

Ervaringen met denitrificatie in een gefluidiseerd bed op laboratoriumschaal

Inleiding

Uit het oogpunt van waterkwaliteitsbeheer wordt ruime aandacht besteed aan onderzoek van processen ter verwijdering van stikstofverbindingen uit afvalwater. Bij de huidige stand van zaken blijken biologische processen het meest belovend te zijn, en dit niet in het minst omdat de stikstofverbindingen hierbij uiteindelijk worden omgezet in onschuldig stikstofgas. Uiteraard wordt ook biologisch slib geproduceerd. De oxidatief biologische afvalwaterbehan-



TH. J. NIEUWSTAD
Laboratorium voor
Gezondheidstechniek
Afdeling der Civiele Techniek
Technische Hogeschool Delft



G. VAN BARNEVELD
Laboratorium voor
Gezondheidstechniek
Afdeling der Civiele Techniek
Technische Hogeschool Delft

deling kan zo worden bedreven dat volledige nitrificatie optreedt. Stikstof, die in ruw afvalwater voornamelijk voorkomt in de vorm van ammonium en organische stikstofverbindingen, wordt door autotrophe micro-organismen via nitriet geoxydeerd tot nitraat. Voor deze reaktiestappen zijn organismen van respectievelijk het type *Nitrosomonas* en *Nitrobacter* de belangrijkste. In een opvolgende anaerobe behandeling, de denitrificatie, kan het nitraat door organismen van bijv. het type *Pseudomonas* via nitriet worden gereduceerd tot stikstofgas.

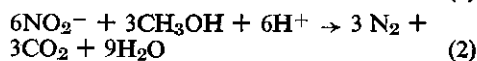
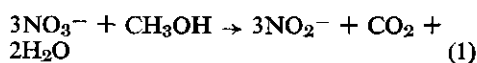
Uit literatuuroverzichten [1 - 4] blijkt dat zowel processen die gebruik maken van gesuspenderde micro-organismen in gemengde of gescheiden slibsoorten (voor nitrificatie en denitrificatie), als methoden waarin denitrificerende bacteriën op drager worden gebruikt, technologisch gezien goede perspectieven bieden.

In het kader van het project zuivering van afvalwater [5] zal de proefinstallatie [6] uitgebreid worden met een denitrificatie-eenheid met een capaciteit van $10 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

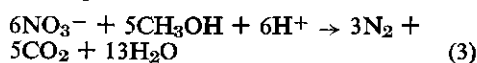
Daar de door Jeris en medewerkers [7, 8] en Bosman en medewerkers [13] beschreven denitrificatie in een gefluidiseerd bed veelbelovend lijkt, werd besloten deze techniek op laboratoriumschaal te testen. De opgedane ervaringen zijn in dit artikel beschreven.

Theorie in het kort

In een zuurstofloze omgeving kunnen vele soorten facultatief anaerobe bacteriën nitraat- en nitrietionen als electronen acceptor (oxydatiemiddel) gebruiken. Nitraat wordt hierbij via nitriet tot hoofdzakelijk stikstof gereduceerd. Organische stoffen die door de micro-organismen kunnen worden afgebroken treden op als electronendonor (reductiemiddel) en als grondstof voor de synthese van cellen. Daar in genitrificeerd afvalwater weinig afbrekbare stoffen meer aanwezig zijn, moet een electronendonor — meestal koolstofbron genoemd — worden toegevoegd om de bacteriën te doen groeien. Tal van verbindingen kunnen dienen als koolstofbron. In dit onderzoek is methanol (CH_3OH) gebruikt. De energieleverende reacties (dissimilatie) tussen methanol en nitraat of nitriet zijn de volgende:



Voor de volledige reductie van nitraat wordt gevonden:



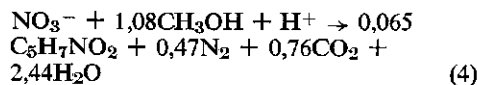
De dissimilatie van methanolconsumptie in kg methanol per kg nitraat- of nitrietstikstof kan nu berekend worden als zijnde:

0,76 kg $\text{CH}_3\text{OH} \cdot (\text{kg N})^{-1}$ van nitraat naar nitriet;

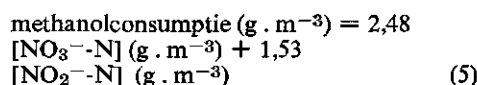
1,14 kg $\text{CH}_3\text{OH} \cdot (\text{kg N})^{-1}$ van nitriet naar stikstof;

1,90 kg $\text{CH}_3\text{OH} \cdot (\text{kg N})^{-1}$ van nitraat naar stikstof.

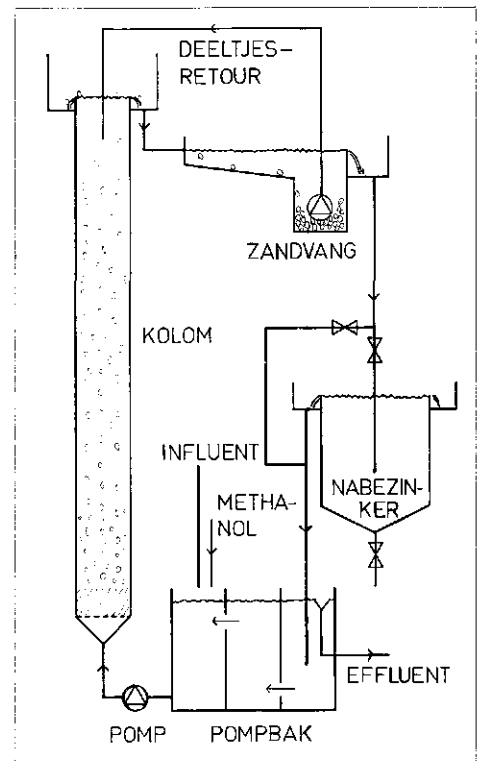
Wordt de celsynthese (assimilatie) in de beschouwing betrokken, dan kan vergelijking (4) worden opgesteld:



Hieruit volgt dat 6 % van de omgezette nitraatstikstof wordt ingebouwd in nieuwe cellen en dat 94 % wordt gereduceerd tot stikstof. Van de verbruikte methanol wordt 30 % omgezet in celmateriaal en 70 % geoxydeerd tot water en kooldioxide. Volgens McCarty en medewerkers [9] kan de voor denitrificatie benodigde hoeveelheid methanol gerelateerd worden aan de nitraat- en nitrietconcentratie:



In aanmerking nemende dat in genitrificeerd afvalwater de nitrietconcentratie meestal klein is ten opzichte van de



Afb. 1 - Gefluidiseerd bed voor denitrificatie.

nitraatconcentratie geldt als goede benadering voor de dosering van methanol:

$$\text{methanoldosis (g} \cdot \text{m}^{-3}) = 2,5 [\text{NO}_3^- \cdot \text{N}] (\text{g} \cdot \text{m}^{-3}) \quad (6)$$

Uit vergelijking (4) kan voor het hypothetische celmateriaal $\text{C}_5\text{H}_7\text{NO}_2$ een slibproductie berekend worden van 0,52 kg droge stof per kg verwijderde nitraatstikstof. Deze waarde ligt wat hoger dan de volgens de literatuur [1] meest aannemelijke gemeten waarde van 0,4.

