass balance calculations may be inaccurate and/or biased, because a steady state may not always be achieved within the time span of the experiment.. Microorganisms removal can be estimated more accurately using the values of the attachment, detachment and inactivation rate coefficients as obtained from fitting a complete breakthrough curve. All breakthrough curves of the salt tracer and the microorganisms were fitted for parameter estimation using Hydrus-1D, which includes the two-site kinetic model (Simunek et al., 2005). Then, assuming steady state conditions, the removal of microorganisms by sand filtration can be computed as follows (Schijven et al., 2002):

$$\ln\left(\frac{C_x}{C_0}\right) = \frac{\left(1 - \sqrt{1 + 4\alpha_L \frac{\lambda}{v}}\right)}{2\alpha_L} x \quad (4)$$

where C_0 is concentration at $x = 0$, C_x is the steady state concentration at the outlet of the sand filter, and $\log(C_x/C_0)$ is a measure of removal.

The term λ in equation (4) is equivalent to an overall removal rate coefficient [day^{-1}]:

$$\lambda = \mu_l + \frac{k_{att1}}{1 + k_{det1}/\mu_{s1}} + \frac{k_{att2}}{1 + k_{det2}/\mu_{s2}} \quad (5)$$

Commonly, the value of λ is similar to that of k_{att1} , implying that attachment to type 1 sites mainly determined removal. This follows from the fact that the values of k_{det1} , μ_l and μ_s are much smaller than that of k_{att1} , and that the value of k_{det2} is relatively large (Schijven et al., 2002).

2.7. Development of slow sand filtration model

In the case that a Schmutzdecke was not active or just scraped off, it may be assumed that removal was totally attributable to attachment of the microorganisms to the sand grains, and that log removal by attachment can be described using the well-known colloid-filtration equation of Yao et al. (1971) as follows:

$$\ln \frac{C_x}{C_0} = -\frac{3}{2} \frac{1-n}{d_c} \alpha \eta_{d_p, d_c, u, T, n} x \quad (6)$$

where, α is the sticking efficiency, d_c is the grain size (collector), [m], d_p is the particle size of the microorganism, [m], u is the approach velocity, equal to the filtration rate [m.day⁻¹], T is the water temperature, [°C], x is the filter bed length, [m], $\eta_{d_p, d_c, u, T, n}$ is the single collector efficiency. The indices emphasize that the single collector efficiency is a function of the operational conditions d_p, d_c, u, T, n . For the calculation of $\eta_{d_p, d_c, u, T, n}$, the colloid filtration theory equations of Tufenkji and Elimelech (2004) were used, with the addition that the dynamic viscosity μ , [kg.m⁻¹.°C⁻¹], of the water was temperature dependent, according to the following relation (Voss and Provost, 2010):

$$\mu = 2.414 \times 10^{-5} \frac{247.8}{273 + T - 140} \quad (7)$$

For the conditions where the Schmutzdecke is effective, removal may not be attributed to attachment only, but also to irreversible processes by biologic activity of the Schmutzdecke and deeper in the filter, such as predation, bacterivory and proteolytic activity (Weber-Shirk et al., 1999). Hence, the addition of a term for the interaction with the Schmutzdecke is needed. The Schmutzdecke gradually becomes more effective and this is temperature dependent (Campos et al., 2006). Campos et al (2002) found that biomass concentrations in slow sand filters could be described well by a logistic growth function. Here, it is assumed that additional removal of microorganisms by the Schmutzdecke may also be described by a logistic growth function in the form of :

$$f_0 (1 - e^{-f_1 a}) \quad (8)$$

where f_0 is a scale factor, f_1 is a rate coefficient, [day⁻¹], and a is the age of the Schmutzdecke, [day]. Several forms of the Schmutzdecke term were explored how to incorporate the operational conditions: temperature, sticking efficiency, grain size and porosity. The addition of the Schmutzdecke term implies that the attachment rate coefficient k_{att1} should be interpreted as a lumping of attachment and the processes in the Schmutzdecke.

2.8. Likelihood ratio tests

Values for the parameters α , f_0 and f_1 needed to be estimated using the experimental data conducted for different values of the operational conditions d_p, d_c, u, T, n . Values of α , f_0 and

f_1 may be specific for MS2 and ECWR1 as well as for each slow sand filter, but may also be the same between filters and microorganisms. This can be investigated by means of likelihood ratios. To that aim, the objective function $\ln \frac{C}{C_0}[\alpha_i, f_{0,i}, f_{1,i}, d_{p,i}, d_{c,i}, n_i, u_i, x_i]$ was fitted to the removal data of each experiment to obtain estimates for α , f_0 and f_1 by minimizing the following log-likelihood function (McCullagh and Nelder, 1989) by numerical optimization in Mathematica 8.0.4 (Wolfram Inc, Champaign, Illinois):

$$L[\alpha_i, f_{0,i}, f_{1,i}] = -2 \sum_{i=1}^N \left[\ln(s\sqrt{2\pi}) + \frac{\left(\ln \frac{C}{C_0}[\alpha_i, f_{0,i}, f_{1,i}, d_{p,i}, d_{c,i}, n_i, u_i, x_i] \right)^2}{2s^2} \right] \quad (9)$$

where i is the i -th of N experiments. This way, values of α , f_0 and f_1 for all 24 experiments were estimated. Similar log-likelihood functions were defined, whereby parameter values between (groups of) experiments are assumed to be the same. Then, by means of the log-likelihood deviates (same as likelihood ratio's), it can be determined if these assumptions hold (McCullagh and Nelder, 1989). In other words, if the likelihood ratio is not significant, the model with the fewer values for α , f_0 and f_1 describes the data equally well and is chosen as the preferred model.

2.9. Model validation

The experiments with MS2 and ECWR1 provided 24 log removal data that were used to develop a SSF model for predicting log removal of MS2 and ECWR1 as a function of the operational conditions. In order to demonstrate how accurately the developed SSF model predicts log removal of MS2 and ECWR1 in practice, a leave-one-out cross-validation was conducted (Geisser and Seymour, 1993). In this validation, the data of one of the experiments was left out, and the remaining 23 experimental data were used to estimate the model parameter values. This was repeated 23 times, each time leaving out the data from one other experiment. Each of the 23 models was used to predict log removal for the operational conditions of the excluded experiment. Finally, a root mean square error from the predicted and observed log removals of MS2 and ECWR1 in the excluded experiments was calculated. In addition, a Bland-Altman plot was constructed to compute limits of agreement between observed and predicted log removal by the model based on all 24 experiments (Altman and Bland, 1983).

2.10. Sensitivity analysis

A sensitivity analyses was conducted to demonstrate application of the SSF model under variable operational conditions and to investigate the sensitivity of the predicted removal of MS2 and ECWR1 to the various operational conditions. Thereto, removal of MS2 and ECWR1 was predicted for locations Weesperkarspel and Leiduin, using 358 data on water temperature at full scale from 2006 – 2011. Also, a scenario was included in which the predictions started with a one-year old Schmutzdecke that was scraped off at the beginning of 2007 (low temperature) and in the middle of 2009 (high temperature). The sand filters of these two locations differ in grain size. For each of the locations these predictions were conducted for two different flow rates as well.

3. Results

3.1. Salt tracer experiments

The values for porosity and dispersivity found from fitting the salt breakthrough curves are given in Table 1. Dispersivities were low indicating relatively homogeneous packing.

3.2. Description of breakthrough curves and removal

Figure 1 shows all breakthrough curves of MS2 and *E. coli* WR1 from the SSF experiments, including the data as well as the fitted curves. The tails of the breakthrough curves represent detachment of attached microorganisms. Tables 2 and 3 list all estimated parameter values from fitting the breakthrough curves for MS2 and ECWR1, respectively. As expected (Schijven et al., 2002), the value of λ was always similar or equal to that of k_{att1} , implying that attachment to type 1 sites mainly determined removal (equation 5). The inactivation rate coefficients μ_i and μ_s were equal or similar in value, but much smaller than the value of k_{att1} , hence, the contribution of inactivation/die-off to removal was negligible. In experiments W2 and G2, both at low temperature (at locations W and G, see Table 1), removal of MS2 and ECWR1 was lowest, and λ appeared to be smaller than k_{att1} , because k_{det1} was relatively high as compared with all other experiments.

