



Wim Hijnen, KWR Watercycle Research Institute
 Trudy Suylen, Evides
 Jan Bahlman, Evides
 Gert Jan Medema, KWR Watercycle Research Institute

Actievekoolfiltratie als barrière voor micro-organismen in drinkwaterbereiding

Filtratieonderzoek onder condities die zoveel mogelijk overeenkomen met de drinkwaterpraktijk heeft laten zien dat actievekoolfiltratie een belangrijke bijdrage kan leveren aan de verwijdering van *Cryptosporidium* en *Giardia* bij de drinkwaterbereiding. Het proces levert een bescheiden bijdrage aan de verwijdering van pathogene bacteriën en verwijdert vrijwel geen virussen. Deze gegevens, die binnen het bedrijfstakonderzoek voor de drinkwaterbedrijven zijn verzameld, leverden aanvullende informatie op voor de eerste voorlopige analyse van de microbiologische veiligheid van drinkwater van de productielocatie Kralingen van Evides.

Het Waterleidingbesluit vraagt van (oppervlakte)waterbedrijven dat zij met een kwantitatieve microbiologische risicoanalyse aantonen dat de concentratie pathogene micro-organismen in het drinkwater zo laag is, dat het infectierisico beneden 10^{-4} per consument per jaar blijft. Voor een dergelijke analyse is kwantitatieve informatie nodig over de aanwezigheid van pathogenen in het ruwe water en over de verwijdering hiervan tijdens zuiveringsprocessen.

Evides past op al zijn zuiveringlocaties actievekoolfiltratie toe. Over de bijdrage van dit filtratieproces als barrière voor ziekteverwekkende micro-organismen in de zuivering zijn weinig kwantitatieve gegevens bekend. Dit bleek bij het uitvoeren van de eerste door de wet verplichte analyse van de microbiologische veiligheid van drinkwater van de oppervlaktewaterzuivering van Evides¹⁾.

Daarom is in het bedrijfstakonderzoek ook gekeken naar de effectiviteit van dit proces²⁾. De resultaten hiervan zijn toegepast bij de analyse van de productielocatie Kralingen³⁾.

Microbiologische veiligheid Kralingen

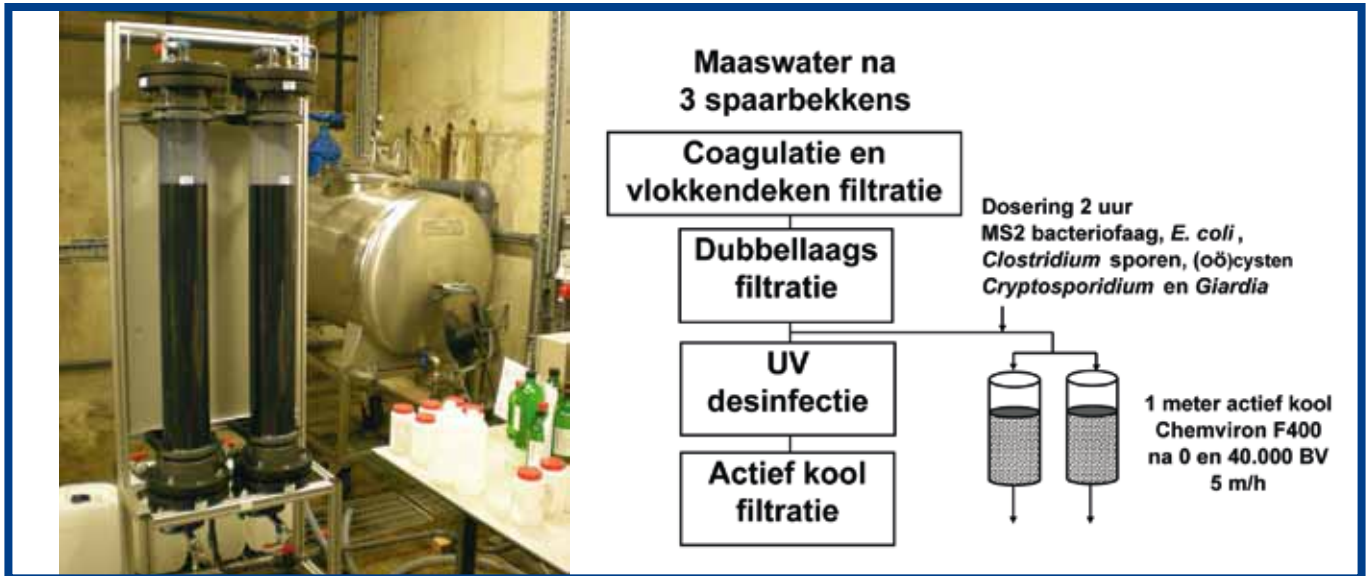
De productielocatie Kralingen bereidt drinkwater uit voorgezuiverd Maaswater uit de spaarbekkens in de Brabantse Biesbosch. Het zuiveringsproces bestaat uit achtereenvolgens coagulatie/vlokverwijdering, ozonisatie (concentratie x contacttijd van 0,5 tot 1,5 mg/l.min.), dubbellaagsfiltratie met inline ijzerdosering (directe filtratie), actievekoolfiltratie en nadesinfectie (2 tot 3 mg/l.min.). Voor de analyse van de microbiologische veiligheid van het water zijn de aantallen ziekteverwekkers (index-pathogenen) gekwantificeerd in het ruwe water. Uit het verschil met de vereiste drinkwaterconcentratie voor een jaarlijks