Bedenkende dat 1 kg methanol overeenkomt met 1,5 kg chemisch zuurstofverbruik (CZV), kan uit (4) berekend worden dat de slibproductie op basis van CZV-verlaging (koolstofbronverbruik) ongeveer 0,14 kg drogestof per kg verwijderde CZV bedraagt.

Uitvoering

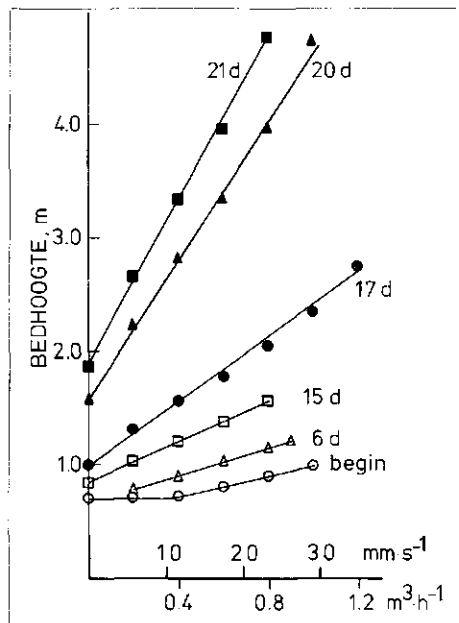
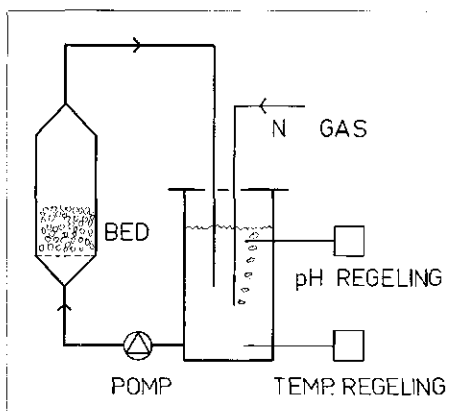
De opstelling voor continue denitrificatie door middel van een gefluidiseerd bed is geschetst in afb. 1. De kolom heeft een hoogte van 5,2 m en een diameter van 0,11 m en is voorzien van monsterpunten op onderlinge afstanden van 0,3 m. Bij een debiet van $0,4 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ is de verblijftijd in de lege kolom 440 s.

Aan de vloeistofverdeling onderin de kolom is geen speciale aandacht besteed. Op een bodemplaat met gaatjes van 5 mm rust een 0,12 m hoge steunlaag bestaande uit een grindfractie van 5,6 - 8,0 mm. Hierboven bevindt zich het bed dat bestaat uit 6 l zand met een diameter van 1,0 - 1,2 mm. De denitrificerende micro-organismen zullen

zich hechten aan het zand. Hoewel onderin de kolom soms een zeer onregelmatige stroming is waar te nemen, blijkt vanaf een hoogte van 0,5 m doorgaans een op het oog gelijkmatige vloeistofstroom te heersen. Het effluent doorstroomt een zandvang en de daarin bezonken zand-slib deeltjes worden met een pompje teruggevoerd in de kolom. Slibdeeltjes worden afgevangen in de nabezinker die, indien gewenst, gepasseerd kan worden. De pompbak is zo ingericht dat bij stilvallen van het influent het water gaat recirculeren, waardoor inzakken van het gefluidiseerde bed en droogvallen van de pomp worden voorkomen. Als het debiet over de kolom hoger is ingesteld dan het influentdebiet, zal er altijd een gedeeltelijke recirculatie plaatsvinden, waardoor de stroming in de pompbak van rechts naar links is gericht. Het is dan onmogelijk dat onbehandeld influent in contact komt met het effluent. Het influent bestaat uit biologisch genitrificeerd afvalwater. Als koolstofbron wordt methanol gedoseerd in het linker compartiment van de pompbak. Hier kunnen ook andere chemicaliën worden toegevoegd (bijv. zuur, loog, nitraat, nitriet, andere koolstofbron).

Afb. 2 toont een opstelling met een kolom van 0,3 m hoogte waarin een zodanige hoeveelheid slib (deeltjes) uit de grote kolom gebracht kan worden dat een geëxpandeerd bed van ca. 0,1 m ontstaat. Door zuur en/of loog te doseren in het bakje kan de pH geregeld worden. De door de pomp ontwikkelde warmte wordt met behulp van de koelspiraal afgevoerd. De stikstofstroom verhindert de toetreding van zuurstof uit de lucht. Tijdens proeven wordt het systeem gevuld met 6 à 10 l genitrificeerd afvalwater waaraan een koolstofbron en eventueel andere chemicaliën worden toegevoegd. Door met een pipet monsters uit de bak te trekken is de denitrificatie als functie van de tijd te volgen. Nitriet werd bepaald met het reagens van

Afb. 2 - Denitrificatie bij constante pH.



Afb. 3 - Bedhoogte als functie van de superficiële snelheid en het debiet bij toenemend aantal dagen slibgroei.

Griess, Romijn en Van Eck (NEN 1056 IV 2). De nitraatbepaling volgens de salicylaatmethode en de overige bepalingen werden uitgevoerd volgens 'Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater', 14th edition, 1975. Vastestofmonsters uit het gefluidiseerde bed werden getrokken met een monsterhapper [10] met bekend volume.

Resultaten en discussie

De ontwikkeling van de biomassa

Binnen een week na inbedrijfstelling van de kolom was duidelijk waarneembaar dat zich op de zandkorrels biomassa begon te ontwikkelen. De invloed van de bacteriemassa op de fluidisatie van het zandbed is weergegeven in afb. 3. Bij gelijkblijvende stroomsnelheid neemt de expansie van het zandbed sterk toe met de tijd, terwijl het groter wordende volume dat het gepakte bed inneemt duidelijk aantoont dat de deeltjes aangroeien. De aangegroeide deeltjes hebben een zandkleur en hun oppervlakte doet denken aan dat van bloemkool. Na ongeveer vier weken was de kolom geheel gevuld en spoelden er bij een debiet van 0,4 m³ · h⁻¹ deeltjes uit de kolom.