Table 2 and 3 also list the removal of MS2 and ECWR1. ECWR1 was always removed more than MS2. In experiments W1 – W3, removal of MS2 and ECWR1 was higher at higher temperature. Considering experiments L2 – L4, all conducted at about 10 °C, removal of MS2 and ECWR1 increased with the age of the Schmutzdecke, and this increase was stronger for ECWR1 than for MS2. Comparing removal of MS2 and ECWR1 between experiments L2 (pretreated water) and L4 (no pre-treatment) shows more removal in L4, despite a slightly lower temperature and a bit younger Schmutzdecke in experiment L4.

Experiments D1 – D3 were setup to investigate the restoration time of the Schmutzdecke. In experiment D1, the Schmutzdecke was 137 days old and removal of MS2 and ECWR1 was 3.1 log₁₀ and 4.5 log₁₀, respectively. Compared to experiments L2 – L4, water temperature was 4-6 °C higher, and, as will be explained below, the sand was also stickier; hence removal was about twice as high. In experiment D2, following D1, the Schmutzdecke was scraped off, resulting in 0.6 log₁₀ and 1.6 log₁₀ lower removals of MS2 and ECWR1, respectively. When the Schmutzdecke was 53 days old, removal was increased by 0.8 log₁₀ and 2.2 log₁₀ for MS2 and ECWR1, respectively. The higher removals in experiment D3 than those in experiment D1 may be attributed to a restored Schmutzdecke together with the higher temperature. At higher temperature, the difference in removal between filters with a younger and older Schmutzdecke was greater. Colloid filtration theory, predicts higher single collector efficiency values for finer sand than for coarser sand (Tufenkji and Elimelech, 2004): Removals of MS2 and ECWR1 were higher in experiments L1 – L5 (grain size of 0.29 mm) than in experiments W1 and W2 (grain size of 0.5 and 0.65 mm). In experiment W3, removals were similar to those of L1 – L5, because of the higher temperature in experiment W3. In this regard, higher removal in the D1 – D3 experiments with grain size of 0.53 mm was unexpected. Characterization of the sands, revealed that the D-sand contained much more iron-oxides than the other sands (Dullemont et al., 2006). Possibly, the D-sand was stickier, because it had more sites for favourable attachment (Abudalo et al., 2005; Noubactep et al., 2012). However, in time, favourable attachment sites may be come occupied with organic matter. The water feeding the filter with the D-sand was not pretreated with activated carbon filtration, hence, the load of organic matter was higher. As Lukasik et al. (1999) found, this may neutralize the presence of favourable attachment sites. Therefore, there is no conclusive explanation of the apparent higher sticking efficiency of the D-sand.

Finally, removal of MS2 and ECWR1 in experiments G1 and G2, also show higher removal at higher temperature. In experiments L1 – L3 the microorganisms were seeded for 24 hours at 10 – 100 microorganisms per milliliter and at a 1000 times higher concentration for the next 24

hours. Fitting of both levels of seeding in the breakthrough curves were possible with a single attachment rate coefficient, demonstrating that there was no effect of seeding concentration on removal of the microorganisms (Figure 1).

3.3. Slow sand filtration model

From the experimental data, a temperature-dependent effect of the Schmutzdecke was apparent as well as that an older Schmutzdecke appeared to lead to more removal. Also a Schmutzdecke in finer sand appeared to be more effective than in coarser sand. Colloid filtration theory incorporates temperature for the dynamic viscosity of the water and for the diffusion process, however, colloid filtration theory alone could not describe the effects of temperature on microorganism removal. In the model development, the estimates of f_1 appeared to vary in the same way as the sticking efficiency between filters and microorganisms. When replacing f_1 with αf_1 , a constant value of f_1 for MS2 and ECWR1 and all filters could be applied according to the likelihood ratio tests. Incorporation of temperature, and grain size into the Schmutzdecke term (equation 8) further improved the model likelihood. This resulted into the following SSF model:

$$\ln \frac{C_x}{C_0} = -\frac{3}{2} \frac{1-n}{d_c} \left(\alpha \eta_{d_p, d_c, u, T, n} x + f_0 T (1 - e^{-\alpha f_1 a}) \right) \quad (10)$$

Scale factor f_0 now has the dimension [m°C].

Table 4 lists the values of α , f_0 and f_1 for MS2 and ECWR1. From the likelihood ratio tests it followed that sticking efficiency α was specific to microorganism as well as filter. The sand of the W-filters was twice as fine as that of the L-filters. Nevertheless, the same microorganism-dependent sticking efficiency appeared to apply to the W- and L-filters. Both f_0 and f_1 appeared to be common to MS2 and ECWR1, as well as to the slow sand filters, *i.e.* no significant differences between microorganisms and filters were found. From the leave-one-out cross-validation, it followed that the standard deviations of the estimated values of α , f_0 and f_1 were small, and that the root mean square error was 0.30. This may be interpreted as that the model is robust and that predicted log removal is accurate within ± 0.6 log. This is consistent with the Bland-Altmanplot (Figure 2) that shows that the difference between observed and predicted log removal values lies within ± 0.6 log. The plot also shows that this difference applies especially for the operational conditions where removal is low. In the range of 3 – 5 log removal, predictions are more accurate.

Figure 3 shows predicted log removal of MS2 as a function of water temperature data at full scale from Weesperkarspel and Leiduin, and includes a scenario in which the Schmutzdecke was scraped off twice. The sand filters of these two locations differ in grain size, but parameter values of α , f_0 and f_1 are the same. The large periodic variability in the removal of MS2 can be ascribed to the variability of the water temperature. The difference in the removal of MS2 between the two locations can be ascribed to the difference in grain size. Scraping off of the Schmutzdecke gives the largest decrease in removal when done at high temperature. After the first time the Schmutzdecke was scraped off, the model predicts that the maximum removal in 2007 is lower than in 2006 and 2008, despite the fact that maximum temperature was the same for all these years. The same variability is the case for removal of ECWR1, but ECWR1 is removed more MS2.

The predictions in Figure 3 were conducted for a filtration of 45 cm/h at Weesperkarspel and 30 cm/h at Leiduin. Lowering the filtration rate to 30 cm/h and 22 cm/h at Weesperkarspel

and Leiduin, respectively lead on average to an increased removal of MS2 with 0.06 and 0.26 $\log_{10}$ at Weesperkarspel and Leiduin, respectively. For ECWR1, removal increases with 0.07 and 0.27 $\log_{10}$. This demonstrates that log removal predictions are sensitive to temperature and Schmutzdecke age, whereas a change in filtration rate within the ranges as demonstrated here has only a small effect.

4. Discussion

Removal by SSF of MS2 and *E. coli* WR1 was studied at pilot plant scale for the development of a model that predicts removal of human pathogenic viruses and bacteria by SSF as a function of the operational conditions. Removal was found to depend strongly on the water temperature and Schmutzdecke age in agreement with previous studies (Amy et al., 2006; Elliot et al., 2011; Campos et al., 2002). Removal could not be attributed to attachment of microorganisms to the sand grains as the sole removal process. Given the common knowledge that a biologically active Schmutzdecke enhances the performance of slow sand filters (Amy et al., 2006; Elliot et al., 2011; Campos et al., 2002), a logistic growth function incorporating operational conditions was added.

The development of the Schmutzdecke leads to an increase in filter bed resistance, and, eventually, a slow sand filter may become clogged. Mauclaire et al. (2004) found that the volume of bacterial cells did not exceed 0.2% of the pore space, but extracellular polymers produced by the bacteria occupied at least 7% of the pore space of the top layer and 3% in the deeper layers. Nevertheless, this happens only in a thin upper layer. Hence, scraping off of this thin layer appears to be sufficient for restoring hydraulic conductivity. Because this is only a thin layer, porosity of the total ripe sand filter bed should not be affected very much.

The SSF model consists of a term for colloid filtration and for the contribution of the Schmutzdecke to microorganism removal. The latter was based on the concept of temperature-dependent biologic activity, and there is an association with attachment. However, the study was not designed to identifying the actual processes in the Schmutzdecke. The actual removal mechanism in the thin Schmutzdecke is most likely a combination of straining (association with filter bed resistance), attachment (association with sticking efficiency) and predation (biologic activity, association with temperature).

In our modelling exercises, no significant effect could be observed of the different pretreatments of the water feeding SSF in experiments L1, L2 and L5 versus L3 and L4. Nevertheless, there may still be an indirect effect in that the filters fed with influent pretreated by ozone disinfection and activated carbon filtration need to be scraped less often than filters fed with water that is not pretreated. The slow sand filtration model currently does not include filter bed resistance, which is expected to affect SSF performance.