infectierisico van 10^{-4} per persoon per jaar⁴⁾ is de benodigde decimale eliminatiecapaciteit (DEC_{10}) berekend (zie tabel 1).

De DEC_{10} -waarden zijn vergeleken met de eliminatie in de zuivering (DEC_2) die is gekwantificeerd op basis van de verwijdering van indicatorbacteriën. Uit de gegevens van de indicatorbacteriën (over een periode van vijf jaar) bleek dat *E. coli* en sporen van sulfietreducerende *clostridia* (SSRC) met enige regelmaat werden aangetroffen in het gezoniseerde water. De percentages positieve monsters bedroegen respectievelijk 0,3 en 12 procent. In het vervolg van de zuivering waren deze percentages echter erg laag. De beoordeling van zowel de directe filtratie als de koolfilters met chloor was gebaseerd op een zeer laag aantal positieve monsters. Na actievekoolfiltratie + chloorbleekloog was één van de 1.821 monsters (0,05 procent)

Tabel 1: De resultaten van de analyse van de microbiologische veiligheid (puntschatting) van de drinkwaterproductielocatie Kralingen³⁾; de benodigde DEC_{10} (pathogenen in de grondstof) en de gerealiseerde gemiddelde verwijdering (DEC_2) op grond van gegevens over de indicatorbacteriën van Evides.

index-pathogeen	DEC_{10}	procesindicator	coagulatie + ozon + directe filtratie	actievekoolfiltratie + chloorbleekloog	DEC_2
enterovirussen	3,2	(<i>E. coli</i>)	(3,8)	(0,9)	(4,7)
<i>Campylobacter</i>	7,2	<i>E. coli</i>	3,8	0,9	4,7
<i>Cryptosporidium</i>	4,3	SSRC	2,5	0,5	3,0
<i>Giardia</i>	4,7	SSRC	2,5	0,5	3,0



Afb. 1: De proefopstelling met actieve kool en het processchema van het onderzoek op de locatie Berenplaat (BV = bedvolume).

voor *E. coli* en twee van de 261 monsters (0,8 procent) voor SSRC positief.

Op grond van deze gegevens bleek de zuiveringscapaciteit tekort te komen voor *Campylobacter* en de protozoa (zie tabel 1). Daarnaast is de virusverwijdering mogelijk overschat vanwege het gebruik van *E. coli* als procesindicator. Het lage percentage monsters met het standaard volume van 100 ml na toepassing van directe filtratie, actiefkoolfiltratie en chloorbleekloog maakt de schatting van DEC₂ onnauwkeurig. De mogelijkheid om grotere volumes te meten⁵ is op deze locatie niet toegepast. Daarom zijn literatuurgegevens⁶ gebruikt om de DEC van deze processen beter te onderbouwen. Wanneer voor de directe filtratie literatuurgegevens worden gebruikt, neemt de DEC₂ voor de virussen, *Campylobacter* en de protozoa toe tot respectievelijk 5,6, 6,1 en 5,2 log. Wanneer voor *Campylobacter* de effectiviteit van chloor ook wordt gebaseerd op de literatuur⁷, neemt de DEC₂ voor deze pathogeen toe tot 8,1 log. Voor actiefkoolfiltratie waren geen bruikbare gegevens te vinden in de literatuur.