Problemen rond de ontspanning van deeltjes uit de kolom en de afvoer van surplus-slib

Er zijn drie oorzaken waardoor deeltjes ontsnappen uit de kolom:

1. De slibgroei en de daarmee gepaard gaande toenemende deeltjesgrootte leidt tot plaatsgebrek en het teveel aan deeltjes wordt met de waterstroom afgevoerd.

2. Deeltjes die sterk aangroeien worden op den duur zo groot dat hun valsnelheid, ten gevolge van de afnemende gemiddelde dichtheid (zie later) van de deeltjes, kleiner wordt dan de opwaartse snelheid van het water, waarna zij worden meegevoerd.

3. Stikstofgas, dat bij het denitrificatieproces ontstaat, vormt gasbelletjes die zich aan de deeltjes hechten, waarna deze combinaties de kolom verlaten. Pas bij het passeren van de overstortrand van de kolom worden de belletjes van de deeltjes gescheiden. Andere acties, zoals roeren of trillen bleken niet voldoende effectief voor deze scheiding.

Indien de totale hoeveelheid slib die het systeem in de vorm van deeltjes verlaat gelijk is aan de slibproductie, kan door suppletie van schoon zand de slibhoeveelheid in de kolom in een dynamisch evenwicht gebracht worden. De ontsnapte deeltjes, die eenvoudig zijn af te vangen, vormen dan het surplus-slib.

Echter, de hechting van stikstofbelletjes aan deeltjes kan soms een zo grote omvang aannemen dat veel te veel deeltjes uit de kolom spoelen. Dit wordt ondervangen door het systeem van zandvang en slibretour (afb. 1). Door mechanische krachten in het retourpompje wordt een deel van het slib van de zandkorrels afgeslagen en als surplus-slib met het effluent meegevoerd. Hoewel dit slib in principe goed bezinkt, blijkt het in de tussengeschatte nabezinker (afb. 1) na verloop van tijd te gaan drijven, vermoedelijk als gevolg van een doorgaande stikstofontwikkeling in de slibdeeltjes. De zeer compacte drijfslag moet in het laboratorium door afscheppen worden verwijderd.

Indien in de praktijk een gefluidiseerd bed zou worden toegepast, moet een goede oplossing voor afscheiding van het slib gezocht worden als het effluent direct wordt geloosd. In de semitechnische proefinstallatie van het Laboratorium voor Gezondheidstechniek [5, 6] zal het slib in de fosfaatverwijderingstrap door coagulatie met ijzer(III)chloride worden verwijderd. Wanneer het gefluidiseerde bed enige tijd uit bedrijf is, bezinken de deeltjes en plakken zij aan elkaar. Bij het opstarten moet lucht doorgeblazen worden om de korrels te lossen. Soms moet krachtig in de kolom worden geroerd om te voorkomen dat het bed er als een prop wordt uitgeperst. Hierbij gaat veel slib verloren maar de kolom herstelt zich snel.

Bacteriegroei treedt ook op in de steunlaag van grind, waardoor kanaalvorming kan optreden. Dagelijks gedurende enkele seconden doorblazen van lucht maakt het grind los en redelijk schoon.

Deeltjesgrootte- en deeltjesaantalverdeling en slibgehalte

De deeltjes zijn opgebouwd uit een zware zandkern (d ca. $2700 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$) met daaromheen een lichte sliblaag (d ca. $1000 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$). Afgeleid kan worden dat voor een dergelijk deeltje de valsnelheid in water omgekeerd evenredig is met de diameter. De uit de zandvang teruggepompte deeltjes zijn een deel van het aangehechte slib verloren en zullen dus een kleinere diameter en hogere valsnelheid hebben dan de deeltjes die de kolom verlaten. Zij zullen in de kolom naar beneden zakken en vervolgens weer aangroeien en opstijgen.

Wil een dergelijk systeem in stationaire gefluïdiseerde toestand blijven, dan moet er over de kolom van beneden naar boven een afname in deeltjesconcentratie en toename in deeltjesgrootte bestaan en wel zodanig dat de snelheid van het water ten opzichte van de deeltjes onderin de kolom, ten gevolge van een lagere porositeit, hoger is dan nabij de top van de kolom, waar de porositeit hoger moet zijn. Als gevolg van de deeltjesverdeling zou er een gradiënt in de slibconcentratie kunnen bestaan.

Teneinde hierover enige informatie te krijgen, werden met behulp van een zandhapper [10] op verschillende hoogten vastestof monsters getrokken. Door drogen, tellen en gloeien werden de in tabel I ver-

TABEL I - Deeltjesaantal en slibgehalte als functie van de bedhoogte in een gefluïdeerd bed voor denitrificatie a.

Hoogte m	Aantal deeltjes 10^8 m^{-3}	Slibgehalte, droge stof b $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$	Slib per deeltje, droge stof 10^{-9} kg
0,20	364	47	132
0,85	185	41	223
1,50	157	38	244
2,15	150	39	259
2,80	153	39	259
3,45	149	38	261
4,10	148	39	263

a Debiet $0,4 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, overeenkomende met een superficiële snelheid van $0,0117 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$.

b Het zand niet meegerekend.

zamelde waarden bepaald, welke gemiddelden zijn van een viertal metingen onder vergelijkbare omstandigheden. De gloeirest van het van de deeltjes geslagen slib bleek 19 % te zijn.

Als bedacht wordt dat zich onderin de kolom vrij schoon zand bevindt (veel deeltjes), is vanaf 0,85 m een langzame afname van het aantal deeltjes per volume-eenheid waarneembaar. Daar de hoeveelheid slib per deeltje toeneemt, blijft het totale slibgehalte over de hoogte van de kolom ongeveer constant.

Uit latere metingen, die door de Sectie

Biochemische Reactoren van de Afdeling der Scheikundige Technologie aan deze kolom zijn verricht [10], blijkt evenwel dat het slibgehalte over de hoogte van de kolom globaal toeneemt van 30 tot $45 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ en het aantal deeltjes afneemt van $2,3 \cdot 10^8$ tot $1,0 \cdot 10^8 \text{ m}^{-3}$.

Het slibgehalte kan ook afhankelijk zijn van het totaal aantal deeltjes in de kolom. De indruk is verkregen dat ergens tussen 'veel magere deeltjes' en 'weinig dikke deeltjes' het slibgehalte een optimum bereikt. Er is geen onderzoek verricht naar de ligging van dit optimum.