The SSF model can be used to predict variability in removal by SSF. Variability in removal will be mostly determined by temperature and the age of the Schmutzdecke, whereas a change in filtration rate within the ranges as demonstrated here has a small effect on microorganism removal. Such variable removal efficiencies can be incorporated into QMRA for drinking water that is produced from treating surface water. Herein, one should account for a negative correlation between pathogen concentrations in the source water and SSF filtration efficiency. Commonly, pathogen concentrations in source waters show seasonal variation with the higher concentrations at the lower temperatures and the lower concentrations at the higher temperatures, whereas SSF removal efficiency is at its lowest at the lower temperatures and at its highest at the higher temperatures.

The SSF model was developed for SSFs with a filter depth of about 1.1 – 1.6 m that are operated indoors as a final treatment step in drinking water production. It may be surmised that the model applies too to the performance of slow sand filters operated outdoors in

drinking water production or for wastewater treatment and to small household sand filters, such as Biosand filters (Noubactep et al., 2012; Tellen et al., 2010) because the removal processes are the same. It is to be expected that sticking efficiencies will be microorganism and filter specific to those types of sand filters as well. Probably f_0 and f_1 differ too, because the development of the Schmutzdecke of outdoor-operated sand filters may differ from that of the indoor-operated ones (Campos et al., 2002), even more when used for treatment of wastewater. In the case of household filters, intermittent operation is common, making the biologic activity of the Schmutzdecke relatively more important (Noubactep et al., 2012).

Colloid filtration theory predicts that the collision efficiency of icosahedral viruses is one order in magnitude higher than that of bacteria. The fact that less removal by SSF of bacteriophage MS2 than of ECWR1 was found, implies that the sticking efficiency of ECWR1 is much higher than that of MS2 (Table 4). Bacteriophage MS2 was selected as a conservative model virus for virus attachment (Schijven et al., 2003). A priori a model virus was selected that is characterized by a low sticking efficiency. ECWR1 was selected as model organism for bacterial removal. In this regard, ECWR1 must be considered as a reference strain, but is not necessarily the least attaching *E. coli* strain. In literature, a large variation in sticking efficiencies between strains of *E. coli* have been reported (Bolster et al., 2010; Foppen et al., 2010; Lutterodt et al., 2009). Nevertheless, comparison of removal of ECWR1 between data on removal of thermotolerant coliforms and naturally present *E. coli* bacteria on pilot and full plant scale learned that there is good agreement (Hijnen et al., 2004).

5. Conclusions

A model has been developed to predict removal by SSF of bacteriophage MS2 and *E. coli* WR1 as model microorganisms for pathogenic viruses and bacteria. The model incorporates the operational conditions: temperature, age of the Schmutzdecke, grain size of the sand and filtration rate. The contribution of the Schmutzdecke to removal of microorganisms is modelled as a logistic growth function with scale factor f_0 and rate coefficient f_1 , which are independent of the microorganisms and filters. The difference in contribution to removal of MS2 and ECWR1 by the Schmutzdecke is attributable to their different sticking efficiencies. Model predictions are within ± 0.6 log removal, and are more accurate for log removals of more than 3 log. The model can be applied to indoors-operated slow sand filters and enables reduction of monitoring programs to determine removal of microorganisms by SSF as part of quantitative microbial risk assessment.

6. Acknowledgements

The SSF model was developed by commission of and funded by BTO under project B111691 "Effectivity of slow sand filtration" and for the account of the Ministry of Housing, Spatial Planning and the Environment (VROM). The authors greatly acknowledge the drinking water companies Waternet, DUNEA and Groningen for the use of their pilot plants as well as for their financial and technical support in conducting the experiments. The authors specially thank Ria de Bruin, George Engels, Ronald Italiaander and Anke Hanzens-Brouwer for their support in microbiological analyses and Ana Maria de Roda Husman and Saskia Rutjes for critical reviewing of the manuscript. Finally, Alex van der Helm is greatly acknowledged for his detailed peer reviewing of the modelling and encoding.

7. References

Abudalo, R.A., Bogatsu, Y.G., Ryan, J.N., Harvey, R.W., Metge, D.W., Elimelech, M., 2005. Effect of ferric oxyhydroxide grain coatings on the transport of bacteriophage PRD1 and

- Cryptosporidium parvum* oocysts in saturated porous media. Environmental Science & Technology 39, 6412-6419.
- Amy, G., Carlson, K., Collins, M.R., Drewes, J., Gruenheid, S., Jekel, M., 2006. Integrated comparison of biofiltration in engineered versus natural systems. In Recent progress in slow sand and alternative biofiltration processes, Gimbel, R., Graham, J.D., Collins, M.R., Eds., IWA, Mülheim, 1, pp 3-11.
- Anonymous, 2001. Besluit van 9 januari 2001 tot wijziging van het waterleidingbesluit in verband met de richtlijn betreffende de kwaliteit van voor menselijke consumptie bestemd water. Staatsblad van het Koninkrijk der Nederlanden, 31,1-53.
- Anonymous, 2005. VROM-Inspectierichtlijn Analyse microbiologische veiligheid drinkwater. VROM-Inspectie, Artikelcode 5318.
- Altman, D.G., Bland, J.M., 1983. Measurement in medicine: the analysis of method comparison studies. Statistician 32, 307-317.
- Bolster, C.H., Cook, K.Y.L., Marcus, I.N.M., Haznedaroglu, B., Walker, S.L. 2010. Correlating transport behavior with cell properties for eight porcine *Escherichia coli* isolates. Environmental Science & Technology 44, 5008-514.
- Campos, L.C., Smith, S.R., Graham, N.J.D., 2006. Deterministic-based model of slow sand filtration. I: Model development. Journal of Environmental Engineering. 132, 872-886.
- Campos, L.C., Su, M.F.J, Graham, N.J.D., Smith, S.R., 2002. Biomass development in slow sand filters. Water Research 36, 4543-4551.
- Chrysikopolous, C.V., Syngouna, V.I., 2012. Attachment of bacteriophages MS2 and ϕ X174 onto kaolinite and montmorillonite: extended DLVO interactions. Colloids and Surfaces B: Biointerfaces 92, 74-83.
- Dullemont, Y.J., Schijven, J.F.: Hijnen, W.A.M., Colin, M., Magic-Knezev, A., Oorthuizen, W.A., 2006. Removal of microorganisms by slow sand filtration. . In Recent progress in slow sand and alternative biofiltration processes, Gimbel, R., Graham, J.D., Collins, M.R., Eds., IWA, Mülheim, 1, pp 12-20.
- Elliot, M.A., DiGiano, F.A., Sobsey, M.D., 2011. Virus attenuation by microbial mechanisms during the idle time of a household slow sand filter. Water Research, 45, 4093-2102.
- Foppen, J.W.F., Lutterodt, G., Röling, W.F.M., Uhlenbrook, S. 2010.. Towards understanding inter-strain attachment variations of *Escherichia coli* during transport in saturated quartz sand. Water Research 44,1202-1212.
- Foppen, J.W.A., Schijven, J.F., 2005. Transport of *Escherichia coli* in columns of geochemically heterogeneous sediment. Water Research 39, 3082-3088.
- Geisser, S., Seymour, G., 1993. Predictive inference. New York, NY: Chapman and Hall. ISBN 0412034719
- Hijnen, W.A.M., Dullemont, Y.J.D., Schijven, J.F., Hanzens-Brouwer, A.J., Rosielle, M., Medema, G., 2007. Removal and fate of *Cryptosporidium parvum*, *Clostridium perfringens* and small-sized centric diatoms (*Stephanodiscus hantzschii*) in slow sand filters. Water Research 41, 2151-2162.
- Hijnen, W.A.M., Schijven, J.F., Bonné, P., Visser, A., Medema, G.J., 2004. Elimination of viruses, bacteria and protozoan oocysts by slow sand filtration Water Science & Technology 50, 147-54.
- ISO (International Organization for Standardization), 2000. Water quality - Detection and enumeration of bacteriophages - Part 1: Enumeration of F-specific RNA-bacteriophages. ISO 10705-1, Geneva.
- Langenbach, K., Kusck, P., Horn, H., Kästner, M., 2010. Modeling of slow sand filtration for disinfection of secondary clarifier effluent. Water Research 44, 159-166.
- Lukasik, J., Yueh-Fung, C., Fuhua, L., Tamplin, M., Farrah, S.R. 1999. Removal of microorganisms from water by columns containing sand coated with ferric and aluminum hydroxides. Water Research 33, 769-777.