Uit deze voorlopige risicoanalyse blijkt dat het gebruik van de indicatorbacteriën als procesindicator, gemeten met de standaardvolumes van 100 ml, ontoereikend is voor een analyse van de microbiologische veiligheid van een volledige zuivering. Daarvoor zijn aanvullende gegevens nodig.

Effectiviteit actiefkoolfiltratie

Naast de behoefte aan kennis over de effectiviteit van actiefkoolfiltratie bestond behoefte aan verificatie van vertaalbaarheid van SSRC-gegevens naar de verwijdering van protozoën. Met een filtratieopstelling bestaand uit twee kolommen met actieve kool werden doseerproeven onder praktijkcondities uitgevoerd op productielocatie Berenplaat van Evides. Hierbij was evenals in Kralingen Biesboschwater de bron. Het verschil tussen beide zuiveringen is dat bij Berenplaat geen ozonisatie plaatsvindt tussen coagulatie en dubbellaagsfiltratie.

De verwijdering van de natuurlijke *E. coli* en SSRC in het aangevoerde water is bepaald door metingen in grote volumes met de HemoFlow⁸. Vervolgens zijn doseerproeven uitgevoerd met voorgekweekte MS2-bacteriofagen, *E. coli*, sporen van *Clostridium bifermentans* en (oö)cysten van *Cryptosporidium* en *Giardia*. Hoge concentraties (10⁶-10⁷ fagen, 600-1000 bacteriën en sporen en 50-100 (oö)cysten per ml) werden gedurende twee uur aan het influent van beide kolommen gedoseerd. In de eerste uren tijdens en na de dosering werd het effluent intensief onderzocht op de concentratie van de gedoseerde micro-organismen. In de daarop volgende vijf dagen werd de nalevering van de gedoseerde micro-organismen bepaald. De resultaten van de proeven zijn in 2010 uitvoerig beschreven in Water Research².

Verwijdering micro-organismen

In het filtraat van de dubbellaagsfilters van de zuivering, het influent van de opstelling (afbeelding 1), werden lage concentraties *E. coli* (1,35-2,18 kolonievormende deeltjes per liter) en SSRC (0,06-2,25 kvd/l) gevonden die met 0,5-1,1 log werden verwijderd door de koolfilters (zie tabel 2). Opvallend was de waarneming dat deze verwijdering hoger

was dan waargenomen voor de voorgekweekte en gedoseerde indicatorbacteriën. Met de verse kool werd *E. coli* niet verwijderd (zie afbeelding 2). De beladen kool toonde een DEC van 0,3 log (zie tabel 2) voor deze bacteriën. Sporen van *C. bifermentans* werden door beide koolsoorten met circa 0,4 log verwijderd. Een mogelijke reden voor het verschil tussen gedoseerde en natuurlijke micro-organismen is dat de natuurlijke organismen een coagulatie met ijzerdosering hebben gepasseerd en daardoor gunstigere oppervlakte-eigenschappen hebben voor de hechting aan de kool.

Bij de doseerproef met beide koolsoorten werden MS2-fagen niet verwijderd. Dit leidt tot de conclusie dat adsorptieve actiefkoolfiltratie voor virussen geen serieuze barrière vormt. Het is echter mogelijk dat ook voor deze micro-organismen de verwijdering verbetert wanneer voorafgaand aan het proces een coagulatiestap wordt ingevoerd. Daarnaast laat deze proef zien dat met *E. coli* als procesindicator de virusverwijdering door dit proces wordt overschat. De verwijdering van de (oö)cysten van *Cryptosporidium* en *Giardia* (afbeelding 2) was aanzienlijk. In de verse actieve kool werden oöcysten van *Cryptosporidium* met 2,7 log verwijderd. In

Tabel 2: De decimale eliminatiecapaciteit van de koolfilters met verse en beladen kool voor natuurlijke indicatorbacteriën en gedoseerde micro-organismen.