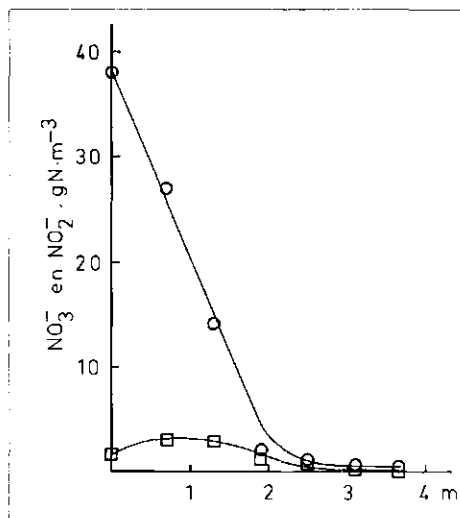
Problemen rond het trekken van vastestofmonsters maken dat aan de metingen van de deeltjesverdeling niet al te grote waarde gehecht mag worden. Wel lijkt de verwachting bevestigd dat de sterkst aangegroeide deeltjes zich boven in de kolom bevinden en deze als eerste zullen verlaten.

De gradiënt in deeltjesgrootte en deeltjesaantal is soms visueel duidelijk waarneembaar. Waaraan dit ligt is niet te zeggen. Bijvoorbeeld zou bij een hoog nitraat-aanbod, wat een grotere slibproductie tot gevolg heeft, de gradiënt door een snellere circulatie van deeltjes meer nadrukkelijk tot uiting kunnen komen.

De denitrificatie

In voorgaande artikelen ([5, 10] en door Jeris en medewerkers [7, 8] is reeds een beeld gegeven van het concentratieverloop van nitraat en nitriet als functie van de hoogte in de kolom. Het concentratieprofiel, waarvan een voorbeeld is gegeven in afb. 4 heeft in principe altijd hetzelfde uiterlijk: een aanvankelijk lineair afnemende nitraatconcentratie terwijl de nitrietconcentratie na toename tot een maximum weer afneemt, waarbij de curven over de

Afb. 4 - Voorbeeld van een nitraat- en nitrietprofiel over de denitrificatiekolom (exp 2, tabel II): \circ , $\text{NO}_3^- \text{-N}$; \square , $\text{NO}_2^- \text{-N}$.



laatste $1\frac{1}{2} \text{ m}$ van het bed doorgaans sterk afvlakken. Een profiel kan ruwweg gekarakteriseerd worden door de influent nitraat- en nitrietconcentraties, de maximale nitrietconcentratie met de bijbehorende hoogte in de kolom en de effluentconcentraties van beide ionen.

In tabel II zijn voor een aantal momenten tijdens de continue bedrijfsvoering van de proefinstallatie de karakteristieken van de profielen verzameld. Tijdens meting van de profielen 4-7 werd extra nitraat gedoseerd teneinde de omzetting van hoge nitraatconcentraties te kunnen bestuderen. De procesomstandigheden waren zodanig dat methanol (de koolstofbron) niet limiterend was voor de denitrificatie.

Factoren die, afgezien van de slibkwaliteit, de gedaante van het profiel beïnvloeden zijn:

- het nitraat- en nitrietaanbod;
- de pH;
- de stroomsnelheid in de kolom;
- de verhouding tussen methanol en nitraat en nitriet;
- de temperatuur.

Probleem bij het vaststellen van de invloed van elk van deze factoren afzonderlijk is vooral het feit dat de aard van het slib, de bedhoogte en het slibgehalte per volume-eenheid reaktor niet strak controleerbaar zijn. Daarnaast wordt het beeld verstoord doordat bij doorgang door de kolom de pH van het water geleidelijk stijgt. Ondanks deze problemen is aan de eerste vier van de genoemde effecten enige aandacht geschonken. De temperatuurinvloed is geen onderwerp geweest van studie. Hoewel er temperatuurverschillen zijn van enkele $^{\circ}\text{C}$ (tabel II), zijn deze niet in de discussie betrokken.

Het nitraat- en nitrietaanbod en het reaktieverloop

Uit de ongeveer gelijke hellingen van de lijnen in de profielen 1, 3, 5 en 6 (afb. 5) blijkt dat de omzetsnelheid van nitraat in het eerste deel van de kolom onafhankelijk is van de beginconcentratie, hoewel bij een aanvangsconcentratie van $20 \text{ g NO}_3^- \text{-N} \cdot \text{m}^{-3}$ een duidelijk lagere snelheid wordt gevonden. Echter, ook de andere lijnen buigen in dit concentratiegebied om naar minder negatieve helling. In aanmerking genomen de aanzienlijk verschillende nitrietmaxima voor de profielen 1, 3, 5 en 6 (tabel II), kan uit afb. 5 geconcludeerd worden dat de nitraatafbraak bij concentraties boven de $20 \text{ g NO}_3^- \text{-N} \cdot \text{m}^{-3}$ niet door nitriet wordt geremd. Dit is nog bevestigd door proeven waarin extra nitriet werd gedoseerd (tot 40 g

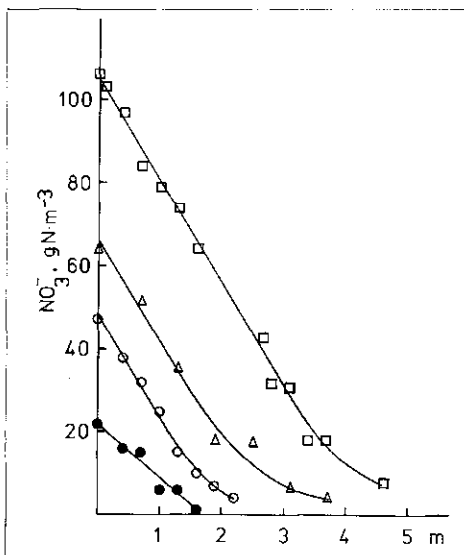
TABEL II - Concentratieprofielen over de denitrificatiekolom; karakteristieke waarden a.

Profiel nr.	Bedhoogte m	Debiet m ³ · h ⁻¹	Temp. °C	C : N b	Bodem kolom			Nitriet maximum				Effluent			
					NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	pH	NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	ΔNO ₂ ⁻ c	pH	Hoogte	NO ₃ ⁻	NO ₂ ⁻	pH
1	4,3	0,4	23	4,5	20	1,3	6,9	6	3,8	2,5	7,4	1,3	0 d	0,1	7,8
2	3,7	0,4	18	4,1	38	1,6	7,9	21	3,0	1,4	8,1	1,0	1	0,0	8,5
3	4,6	0,4	19	3,5	47	5,2	7,6	15	7,7	2,5	8,0	1,3	1	0,1	8,4
4	4,2	0,4	15	4,4	60	3,0	7,5	11	17	14	7,9	2,5	2	6,0	8,4
5	4,2	0,4	16	4,1	64	2,0	7,3	15	19	17	8,0	2,2	4	10	8,4
6	5,1	0,4	18	3,9	106	3,8	7,8	42	20	16	8,1	1,9	8	8,9	8,2
7	4,6	0,4	15	4,1	63	6,0	7,5	12	19	13	7,9	1,9	2	2,0	8,5
2a	4,4	0,6	18	4,1	39	1,5	7,8	22	3,0	1,5	8,0	1,3	1	0,3	8,5
2b	5,1	0,8	18	4,1	38	1,7	7,8	26	3,3	1,6	8,0	1,6	5	1,3	8,4

a NO₃⁻ en NO₂⁻ concentraties in gN · m⁻³.b Verhouding g methanol : g (NO₃⁻ + NO₂⁻) · N.

c Toename nitrietconcentratie ten opzichte van het influent.

d Reeds op een hoogte van 2,5 m.