- Lutterodt, G., Basnet, M., Foppen, J.W.A., Uhlenbrook, S. 2009. The effect of surface characteristics on the transport of multiple *Escherichia coli* isolates in large scale columns of quartz sand. *Water Research* 43, 595-604.
- Mauclair, L., Schürmann, A., Thullner, M., Gammeter, S., Zeyer, J., 2004. Sand filtration in a water treatment plant: Biological parameters responsible for clogging. *Journal of Water Supply: Research Technology* 53, 92-108.
- McCullagh, P., Nelder, J.A. 1989. Generalized linear models. Chapman and Hall., 2nd ed.
- Mooijman, K.A., Havelaar, A.H., Hoekstra, J.A., van Strijp-Lockfeer, N. G. W. N. 1991. Production and Control of Reference Materials for Water Microbiology. *Water Science & Technology* 24, 53-56.
- Noubactep, C., Temgoua, E., Rahman M.A., 2012. Designing iron-amended Biosand filters for decentralized safe drinking water provision. *Clean-Soil, Air, Water* 40,798-807.
- Penrod, S.L. , Olson, T.M. , Grant, S.B., 1996. Deposition kinetics of two viruses in packed beds of quartz granular media. *Langmuir* 12, 5576-5587.
- Sadiq, R., Al-Zahrani. M.A., Sheikh, A.K., Husain, T., Farooq, S., 2004. Performance evaluation of slow sand filtration using fuzzy rule-based modeling *Environmental Modelling and Software* 19, 507-515.
- Schets F.M., Nobel, P.J., Strating S., Mooijman, K.A., Engels, G.B., Brouwer, A., 2002. EU Drinking Water Directive reference methods for enumeration of total coliforms and *Escherichia coli* compared with alternative methods. *Letters in Applied Microbiology* 34,227-231.
- Schijven, J.F., de Bruin, H.A.M., Hassanizadeh, S.M., de Roda Husman AM., 2003. Bacteriophages and clostridium spores as indicator organisms for removal of pathogens by passage through saturated dune sand. *Water Research* 37, 2186-2194.
- Schijven, J.F., Hassanizadeh, S.M., 2000 Removal of viruses by soil passage: overview of modeling, processes and parameters. *Critical Reviews in Environmental Science & Technoogy* 31: 49-125.
- Schijven, J.F., Hassanizadeh, S.M., de Bruin, H.A.M., 2002. Two-site kinetic modeling of bacteriophages transport through columns of saturated dune sand. *Journal of Contaminant Hydrology* 57, 259-279.
- Schijven, J.F., Teunis, P., Rutjes, S., de Roda Husman, A.M., 2011. QMRAspot: A computational user-friendly interactive tool for quantitative microbial risk assessment from surface water to drinking water. *Water Research* 45, 5564-5576.
- Simunek, J., van Genuchten, M.Th., Sejna, M., 2005. The HYDRUS-1D software package for simulating the one-dimensional movement of water, heat, and multiple solutes in variably-saturated media -Version 4.12, HYDRUS software series 1. Department of Environmental Sciences, University of California Riverside, Riverside, CA.
- Taylor Eighmy, T., Collins, M.R., Spanos, S.K., Fenstermacher, J., 1992. Microbial populations, activities and carbon metabolism in slow sand filters. *Water Research* 10, 1319-1328.
- Tellen, V., Nkeng, G., Dentel, S. 2010. Improved filtration technology for pathogen reduction in rural water supplies. *Water* 2, 285-306.
- Tufenkji, N., Elimelech, M., 2004. Deviation from the classical colloid filtration theory in the presence of repulsive DLVO Interactions. *Langmuir* 20, 10818-10828.
- Voss, C.I., Provost, A.M., 2010. SUTRA. A model for saturated-unsaturated, variable-density groundwater flow with solute or energy transport. *Water-Resources Investigations Report* 02-4231, U.S. Geological Survey.
- Weber-Shirk, M.L., Dick, R.I., 1999. Bacterivory by a chrysophyte in slow sand filters. *Water Research* 33, 631-638.
- WHO 2011. Guidelines for Drinking-water Quality. Fourth edition, World Health Organisation, Geneve, Zwitserland. ISBN: 978 92 4 154815 1,

Yao, K.M., Habibian, M.T., O'Melia, C.R., 1971. Water and waste water filtration: concepts and applications. *Environmental Science & Technology* 5,1105-1112.

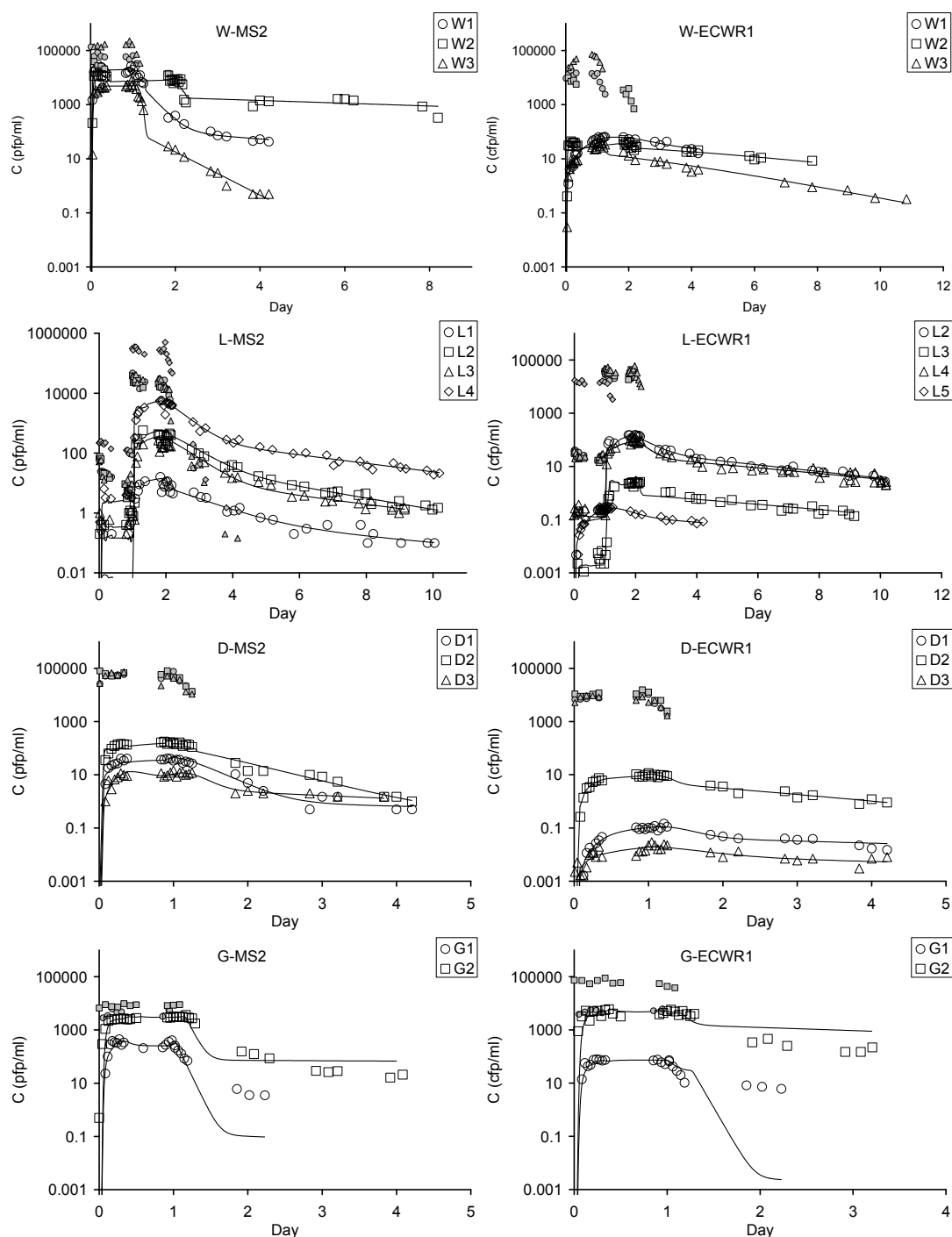


Figure 1. Breakthrough curves: Measured seeding concentrations (filled small symbols), measured breakthrough concentrations (open large symbols) and fitted two-site kinetic model using Hydrus-1D (lines) of all experiments with MS2 and ECWR1.