organismen	verse kool (log) (kolom 1, kolom 2)	beladen kool (log) (kolom 1, kolom 2)
MS2-fagen	0,0; 0,0	0,0; 0,0
natuurlijke <i>E. coli</i>	0,5 (± 0,1)*	1,1 (± 0,1)*
<i>E. coli</i>	0,0; 0,1	0,3; 0,3
natuurlijke SSRC	0,9 (± 0,4)*	0,8 (± 0,3)*
<i>C. bifermentans</i>	0,4; 0,6	0,4; 0,4
<i>Cryptosporidium</i>	2,7; 2,7	1,3; 1,1
<i>Giardia</i>	2,1; 2,0	2,1; 2,2

* = natuurlijke indicatorbacteriën, ± SD, n = 4.

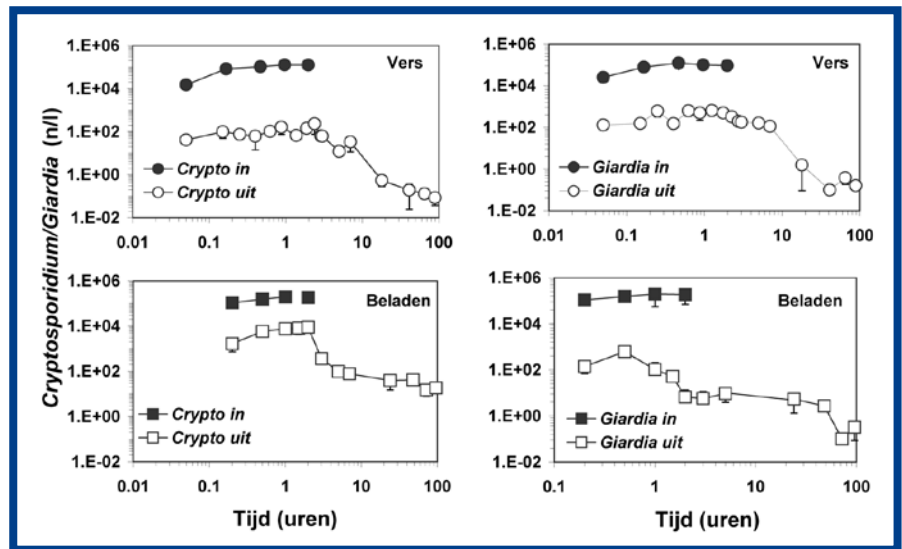
de kolommen met beladen kool was dat gemiddeld 1,2 log (tabel 2). De verwijdering van de gedoseerde cysten van *Giardia* in beide koolsoorten was 2,0 log. Een vergelijking met de gegevens over de anaerobe sporen laat zien dat deze indicatorbacteriën een te conservatief beeld schetsen voor de protozoënverwijdering in actiefkoolfilters. Dit is eerder beschreven voor langzame zandfilters⁶.

Praktijk bij Evides

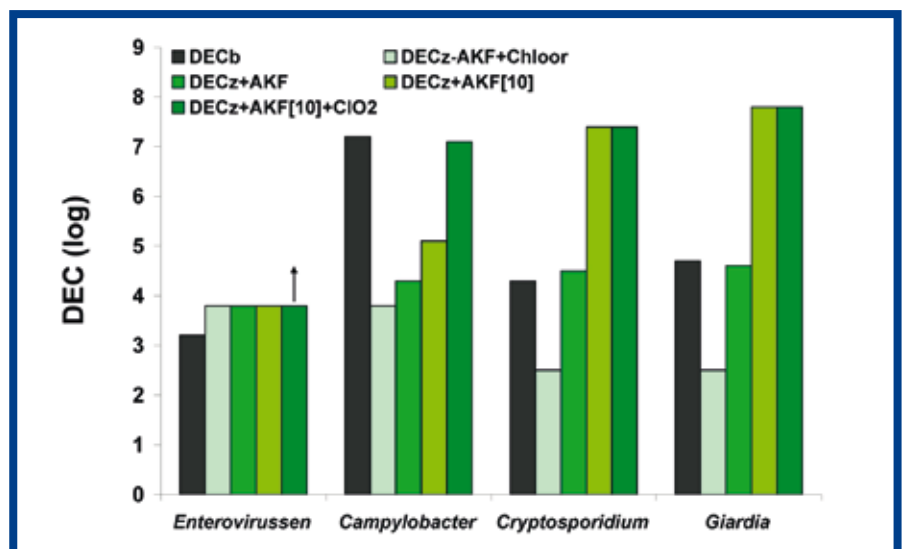
Met de aanvullende gegevens over de actiefkoolfiltratie van de proefinstallatie kan voor de analyse van de microbiologische veiligheid van het drinkwater het beeld van de effectiviteit van de zuivering worden aangevuld (zie afbeelding 3). Het nadesinfectieproces met chloorbleekloog is in 2005 vervangen door een nadesinfectie met chloordioxide met een Ct-waarde van één milligram per liter per minuut. Voor dit proces kan op basis van literatuur⁹ dezelfde effectiviteit worden aangenomen voor *Campylobacter* als voor de desinfectie met chloor die hiervoor is beschreven⁷.