Afb. 5 - Nitraatprofiel over de kolom bij verschillende influent-nitraatconcentraties. Experimenten tabel II: ●, exp. 1; ○, exp. 3; △, exp. 5; □, exp. 6.

NO₂⁻ · N · m⁻³) in het influent van de kolom (zie [5], afb. 4).

De soms belangrijke nitriettoename toont aan dat de reductie van nitraat voor een deel via nitriet verloopt en dat nitraat preferent wordt gereduceerd. Uit het feit dat de nitrietreductie reeds flink op gang komt als de nitraatconcentratie nog lineair met de kolomhoogte afneemt, volgt dat de nitrietafbraak vooral door hoge nitraatconcentraties wordt geremd. Op grond van deze remming wordt bij hogere begin-nitraatconcentratie een grotere toename van nitrietconcentratie verwacht. Uit de ten opzichte van het influent berekende ΔNO₂-waarden in tabel II blijkt dat dit globaal klopt; de getallen zijn echter niet overtuigend.

Bovenstaande conclusies zijn door Eggers en Terlouw [10] in aanmerking genomen bij het opstellen van een wiskundig model voor de denitrificatie in een gefluïdiseerd bed. De remming van de nitrietreductie door nitraat is in het model verwerkt

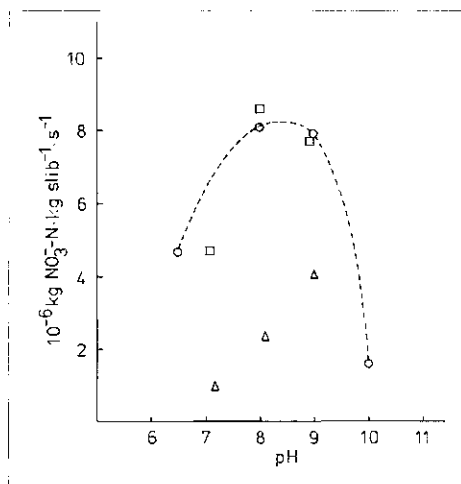
volgens een competitief inhibitiemechanisme, waarin nitraationen het voor de nitrietreductie benodigde enzym omkeerbaar blokkeren.

De pH

Uit een overzicht van studies [1] blijkt dat de optimale pH voor denitrificatie ligt in het gebied tussen 7 en 9. Door gebruik te maken van de opstelling volgens afb. 2 kon de denitrificatiesnelheid bij een aantal konstante pH-waarden worden gemeten. De resultaten zijn grafisch weergegeven in afb. 6, waarin tevens enkele waarden zijn opgenomen gemeten bij gebruik van koolstofbronnen anders dan methanol. Hoewel het aantal waarnemingen aan de lage kant is, blijkt dat de optimale pH zich globaal tussen 7 en 9 bevindt, in overeenstemming met de genoemde literatuurgegevens.

In tabel II is te zien dat de pH over de denitrificatiekolom aanzienlijk oploopt, hetgeen op grond van vgl. (3) verwacht mag worden. Het pH-verloop maakt het onmogelijk goed vast te stellen welke invloed de pH heeft op het reactieverloop

Afb. 6 - Denitrificatiesnelheid als functie van de pH bij 24 °C met als koolstofbron methanol (○), melasse (□) en voorbezonden afvalwater (△).



in de kolom. Uit de bij hoge concentratie lineaire nitraatprofielen zou geconcludeerd kunnen worden dat de denitrificatiesnelheid nauwelijks afhangt van de pH binnen de grenzen die in de kolom worden gemeten. Dit houdt in dat het pH-optimum tussen 7 en 9 de gedaante heeft van een plateau.

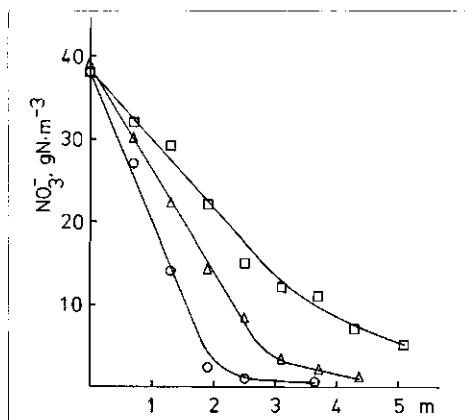
Uit tabel II blijkt verder dat het nitrietmaximum, uitgezonderd voor profiel 1, bereikt wordt bij een pH van omstreeks 8: terwijl de nitraatreductie met gelijke snelheid voortgaat, komt de nitrietreductie op gang.

Dit duidt er op dat er boven pH 8 iets in het reactieverloop verandert. Wellicht neemt boven deze pH de inhibitie door nitraat van het nitriet reducerende enzym sterker af dan alleen op grond van de dalende nitraatconcentratie verwacht mag worden. Een andere mogelijkheid is dat boven pH 8 de nitraatreductie voor een veel kleiner deel via nitriet gaat verlopen dan beneden pH 8. Een definitieve uitspraak hierover kan op grond van onze experimenten niet worden gedaan.

De hoogte in de kolom waarop pH 8 wordt bereikt hangt af van de watersamenstelling (buffercapaciteit) en het nitraataanbod. Zo is bij profiel 1 niet voldoende nitraat aanwezig om bij volledige omzetting pH 8 te bereiken. Toch treedt een laag nitrietmaximum op. In het bovenste deel van de kolom wordt het nitriet gereduceerd omdat daar de inhibitie door nitraat sterk afneemt en bovendien de productie van nitriet uit nitraat daalt. Tot slot van deze paragraaf zij opgemerkt dat voor sommige profielen in het effluent aanzienlijke concentraties aan nitraat en nitriet worden gemeten. Kennelijk wordt in deze gevallen de capaciteit van de kolom overschreden.