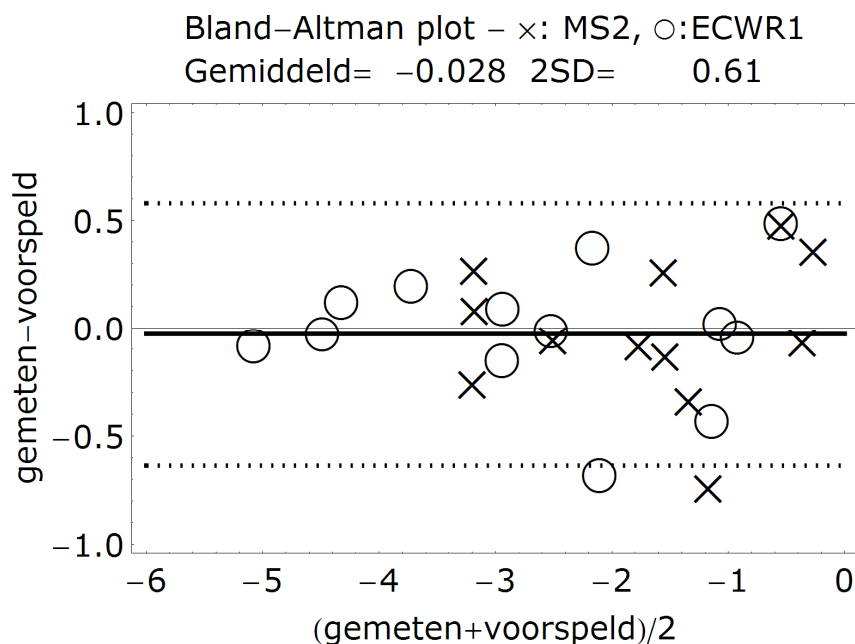


Figure 2. Bland-Altman plot of the difference between observed and predicted log removal of MS2 and ECWR1 as a function of the average of observed and predicted log removal.

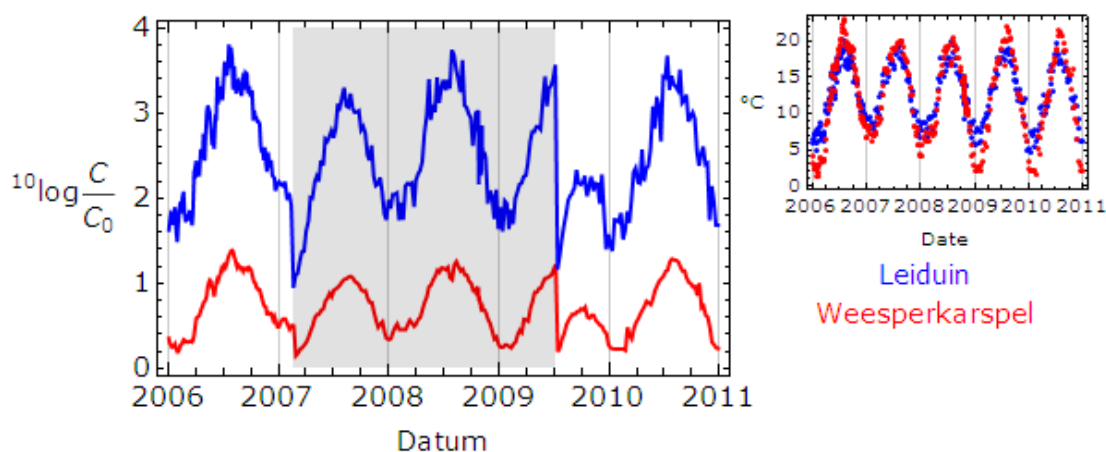


Figure 3. Predicted removal of MS2 as function of temperature and age of the Schmutzdecke at Weesperkarspel and Leiduin (left) using 358 water temperature data from both locations from 2006 to 2011 (right). Filtration rate at Weesperkarspel was 45 cm/h and at Leiduin 30 cm/h. The periodic variability in the removal reflects that of the water temperature. In 2006, the age of the Schmutzdecke was set to one year. At the beginning of 2007 (low temperature) and in the middle of 2009 (high temperature), the Schmutzdecke was scraped off. The intermediate period is shaded.

Tables

Table 1 Experimental conditions

Experiment	Temperature [°C]	Age Schmutzdecke [days]	Filtration rate [cm.h ⁻¹]	Grain size [mm]	Filter bed depth [m]	Porosity	Dispersivity [cm ⁻¹]
W1	7.5	56	45	0.50	1.15	0.45	0.56
W2	4.0	327	45	0.65	1.32	0.33	0.48
W3	19.5	217	45	0.65	1.26	0.37	2.0
L1	16.0	553	45	0.29	1.54	0.39	0.38
L2	11.7	12	30	0.29	1.54	0.39	0.38
L3	10.6	81	30	0.29	1.44	0.39	0.38
L4	9.4	4	30	0.29	1.44	0.39	0.38
L5	9.9	1105	30	0.29	1.54	0.39	0.38
D1	13	137	30	0.53	1.24	0.40	1.2
D2	14	4	30	0.53	1.24	0.40	1.2
D3	16	53	30	0.53	1.24	0.40	1.2
G1	16.8	189	20	0.50	1.61	0.32	2.1
G2	4.5	312	20	0.50	1.61	0.32	2.1

L1: MS2 only; L5: ECWR1 only; other experiments MS2 and ECWR1 concurrent.

Table 2 Parameter values from fitting the MS2 breakthrough curves to the two-site kinetic model and calculated removal $-\log_{10} C_x/C_0$ (equations 4 and 5).

Experiment	k_{att1} [day ⁻¹]	k_{det1} [day ⁻¹]	k_{att2} [day ⁻¹]	k_{det2} [day ⁻¹]	μ_l [day ⁻¹]	μ_s [day ⁻¹]	λ [day ⁻¹]	$-\log_{10} \frac{C_x}{C_0}$
W1	23	0.0055	8.11	4.54	0.26	0.026	19	0.39
W2	20	0.17	176	147	0	0.056	5	0.082
W3	79	0.011	139	122	1.0	1.84	79	1.5
L1	132	0.0046	17.6	1.22	0.24	0.24	132	3.1
L2	38	0.019	20	2.5	0.34	0.45	38	1.4
L3	53	0.0079	30	4.0	0.34	0.34	53	1.8
L4	48	0.013	16	3.2	0.34	0.34	48	1.6
D1	110	0.0034	29	5.5	0.17	0.17	110	3.1
D2	89	0.00054	16	2.2	0.16	0.16	90	2.5
D3	129	0.032	55	13	0.36	0.36	121	3.3
G1	35	0.00019	0	0	0.23	0.23	35	1.5
G2	14	0.023	0	0	0.02	0.02	7	0.3

Table 3 Parameter values from fitting the ECWR1 breakthrough curves to the two-site kinetic model and calculated removal $-\log_{10} C_x/C_0$ (equations 4 and 5).

Experiment	k_{att1} [day ⁻¹]	k_{det1} [day ⁻¹]	k_{att2} [day ⁻¹]	k_{det2} [day ⁻¹]	μ_l [day ⁻¹]	μ_s [day ⁻¹]	λ [day ⁻¹]	$-\log_{10} \frac{C_x}{C_0}$
W1	102	0.035	94	3.1	0.07	0.07	70	1.4
W2	138	0.15	64	67	0.00	0.35	96	0.94
W3	190	0.12	128	66	0.61	0.62	161	3.0
L2	61	0.047	22	3.6	0.34	0.34	55	2.0
L3	123	0.044	145	152	0.34	0.34	110	3.6
L4	82	0.045	22	5.8	0.31	0.31	74	2.4
L5	177	0.041	63	5.1	0.33	0.33	161	4.3
D1	186	0.043	89	11	0.33	0.33	167	4.5
D2	118	0.12	52	26	0.18	0.78	104	2.9
D3	211	0.032	45	3.8	0.28	0.28	192	5.1
G1	60	0	0	0	0.17	0.17	60	2.5
G2	37	0.17	0	0	0.30	0.30	24	1.1

Table 4 Estimated values of α , f_0 and f_1 for MS2 and ECWR1.

		Mean	Standard deviation		
f_0		2.1×10^{-4}	4.3×10^{-6}		
f_1		9.9×10^{-2}	6.0×10^{-3}		
	Filter	MS2		ECWR1	
		Mean	Standard deviation	Mean	Standard deviation
α	W+L	9.2×10^{-3}	2.2×10^{-4}	1.5×10^{-1}	6.7×10^{-3}
	D	4.4×10^{-2}	8.8×10^{-3}	7.1×10^{-1}	1.1×10^{-2}
	G	5.6×10^{-3}	7.8×10^{-4}	5.2×10^{-2}	2.6×10^{-3}

Standard deviation from leave-one-out cross-validation; Root mean square error is 0.30.