De doseerproeven zijn uitgevoerd met de actieve kool die bij Evides in de praktijkfilters wordt gebruikt, maar de filtratiecondities van de praktijk konden niet volledig worden nagebootst. De kolommen hadden een hoogte van één meter en werden met vijf meter per uur en zonder spoeling bedreven. De praktijkfilters hebben een bedhoogte van totaal vier meter. Ze worden met een gemiddelde snelheid van 15 meter per uur bedreven en met enige regelmaat gespoeld. De contacttijd in de proef- en praktijkinstallatie is goed vergelijkbaar (twaalf versus 15 minuten). Wanneer wordt aangenomen dat de verwijdering in de doseerproeven voornamelijk plaatsvindt door hechting, kan met het colloïd-filtratiemodel¹⁰ de verwijdering in de praktijkfilters worden berekend. Uitgangspunt hierbij is dat de DEC evenredig is met de beddikte en afhankelijk is van de filtratiesnelheid, zoals afgeleid door Yao *et al*¹⁰. Voor de verwijdering van *Campylobacter*, *Cryptosporidium* en *Giardia* wordt voor de praktijkfilters op basis van deze aannamen een gemiddelde DEC van respectievelijk 1,3, 4,9 en 5,3 log geschat. Met deze waarde neemt de DEC_z+ actiefkoolfiltratie + chloorbleekloog voor *Campylobacter* verder toe tot de benodigde capaciteit DEC_b (zie afbeelding 3). Deze toename lijkt de capaciteit vooral voor de protozoën te overschatten. Daar staat tegenover dat de capaciteit die voor directe filtratie is aangenomen, gebaseerd is op onnauwkeurige gegevens van indicatorbacteriën en een onderschatting is van de werkelijke capaciteit zoals hiervoor beschreven. Voor *Cryptosporidium* en *Giardia* bleek de toegevoegde capaciteit zoals bepaald in het proefonderzoek, reeds voldoende te zijn om met de zuivering de benodigde verwijderingscapaciteit te halen.

De berekeningen voor de praktijkfilters zouden bij voorkeur nog nader moeten worden onderbouwd, want er zijn verschillende factoren die invloed zouden kunnen hebben op de verwijdering: de voorbehandeling (coagulatie) en ozonisatie van het



Afb. 2: De doorbraakcurven van (oö)cysten van *Cryptosporidium* en *Giardia* bij beide koolsoorten.



Afb. 3: De benodigde capaciteit van de zuivering (DEC) vergeleken met de berekende gerealiseerde capaciteit in de zuivering (DEC_z).

influent van de koolfilters in Kralingen, de spoeling van de filters, de filtratiesnelheid, de looptijd van de filters en de koolsoort (korrelgrootte, vorm, oppervlakte-eigenschappen). Ook voor een betere onderbouwing van de effectiviteit van de directe filtratie is verder onderzoek nodig.