De stroomsnelheid in de kolom

Afb. 7 laat zien dat bij toenemend debiet over de kolom de helling van de nitraatprofielen kleiner wordt, wat voornamelijk



Afb. 7 - Nitraatprofielen bij verschillende debieten, Experimenten tabel II: o, exp. 2, $0,4 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$; Δ , exp. 2a, $0,6 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$; \square , exp. 2b, $0,8 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

een gevolg zal zijn van de kortere verblijftijd van het water in de kolom. Uit het debiet, de bedexpansie en het slibgehalte, waarvoor bij $0,4 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ de gemiddelde waarde van $40 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ uit tabel I is aangehouden, kunnen de denitrificatiecapaciteit van de reaktor en de denitrificatiesnelheid berekend worden (tabel III). De afbraaksnelheid per m^3 reaktor lijkt bij hogere debieten iets af te nemen, terwijl het slib bij $0,6$ en $0,8 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ effectiever lijkt te werken dan bij $0,4 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. Mogelijk is dit laatste toe te schrijven aan een betere stofoverdracht tussen deeltjes en vloeistof en omgekeerd bij hogere stroomsnelheid.

Jeris [7] en Bosman [13] noemen een denitrificatiecapaciteit van $1,2 \cdot 10^{-4}$ en $2,4 \cdot 10^{-4} \text{ kg NO}_3^- \cdot \text{N} \cdot (\text{m}^3 \text{ reaktor})^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ bij resp. 23 en 20°C en methanol als koolstofbron. Voor Klapwijk's [14] opwaarts doorstroomde reaktor met gesuspendeerd slib kan een capaciteit van ca. $1 \cdot 10^{-4} \text{ kg NO}_3^- \cdot \text{N} \cdot (\text{m}^3 \text{ reaktor})^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ berekend worden.

De grote spreiding in de in de literatuur genoemde waarden voor de denitrificatiesnelheid [1, 3] maken een vergelijking weinig zinvol: de hier gevonden getallen passen in het beeld.

De verhouding methanol : nitraatstikstof

Het functioneren van de denitrificatiekolom

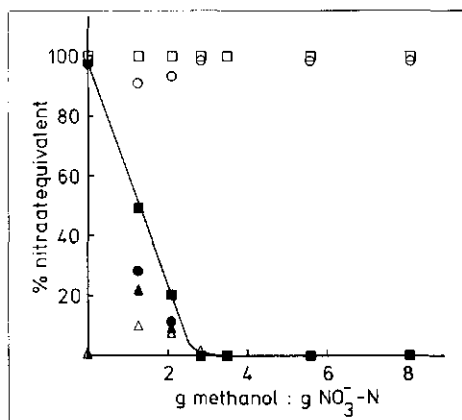
TABEL III - Denitrificatiecapaciteit van de reaktor bij verschillende debieten (profielen nr. 2, 2a en 2b, tabel II).

Debiet $\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$	Superficiële snelheid $10^{-2} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$	Bedhoogte m	Slibgehalte ^a	Denitrificatie- capaciteit ^b	Denitrificatie- snelheid ^c	Denitrificatie- snelheid ^d
0,4	1,17	3,7	40	2,1	5,2	6,5
0,6	1,75	4,4	34	2,2	6,6	8,2
0,8	2,34	5,1	29	1,9	6,7	8,3

^a $\text{kg} \cdot (\text{m}^3 \text{ reaktor})^{-1}$

^b $10^{-4} \text{ kg NO}_3^- \cdot \text{N}$

^c $10^{-6} \text{ kg NO}_3^- \cdot \text{N} \cdot (\text{kg droge stof})^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$



Afb. 8 - Effluentsamenstelling als functie van de verhouding methanol: nitraatequivalent; 100 % varieert tussen 30 en $55 \text{ g NO}_3^- \cdot \text{N} \cdot \text{m}^{-3}$.

Sleutel: nitraatequivalent influent effluent

NO_3^-	o	●
NO_2^-	Δ	\blacktriangle
totaal	\square	\blacksquare

is mede afhankelijk van de verhouding tussen de koolstofbron methanol en het te verwijderen nitraat en nitriet. Uit vgl. (6) volgt dat voor denitrificatie minstens $2,5 \text{ kg}$ methanol per kg nitraatstikstof nodig is. Welke gevolgen een ondermaat of overmaat methanol heeft voor de effluentkwaliteit is nagegaan door in de proefinstallatie de methanoldosering te variëren (afb. 8).

Daar, vooral bij een tekort aan methanol, het effluent aanzienlijke hoeveelheden nitriet kan bevatten en daar nitriet een ander methanolverbruik heeft dan nitraat, zijn de waarnemingen omgerekend naar nitraatequivalenten. Uit de vgl. (2) en (3) volgt dat voor dissimilatieve doeleinden de methanolconsumptie van $1 \text{ kg NO}_2^- \cdot \text{N}$ equivalent is aan die van $0,6 \text{ kg NO}_3^- \cdot \text{N}$. De in de literatuur genoemde waarden voor de celopbrengst bij reductie van nitraat en nitriet bedragen resp. $0,4 \text{ kg}$ droge stof per $\text{kg NO}_3^- \cdot \text{N}$ [1] en $0,25 \text{ kg}$ droge stof per $\text{kg NO}_2^- \cdot \text{N}$ [10, 11], waaruit volgt dat $1 \text{ kg NO}_2^- \cdot \text{N}$ voor het assimilatieve methanolverbruik eveneens equivalent is aan $0,6 \text{ kg NO}_3^- \cdot \text{N}$.

De in het water totaal aanwezige hoeveel-

heid 'nitraatequivalent' is berekend uit de nitraatconcentratie plus $0,6 \cdot$ nitrietconcentratie. Deze waarde is voor het influent steeds op 100% gesteld, waarna de andere percentages zijn berekend. Opgemerkt zij nog dat de 100% waarde varieert tussen 29 en $55 \text{ g N} \cdot \text{m}^{-3}$.

De punten in afb. 8 mogen strikt genomen niet door lijnen worden verbonden omdat zij afkomstig zijn van verschillende experimenten waardoor de ligging van de punten voor nitraat en nitriet zowel afhankelijk is van de influentsamenstelling als van het procesverloop. Voor de totale effluentstikstofconcentratie is dit toch gedaan, waarbij extrapolatie van het rechte gedeelte naar 0% leert dat de benodigde hoeveelheid methanol overeenkomt met $2,7 \text{ kg}$ per kg N . Deze waarde is wat hoger dan de verhouding $2,4 - 2,5$ die op grond van vgl. (4) en (5) en de experimenten van McCarty en medewerkers [9] verwacht mag worden, maar lager dan de waarde $2,9 - 3,0$ die door Jeris en medewerkers [7] voor een gefluidiseerd bed is gevonden en lager dan de waarden die door anderen voor denitrificatie met slib op een drager zijn gerapporteerd (voor overzicht zie [1]). Wat verder opvalt is dat een te lage methanoldosering tot gevolg heeft dat een aanzienlijk percentage van het nitraat niet verder wordt gereduceerd dan tot nitriet, wat een ongunstige invloed heeft op de effluentkwaliteit. Anderzijds heeft een overmaat methanol tot gevolg dat het behandelde water een restant methanol zal bevatten die een bijdrage levert aan het CZV van $1,5 \text{ kg O}_2$ per kg methanol. Dit kan in afb. 8 niet geïllustreerd worden omdat, wegens de wisselende beginnitraatconcentratie, de absolute methanoldosis niet evenredig is met de methanol : nitraatstikstof verhouding. Wegens de kans op hoge nitrietconcentraties of extra CZV in het effluent van de denitrificatiekolom is installatie van een sturing van de methanoldosering op het beginnitraatgehalte, bijv. met behulp van een continu analysesysteem [15], zeer gewenst.