Bijlage 3: aanvullende overwegingen bij het procesmodel

Door Waternet

Verwijdering van MS2 en *E. coli* WR1 geschiedt ten gevolge van hechting aan het zand en de werking van de Schmutzdecke. De werking van de Schmutzdecke nam toe met de leeftijd, hogere zogenaamde sticking efficiëntie voor hechting, hogere temperatuur en fijner zand. De werking van de Schmutzdecke werd gemodelleerd als een logistische groeifunctie met schaalfactor f_0 and snelheidscoëfficiënt f_1 . Vergelijking (1) toont het rekenmodel voor LZF:

$$\ln \frac{C}{C_0} = -\frac{3}{2} \frac{1-n}{d_c} \left(\alpha \eta_{0,d_p,d_c,u,T,n} z + f_0 T (1 - e^{-\alpha f_1 a}) \right) \quad (1)$$

hierin is a de sticking efficiëntie, d_c de korreldiameter van het zand (collector), [m], d_p de diameter van het micro-organisme, [m], u is de filtratiesnelheid [m.dag⁻¹], T is de watertemperatuur, [°C], z de filterbed diepte, [m], n de porositeit en $\eta_{0,d_p,d_c,u,T,n}$ de botsingsefficiëntie. De indexen duiden dat de botsingsefficiëntie een functie is van dp , dc , u , T , n . f_0 is een schaalfactor, [m °C⁻¹], f_1 een snelheidscoëfficiënt, [dag⁻¹], en a is de Schmutzdecke leeftijd, [dag].

Tabel 1. Modelparameters diverse locaties

Modelparameters <i>bac. Faag MS2</i>	<i>Leiduin</i>	<i>Dunea</i>	<i>Weesperkarspel</i>	<i>Groningen</i>
α	0,0074	0,041	0,0074	0,0033
f_0	0,000092	0,000092	0,000092	0,000092
f_1	1,5	1,5	1,5	1,5
Modelparameters <i>E.coli WR1</i>				
α	0,16	0,72	0,16	0,058
f_0	0,00021	0,00021	0,00021	0,00021
f_1	0,086	0,086	0,086	0,086

Als een hoge α kan worden verkregen, zou dit de eliminatiecapaciteit sterk verhogen.

Pompstation Weesperkarspel heeft zand met dezelfde diameter (d_{50}) als Dunea. Het Dunea zand heeft echter een veel hogere α (= sticking efficiency).

Om die reden is het noodzakelijk om uit te zoeken of de hoge α -waarde van het Duneazand wordt veroorzaakt door de hoge Fe-/Al-/Mn-oxalaat concentraties. Als dit inderdaad zo is, zou het Dunea zand op pompstation Weesperkarspel de voorkeur verdienen.

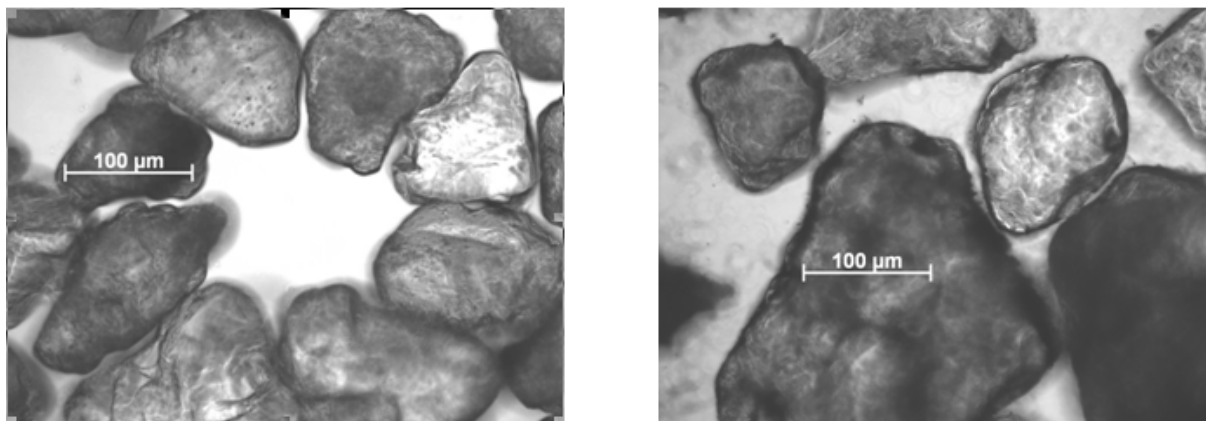
De sticking efficiency α vertegenwoordigt de fractie deeltjes die op de collector botsen en vervolgens aan de collector hechten en is derhalve het netto effect van de afstotende en aantrekkende krachten tussen de oppervlakken van collector en colloïde en hangt af van hun oppervlakte-eigenschappen. Aldus hangt α af van pH, organisch koolstofgehalte, ionsterkte en ionsamenstelling. Aangenomen wordt dat α onafhankelijk is van hydrodynamische effecten (snelheid en dispersie). (RIVM rapport 330204002/2008)

Verklaringen voor de hogere sticking efficiency α van het Dunea-filter, die in eerdere RIVM-rapporten zijn gegeven: Hoewel het zand van DZH grover is dan dat van Leiduin is verwijdering door DZH-zand waarschijnlijk gelijk of hoger doordat er meer ijzeroxiden in aanwezig zijn dan in Waternetzand (zie tabel 2, RIVM rapport 330204001/2008).

Tabel 2. Chemische analyse diverse soorten zand.

	<i>Leiduin</i>	<i>WPK</i>	<i>Dunea</i>
Korrelgrootte (D_{50})	0,27	0,54	0,56
Uniformiteitscoefficient.(D_{60}/D_{10})	2,5	1,7	1,75
Al-oxalaat mg/kg drooggewicht	80	280-350	395
Fe-oxalaat mg/kg drooggewicht	27	1170-1305	3035
Mn-oxalaat mg/kg drooggewicht	0,25	27-39	127
f_{oc} (%)	0,30	0,04-0,08	0,20
$CaCO_3$ mg/kg drooggewicht	0	165-865	800

Visuele inspectie door een fasecontrastmicroscop (Zeiss) toonde dat de zandkorrels van DZH meer afgerond waren dan die van Waternet (Figuur 1).



Figuur 1. Fasecontrastopnamen van zandkorrels van Leiduin (a) en Dunea (b). (RIVM rapport 330204001/2008)

Hierop kan worden geconcludeerd dat de oppervlakken van DZH-zand niet ruwer zijn dan die van Leiduinzand. Aldus kan meer verwijdering in DZH-zand niet worden verklaard door verschil in ruwheid. (RIVM rapport 330204001/2008)

De zetapotential van de behandelde en onbehandelde zandmonsters van Leiduin, Scheveningen (=Dunea) en Weesperkarspel waren nagenoeg gelijk en ook vergelijkbaar met die van het pure kwartzand. (range -32 tot -51 mV, RIVM rapport 330204001/2008)

Dat houdt in dat er op de zandoppervlakken geen metaaloxides waren als plaatsen met positieve lading (Foppen en Schijven, 2005). Op grond daarvan is er sprake van ongunstige condities voor hechting van de negatief geladen micro-organismen door elektrostatische afstoting (Schijven 2001).

Echter, als gevolg van roosterimperfecties van de zandkorrels, kan er toch nog sprake zijn van heterogeen verdeelde elektrische lading van de korreloppervlakken. De zetapotential geeft de totale lading van een deeltje, maar niet de ladingsverdeling op het oppervlak. De eventuele aanwezigheid van deze roosterimperfecties kunnen leiden tot significante hechting (Ryan et al, 1999)

De zeta potentialen van de micro-organismen waren in het algemeen sterker negatief in het water na ozonisatie en actief koolfiltratie dan in het snelfiltraat en nog negatiever als er ook onthard is. Dit zou in kunnen houden dat in de langzame zandfiltratie na ozonisatie, ontharding en actief koolfiltratie minder hechting op kan treden. Dit zou ook een (gedeeltelijke verklaring) kunnen zijn voor de hogere waarde van α (= sticking efficiency) bij het Dunea-filter.

Het influentwater van het Dunea-filter te Leiduin heeft een hoger DOC-gehalte dan het Waternet filter te Leiduin, hetgeen de α (= sticking efficiency) verlaagt.

Uit literatuuronderzoek (eind van deze bijlage) t.a.v. gecoat zand blijkt dat het effect van metaaloxiden/hydroxiden ten aanzien van virus- en bacterieverwijdering door middel van hechting in de beginperiode van de zandkolomproeven zeer groot is, maar na ongeveer 6 weken geheel is

verdwenen, doordat de beschikbare hechtingsplaatsen zijn ingenomen door humuszuren, fosfaationen en biofilm in het algemeen (literatuuronderzoek).