Toekomstige ontwikkelingen

Omdat ozonisatie als desinfectieproces niet optimaal presteert en bromaat uit bromide vormt, heeft Evides besloten de ozonisatie te Kralingen op termijn te vervangen door UV-desinfectie met een capaciteit van 40 tot 70 mJ/cm². UV-desinfectie is al gerealiseerd voor de productielocaties Berenplaat en Baanhoek. Hiermee wordt de hoofd-desinfectie veel robuuster en in ieder geval effectiever voor bacteriën en protozoën. Uit literatuurgegevens blijkt dat voor *Campylobacter* een inactivatiecapaciteit van 4 log al wordt bereikt bij 5 mJ/cm²,¹¹. Om de effectiviteit van de zuivering voor enterovirussen nader te onderbouwen is in BTO-verband een onderzoek begonnen. Een recent onderzoek naar de inactivatie van virussen door nadesinfectie met chloordioxide laat zien dat bij lage concen-

traties en lange contacttijd de effectiviteit gelijk is aan die bij hoge concentraties en korte contacttijd¹². Een concentratie van één milligram per liter per minuut inactiverde MS2-bacteriofagen (een model voor virussen) met ongeveer 3,0 log.

Conclusies

Het beschreven onderzoek heeft nieuwe informatie opgeleverd over de effectiviteit van actiefkoolfiltratie. Deze informatie is gebruikt als aanvulling voor de eerste voorlopige analyse van de microbiologische veiligheid van drinkwater dat Evides produceert op de locatie Kralingen. Een substantiële verwijdering van virussen door de actiefkoolfilters is niet te verwachten. Op grond van de *E. coli*-verwijdering wordt voor *Campylobacter* een beperkte verwijdering van circa 1,0 log verwacht. *Cryptosporidium* en *Giardia*-(oö)cysten worden door koolfilters in de praktijk naar verwachting met meer dan 2,0 log verwijderd. De *Clostridium*-sporen blijken geen goede procesindicator te vormen voor de protozoënverwijdering door dit filtratieproces. Voor een beter onderbouwde vertaling van deze eerste doseerproeven

naar de praktijk zijn aanvullende proeven nodig met koolfilters, onder meer om de invloed van de filtratiesnelheid, looptijd en filterspoeling en koolsoort te bepalen.

LITERATUUR

- 1) Schijven J. en A. de Roda Husman (2009). Analyse microbiologische veiligheid drinkwater. RIVM 703719038/2009.
- 2) Hijnen W., G. Suylen, J. Bahlman, A. Brouwer-Hanzens en G-J. Medema (2010). GAC adsorption filters as barriers for viruses, bacteria and protozoan (oo)cysts in water treatment. *Water Res.* 44, pag. 1224-1234.
- 3) Suylen G. (2006). Microbiologische veiligheid drinkwater productielocatie Kralingen: voorlopige analyse. Evides.
- 4) Wetsteijn F. (2005). Analyse microbiologische veiligheid drinkwater. Artikelcode: 5318. VROM-Inspectie.
- 5) Hijnen W. (2009). Elimination of micro-organisms in water treatment. Proefschrift Universiteit van Utrecht.
- 6) Hijnen W. en G-J. Medema (2010). Elimination of micro-organisms by water treatment processes: literature review. IWA publishing.
- 7) Blaser M., P. Smith, W. Wang en J. Hoff (1986). Inactivation of *Campylobacter jejuni* by chlorine and monochloramine. *Appl. Environ. Microbiol.* 51, pag. 307-311.
- 8) Veenendaal H. en A. Brouwer-Hanzens (2007). A method for the concentration of microbes in large volumes of water. *Kiwa Water Research*.
- 9) Medema G-J. (1992). Toepasbaarheid van desinfectiemiddelen bij de bestrijding van *Aeromonas* in drinkwater. In: D. van der Kooij (ed.), *Aeromonas* in drinkwater, pag. 60-67. KWR Watercycle Research Institute.
- 10) Yao K., M. Habibia en C. O'Melia (1971). Water and wastewater filtration: concepts and applications. *Environ. Sci. Technol.* 5, pag. 1105-1112.
- 11) Wilson B., P. Roessler, E. van Dellen, M. Abbaszadegan en C. Gerba (1992). Coliphage MS2 as a UV water disinfection efficacy test surrogate for bacterial and viral pathogens. Presentatie op Water Quality Technology conferentie van de American Water Works Association, Toronto, 15 tot 19 november.
- 12) Hornstra L., P. Smeets en G-J. Medema (2011). Inactivation of bacteriophage MS2 upon exposure to very low concentrations of chlorine dioxide. *Water Res* 45, pag. 1847-1855.