De slibproductie

Uit de hoeveelheid slib die, gemeten over een lange tijd van continue bedrijfsvoering, gemiddeld in de nabezinker is opgevangen, is een slibproductie berekend van $0,26 \text{ kg}$ organische stof per $\text{kg NO}_3^- \cdot \text{N}$, een waarde die lager is dan de $0,4 \text{ kg}$ vermeld in de literatuur of de $0,52 \text{ kg}$ berekend uit vgl. (4). Waarschijnlijk is het tekort aan slib meegevoerd met het effluent, wat uitgaande van beide genoemde waarden en in aanmerking nemende de gloeirest van 19% zou moeten neerkomen op nauwelijks bepaalde hoeveelheden van resp. 7 en 14 g

TABEL IV - Denitrificatie met voorbezonden afvalwater, melasse of methanol als koolstofbron. Debiet over de kolom 0,5 m³ · h⁻¹

Doserings koolstofbron		Influent a			Effluent		Δ CZV
Voorbezonden afvalwater l · m ⁻³	Melasse d ml · m ⁻³	Methanol g · m ⁻³	CZV b gO ₂ · m ⁻³	NO ₃ ⁻ + NO ₂ ⁻ c gN · m ⁻³	gO ₂ · m ⁻³ CZV b	NO ₃ ⁻ + NO ₂ ⁻ c gN · m ⁻³	Δ(NO ₃ ⁻ + NO ₂ ⁻) kgO ₂ · kgN ⁻¹
0,22			130	30	90	16	2,9
0,45			210	28	150	7	2,9
0,61			270	26	190	5	3,8
0,89			360	28	250	6	5,0
1,10			390	25	270	6	6,3
	180 e		460	23	360	1	4,5
		162 e, f	—	40	—	1	4,1

a Inclusief dosering.

b Ongefiltreerde monsters.

c Gefiltreerde monsters.

d 1 : 1 verdund met water; CZV van deze oplossing 445 kg O₂ · m⁻³.

e Overmaat.

f Experiment 9, tabel II; debiet kolom 0,4 m⁻³ · h⁻¹; Δ CZV : ΔN berekend uit de gevonden waarde van 2,7 kg methanol per kg N, bedenkende dat 1 kg methanol = 1,5 kg CZV.

droge stof per m⁻³ behandeld water. Daar het slibgehalte in de kolom slechts af en toe is bepaald, is de slibleef tijd niet goed te berekenen. Uitgaande van 38 kg droge stof per m³ kolom zou de slibleef tijd 15 dagen bedragen. Bij externe regeneratie van het dragermateriaal (zand) zou dit inhouden dat ongeveer eens per twee weken de zandvoorraad in de kolom — 6 liter — van slib ontdaan moet worden.

Andere koolstofbronnen

Hoewel methanol als koolstofbron goed voldoet, zou het uit kosten oogpunt voordelig zijn wanneer een goedkopere elektro-nendonor gebruikt kan worden. Meest voor de hand liggend is het gebruik van de in het afvalwater aanwezige organische stoffen. In het kader van een afstudeeronderzoek is de kolom enkele maanden gevoed met een mengsel van genitrificeerd afvalwater en voorbezonden afvalwater (VA). Daarnaast is nog twee weken gewerkt met melasse als koolstofbron. Enkele resultaten zijn vermeld in tabel IV, waarin voor de volledigheid ook nog een methanol experiment is opgenomen.

Het is duidelijk dat aanzienlijke hoeveelheden VA gedoseerd moeten worden om een redelijke denitrificatie te bereiken, ook als het slib geruime tijd aan deze koolstofbron heeft kunnen wennen: een dosering van ongeveer 0,5 l VA per liter te behandelen water blijkt optimaal te zijn.

Een belangrijk bezwaar van het gebruik van VA is het feit dat veel gereduceerde stikstof in het effluent te vinden zal zijn omdat de met het VA gedoseerde Kjeldahlstikstof niet wordt omgezet. Voorts bleek de slibproductie sterk toe te nemen en de slibleef tijd te dalen tot ongeveer 7 dagen. Dit zal veroorzaakt zijn door de hechting van vooral anorganische zwevende stoffen uit het VA aan de deeltjes. Deze aanname wordt ondersteund door het feit dat de gloeirest van het slib is toegenomen tot

40 % vergeleken met 19 % bij gebruik van methanol.

De denitrificatiesnelheid, berekend uit waarnemingen aan de kolom, bleek 2,2 · 10⁻⁶ kg NO₃⁻ · N · (kg vluchtige droge stof)⁻¹ · s⁻¹ te bedragen bij pH 7,5 - 8,0, een waarde die goed overeenkomt met die gemeten in de kleine reaktor (zie afb. 6). De oplopende ΔCZV:Δ(NO₃⁻ + NO₂⁻) verhouding bij toenemende VA dosering is niet zonder meer te verklaren. Mogelijk spelen andere biochemische processen een rol of heeft het te maken met een verschillend gedrag van bepaalde organische stoffen bij denitrificatie en CZV bepaling. Melasse blijkt in principe goed als koolstofbron te kunnen voldoen. Uit metingen over een periode van twee weken is gebleken dat de pH over de kolom daalt, dit in tegenstelling tot methanol en VA, welk afwijkend gedrag wordt toegeschreven aan het optreden van fermentatiereacties waarbij organische zuren worden gevormd, een verschijnsel dat ook door anderen is geconstateerd. Wellicht kunnen deze processen onderdrukt worden door de melasse dosering — hier nogal overmatig — beter aan te passen aan het nitraatgehalte. In de literatuur [13] wordt slechte menging als een oorzaak van zuurvorming genoemd.

Conclusies

Door denitrificatie in een gefluidiseerd bed met zand als drager voor de micro-organismen en methanol als koolstofbron is nitraat vrijwel volledig uit afvalwater te verwijderen. Bij dimensionering op praktijkschaal moet er zorg voor worden gedragen dat door interne recirculatie de influentnitraatconcentratie niet hoger is dan ca. 40 g NO₃⁻ · N · m³.