Het Dunea-filter geplaatst in Leiduin heeft een hoge verwijdering door verstopping van het filter, waardoor naast predatie door de hogere temperatuur ook **zeefwerking** als mechanisme van groot belang wordt.

Verschil in opstelling van de diverse langzame zandfilters:

Voortraject influent Proefinstallatie Leiduin/Waternet:

Oranjekom/snefiltratie/ozon/actief koolfiltratie/LZF DOC 1,5 (1,3-1,8) mg/l, troebelheid 0,1 (0,008-0,26) FTE

Voortraject influent Proefinstallatie Leiduin/Dunea:

Oranjekom/snefiltratie/LZF DOC 2,1 (1,7-2,7) mg/l, troebelheid 0,7 (0,2-4,0) FTE

Voortraject influent Proefinstallatie Weesperkarspel/Waternet:

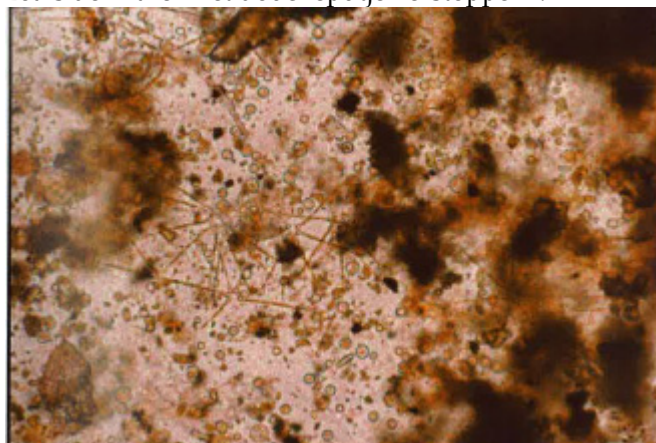
Waterleidingplas/snefiltratie/ontharding/ozon/actief koolfiltratie/LZF DOC 3,0 (1,7-3,4) mg/l troebelheid 0,31 (0,10-1,9) FTE

Bij het verstopping van het filter loopt de bedweerstand op, totdat er niet genoeg water meer door het filter kan lopen en de bovenste verstopte laag (2-3 cm) weggehaald (=gekrabd) moet worden om dit te verhelpen. Als een watermolecuul al moeite heeft door de verstopping heen te dringen, zal het voor een micro-organisme helemaal moeilijk worden. Een voorbeeld: Als de watertemperatuur in het voorjaar/najaar rond de 10°C ligt is er een diatomeeënbloei (materiaal silicium, dit is materiaal wat niet snel vergaat en dus een blijvende verstopping zal veroorzaken; Figuur 2).

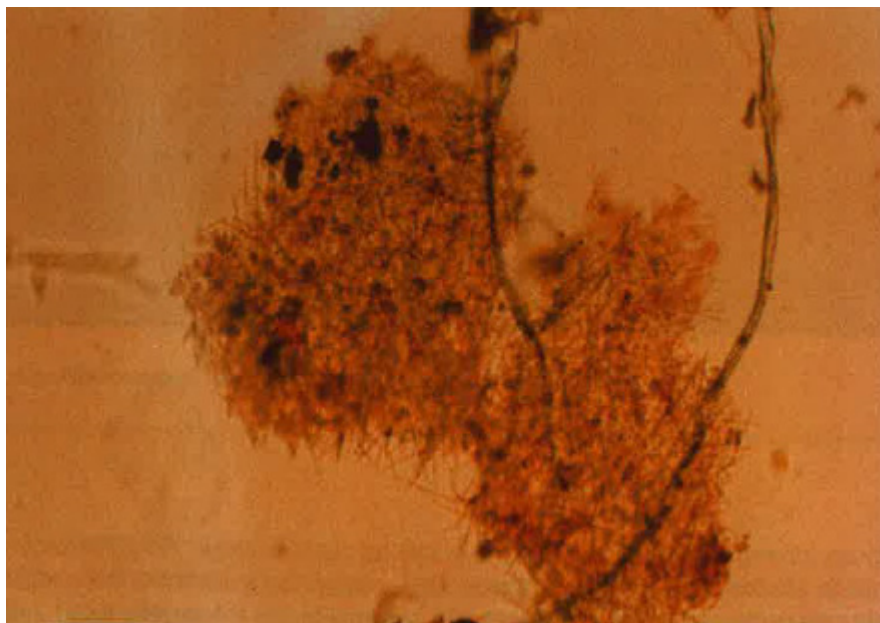


Figuur 2. Diatomeeën; Asterionella (stervormig) en Fragilaria ("matje")

Deze diatomeeën worden in de Waternetopstelling afgevangen door de koolfiltratie en met terugspoelen van de koolfiltratie weer verwijderd, zie figuur 3 en 4, (Dullemont, 1997) maar bij de Dunea-opstelling komen deze diatomeeën rechtstreeks op het langzame zandfilter terecht en verstopping zo het filter net zoals de "haren het doucheputje verstopping".



Figuur 3. microscopisch beeld van het terugspoelwater van de koolfilters. (de kleine rondjes zijn centrale diatomeeën).



Figuur 4. Microscopisch beeld van stukje vervuiling van de bovenste laag van een “verstopt” koolfilter, waarvan de bedweerstand te hoog opliep.

De aan elkaar gekoekte diatomeeën vormen letterlijk een microscopische zeef. Het verschil in belasting van de langzame zandfilters door diatomeeën tussen het Dunea filter en het Waternet filter in de betreffende periode van de experimenten is opgevraagd in LIMS en is als volgt:

Tabel 3. Belasting door diatomeeën van diverse langzame zandfilters.

<i>Influent na SF</i>	<i>Dunea-filter</i>	<i>Influent na AKF</i>	<i>Waternet-filter</i>
Datum	Aantal (n/l)	Datum	Aantal (n/l)
07-02-2005	90592		
21-02-2005	931	16-02-2005	0
07-03-2005	38879		
21-03-2005	376512	16-03-2005	189
24-03-2005	362175	24-03-2005	155
29-03-2005	20371	29-03-2005	200
04-04-2005	2841	04-04-2005	0
18-04-2005	888	13-04-2005	88
02-05-2005	332		
23-05-2005	289	11-05-2005	22
30-05-2005	1841		

De extra belasting van het Dunea filter wordt naast diatomeeën ook veroorzaakt door andere soorten algen, detritus etc. Dit is de reden dat de bedweerstand van het Dunea-filter veel sneller oploopt dan de bedweerstand van het Waternet-filter.

Tabel 4. Vergelijking Leeftijd Schmutzdecke en bedweerstand

		<i>Schmutzdecke (dagen)</i>	<i>Bedweerstand (cm waterkolom)</i>
21-03-2005	Dunea-filter	137	75
31-01-2005	Waternet-filter	1105	37

Binnen één langzame zandfilter in een vaste zuiveringsopstelling loopt de bedweerstand geleidelijk op gedurende de tijd als we het verschil in viscositeit van het water tijdens de temperatuurswijziging negeren, echter tussen langzame zandfilters in verschillende zuiveringsopstellingen kan een aanmerkelijk verschil ontstaan door verschil in belasting van het filter.

Om deze reden is bedweerstand een betere parameter om de langzame zandfilters onderling te vergelijken en is deze parameter ook te prefereren in het rekenmodel boven "leeftijd Schmutzdecke".

Conclusie

De hoge waarde α zou worden veroorzaakt door de hoge metaaloxalaat-concentraties in het Dunea-zand. Uit de literatuur blijkt dat dit effect na enkele weken is tenietgedaan. De opgelopen zeefwerking door de verstopping van het Dunea-filter heeft geleid tot een hogere sticking efficiency α , en dat het een oneigenlijke verdiscontering is. Dat betekent dat de uitgangspunten van het model niet goed gekozen zijn. Door de vrijheidsgraden in het model is het met het model wel goed mogelijk de data goed te beschrijven, maar is het gevaar dat conclusies uit het model leiden tot verkeerde keuzen.

Dit ondermijnt het vertrouwen in het huidige model.

De voorkeur van Waternet gaat uit naar een modelvergelijking waarin het tweede "Schmutzdeckegedeelte" wordt onderverdeeld in twee componenten:

- 1) een temperatuursafhankelijke predatie component
- 2) een bedweerstandsafhankelijke zeefwerkingscomponent.

Literatuuronderzoek Waternet

Het effect van een hoog metaaloxide gehalte van het zand:

Verwijdering van fijne deeltjes zoals bacteriën en virussen bij filtratie is moeilijk, aangezien deze colloïden een negatieve lading hebben in de pH range van natuurlijke wateren en de meeste filtermedia eveneens negatief geladen zijn in deze pH-range.

Coatings van metaaloxiden/hydroxiden op filtermateriaal bevorderen de verwijdering van bacteriën en virussen. De primaire functie van de coating is het meer electropositief maken van het oppervlak van de filtermedia waardoor de colloïdale hechting vergemakkelijkt wordt.

Lukasik (1999) vond dat als de zetapotential van diatomeeënnaarde door coating tot -10mV kan worden verhoogd de verwijdering van drie soorten testfagen groter dan 2,5 logeenheden wordt.

In een vervolg vergelijkings onderzoek met kolommen gevuld met ongecoat en gecoat zand vond Lukasik (1999) dat in eerste instantie de kolommen met gecoat zand een grote verwijdering gaven, voor zowel MS2 als voor E.coli 5 logeenheden, echter aan het eind van de test na 192 liter influent (48 dagen) waren er geen significante verschillen meer tussen gecoat zand en ongecoat zand ten aanzien van de verwijdering van E.coli en poliovirus. Dit werd geweten aan organisch materiaal en gesuspenderde stoffen. Wel werd MS2 met drie logeenheden, nog wel beter door het gecoate zand verwijderd.

Als gecoat filtermateriaal in gebruik wordt genomen, wordt het oppervlak met metaalhydroxiden blootgesteld aan desintegratie, afslijten door wrijving, verandering in oppervlak en ruwheid en chemische- en biologische fouling/verstopping, hetgeen de interactie tussen het oppervlak en colloïden kan beïnvloeden (Chen 1998).

Chen (1998) deed een lange termijn-evaluatie inzake de verwijdering van *E. coli* in kolom experimenten met aluminium-hydroxide gecoat zand:

De zeta-potential van $\text{Al}(\text{OH})_3$ -coated zand voor blootstelling aan afvalwater, was beduidend hoger dan dat van ongecoat zand (+20mV vs -90mV)

Zeta-potential van het gecoate zand nam af tot een range van -50 tot -65 mV na 1 dag van blootstelling en verlaagde verder tot onder -70mV na de twee opvolgende weken.

Vervolgens werd de zeta-potential iets minder negatief hetgeen samenhang met de ontwikkeling van biologische groei. (de zeta potential van bacteriën ligt tussen -10 tot -60 mV)

De resultaten gaven een toenemende achteruitgang in de verwijderingscapaciteit van het gecoate zand t.o.v. het ongecoat zand over een periode van 118 dagen. Biologische groei op het filtermedia verergerde de achteruitgang. Eindconclusie: Er werd geen duidelijke correlatie gevonden tussen metaalgehalte of zetapotential en bacteriele verwijderingscapaciteit.

Park (2009): Bacteriële interacties met metaal-oxide gecoate media kunnen worden beïnvloed door organisch materiaal.

Humuszuren en fulvinezuren welke belangrijke onderdelen zijn van NOM kunnen sterk adsorberen aan metaaloxides door oppervlakte complexatie.

Bacteriële binding aan metaaloxide gecoate media kunnen worden verminderd in de aanwezigheid van NOM.

Zowel bacteriën als humuszuren hebben carboxyl groepen op hun oppervlak en daarom kan de hechting aan ijzer gecoat zand worden verklaard door een ligand uitwisselings proces.

De scherpe daling in bacteriële hechting aan het gecoate zand in de aanwezigheid van humuszuren kan worden toegeschreven aan het in beslag genomen zijn van geschikte adsorptie plaatsen aan het gecoate zand door humuszuren door middel van concurrerende adsorptie.

Fosfaationen werken volgens hetzelfde principe maar het effect is veel minder dan bij humuszuren.

Humuszuren kunnen de negatieve lading van bacteriën versterken wanneer ze kleven aan de bacteriële oppervlakken door hydrofobe interactie. Dit resulteert in een versterking van de elektrostatische afstoting tussen bacteriën en gewoon kwartszand, waardoor de verwijdering door het gewone kwartszand vermindert.

Literatuur

Chen, J., S. Truesdail, F. Lu, G. Zhan, C. Belvin, B. Koopman, S. Farrah and D. Shah, 1998, Long-Term Evaluation of Aluminum Hydroxide-coated Sand for Removal of Bacteria From Wastewater, Water Research, Volume 32, No.7, pp 2171-2179.

Dullemont, Y.J., 1997, Van plas tot pomp, een hydrobiologische evaluatie t.a.v. de invoering van de koelfiltratie in 1992 bij de Plassenwaterleiding, intern GWA-rapport.

Foppen, J.W.A en J.F.Schijven, 2005, Transport of E.coli in columns of geochemically heterogeneous sediment, Water Research, vol.39, pp3082-3088.

Lukasik, J., et al, 1999, Adsorption of microorganisms to sand and diatomaceous earth particles coated with metallic hydroxides, KONA no. 14, pp. 87-91.

Lukasik et al., 1999, Removal of microorganisms from water by columns containing sand coated with ferric and aluminium hydroxides, Water Research Vol. 33, No. 3 pp. 769-777.

Park, S. en S. Kim, 2009, Adhesion of *Escherichia coli* to Iron-Coated Sand in the Presence of Humic Acid; A Column Experiment. Water Environment Research, Volume 81, Number 2.

Ryan et al, 1999, Bacteriophage PRD1 and Silica Colloid Transport and Recovery in an Iron Oxide Coated Sand Aquifer, Environmental Science & Technology, vol.33, pp. 63-73.

Schijven, J.F. et al, 2008, Verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie, RIVM rapport 330204001.

Schijven, J.F. et al, 2008, Effect filtratiesnelheid, temperatuur en korrelgrootte op de verwijdering van micro-organismen door langzame zandfiltratie, RIVM rapport 330204002.

Bijlage 4: gegevens over predatie snelheden

Bron: Dullemont 2012

Hoofdgroep (n/l)	prey, size	Grazing rate (bact.*ind. ⁻¹ .h ⁻¹)	Literatuur
<i>gymnamoebias</i>	E.coli/S.aureus/P.aeruginosa/ K.aerogenes/K.ozaenae	405	Pickup, 2007
<i>harpacticoida</i>	Sewage E.coli isolate	42	Epstein,1992
<i>naupliuslarven</i>	Sewage E.coli isolate	33	Epstein,1992
<i>nematoda</i>	Sewage E.coli isolate	21	Epstein,1992
<i>amoeben</i>		2	estimation
<i>wimperdieren</i>	bacteria	388	Ayo,Sherr,Albright,DeCamp, Kuppardt,Sanders,Epstein,King
<i>Brachionus sp</i>	rod shaped 0.5x1.5 µm	880	Ooms,1995
<i>Bracionus calyciflorus</i>	rod shaped 0.5x1.5 µm	880	Ooms,1995
<i>Conochilus unicornis</i>	rod shaped 0.5x1.5 µm	11600	Ooms,1995
<i>Filinia sp</i>	rod shaped(0.5x1.5) and (0.4x0.8-1.0) µm	1970	Ooms,1993,1995/Sanders 1989
<i>Keratella coclearis</i>	2µm-beads/rod shaped 0,5x1,5µm	185	Ronneberger 1998/Ooms 1995
<i>Keratella quadrata</i>	2µm-beads	280	Ronneberger, 1998
<i>Keratella sp</i>		232	gemiddelde
<i>Polyartra sp</i>	2µm-beads	125	Ronneberger, 1998
<i>Pompholyx sp</i>	microspheres 0,5 µm	525	Agasild,2005
<i>Synchaeta</i>	2µm-beads	260	Ronneberger, 1998
<i>ciliaten</i>	bacteria	950	Ayo 2001,Sherr 1987
<i>Vorticella sp</i>	0.57µm/rods 0.4 x 0.8-1.0 µm	386	Sanders,1989
<i>Bosmina sp</i>	0.5, 3 en 6 µm microspheres	1254	Ooms,1995/ Agasild, 2005
<i>Chydorus sp</i>	0.5, 3 en 6 µm microspheres	1561	Ooms,1995/ Agasild, 2005
<i>Daphnia sp.*</i>	0.5, 3 en 6 µm microspheres	4440	Ooms,1995/ Agasild, 2005
<i>Daphnia ambigua</i>	Corynebacterium/Staphylococcus	4550	King, 1991