Bij hogere concentraties dreigt het gevaar dat, althans bij de hier toegepaste bedhoogte, het effluent aanzienlijke hoeveel-

heden nitriet gaat bevatten doordat de omzetting onvolledig wordt.

Doserings van de koolstofbron kan problemen geven omdat een ondermaat zal leiden tot een nitraat- en nitrietrijk effluent en een overmaat en hoge CZV van het behandelde water tot gevolg heeft.

De denitrificatiesnelheid per kg vluchtige droge stof ligt in dezelfde orde van grootte als in andere typen reaktoren. De korte verblijftijd (ca. 7 min voor het lege bed) is een gevolg van de hoge slibconcentratie in de kolom, die kan oplopen tot boven 40 kg droge stof per m³. Belangrijk probleem is het uitspoelen van deeltjes waaraan een gasbelletje is gehecht. De uitgespoelde deeltjes kunnen na bezinking in een zandvang teruggepompt worden waarbij tegelijkertijd voldoende slib van het zand wordt verwijderd om in de kolom een vrijwel constant slibgehalte te handhaven. Echter, het afgeslagen slib heeft de neiging tot opdrijven, waardoor de afscheiding wordt bemoeilijkt. Overigens zou dit slib, waarvan de concentratie bij omzetting van 40 g nitraat per m³ ongeveer 20 g · m⁻³ zal bedragen, in een opvolgende coagulatiestap voor fosfaatverwijdering verwijderd kunnen worden.

Uitgaande van een methanolprijs van f 600,— per m³ en een nitraatgehalte van 40 g NO₃⁻ · N · m⁻³ zijn de chemicaliënkosten ongeveer f 0,084 per m³ behandeld afvalwater of ongeveer f 3,40 per i.e. per jaar.

Grootste voordeel van het systeem is waarschijnlijk de korte verblijftijd, waardoor in principe zeer compacte installaties gebouwd kunnen worden. Voor hoge debieten zullen meerdere kolommen parallel geschakeld moeten worden. Hoge nitraatconcentraties (industriële bronnen) zullen in een systeem met hoge recirculatie gedenitrificeerd moeten worden, waarbij pH correctie noodzakelijk kan zijn [13].

Slotwoord

Bij de totstandkoming van dit artikel zijn de auteurs dank verschuldigd aan stagiair H. A. Bruil, de studenten L. L. M. Jalhay en W. A. Enger en het analyseteam afvalwater van het Laboratorium voor Gezondheidstechniek bestaande uit Mw. M. A. Th. Verhoeff-Kotpel en de heren A. G. A. van der Meer, A. Alink en M. A. Catalan Torres. Hun experimentele assistentie is zeer op prijs gesteld.

Literatuur

- Christensen, M. H. & Harremoës, P., 'A literature review on biological denitrification of sewage', IAWPR conf. on Nitrogen as a water pollutant, Copenhagen, 18-20 aug. 1975.
- Sharma, B. & Ahlert, R. C., 'Nitrification and nitrogen removal', Water. Res. 11, 897-925 (1977).
- Dijkstra, F., 'De verwijdering van stikstofverbindingen uit afvalwater', H₂O 7, 489-496 (1974).
- Hermans, J. & Haute, A. van, 'Theorie en praktijk van de biologische nitrificatie en denitrificatie van afvalwater', H₂O 8, 322-328 (1975).
- Nieuwstad, Th. J., 'Het project zuivering van afvalwater', H₂O 11, 226-229 (1978).
- Veldkamp, R. G., 'De proefinstallatie voor zuivering van afvalwater van het Laboratorium voor Gezondheidstechniek te Delft', H₂O 10, 541-545, 551 (1977).
- Jeris, J. S. & Owens, R. W., 'Pilot-scale, high rate biological denitrification', J. Water Pollut. Control Fed. 47, 2043-2057 (1975).
- Jeris, J. S., Beer, C. & Mueller, J. A., 'High rate biological denitrification using a granular fluidized bed', J. Water Pollut. Control Fed. 46, 2118-2128 (1974).
- McCarty, P. L., Beck, L. & StAmant, P., 'Biological denitrification of wastewater by addition of organic materials', Proc. 24th Annual Waste Conference, Purdue University, Lafayette, 1271-1285.
- Eggers, E. & Terlouw, T., 'Biological denitrification in a fluidized bed with sand as carrier material', Water. Res., submitted.
- Kodama, F., Shimada, K. & Mori, T., 'Studies on aerobic biphasic growth of a denitrification bacterium, *Pseudomonas stutzeri*', Plant Cell Physiol. 10, 855-865 (1967).
- Jeris, J. S., Owens, R. W., Hickey, R. & Flood, F., 'Biological fluidized-bed treatment for BOD and nitrogen removal', J. Water Pollut. Control Fed. 49, 816-831 (1977).
- Bosman, J., Eberhard, A. A. & Baskir, C. I., 'Denitrification of a concentrated nitrogenous industrial effluent using packed column and fluidized bed reactors', Prog. Wat. Technol. 10, 297-308 (1978).
- Klapwijk, A., 'Eliminatie van stikstof uit afvalwater door denitrificatie', Diss. Wageningen 1978, p. 107.
- Baenens, V. E. A., 'Sturen van een industriële afvalwaterzuiveringsinstallatie door continue analyse', Polytechnisch Tijdschrift Procestechneek 33, 62-67 (1978).



Vereniging van Exploitanten van Waterleidingbedrijven in Nederland

Vergaderingen

- 18 september 1979, 9.50 uur:
Commissie Opleiding in de Waterleiding-techniek, WMN, Utrecht.
- 19 september 1979, 10.15 uur:
College van Commissarissen, KIWA.
- 19 september 1979, 10.30 uur:
Werkgroep Leidingregistratie, WAPROG, Groningen.
- 20 september 1979, 10.15 uur:
College van Bedrijfsdirecteuren, VEWIN-kantoor.
- 25 september 1979, 10.00 uur:
Raad van Advies voor de Redactie van H₂O, VEWIN-kantoor.
- 27 september 1979, 10.30 uur:
Dagelijks Bestuur, VEWIN-kantoor.
- 27 september 1979, 14.00 uur:
Bestuur, VEWIN-kantoor.
- 27 september 1979, 10.30 uur:
Commissie Leerprogramma's Waterleiding-techniek, NV Waterleiding Friesland, Leeuwarden.
- 5 oktober 1979, 9.30 uur:
Centraal Plancollege, NV Waterleiding Friesland, Leeuwarden.
- 5 oktober 1979, 10.00 uur:
Werkgroep Aansluitvoorschriften, Jaarbeurs, Utrecht.
- 10 oktober 1979, 10.30 uur:
Commissie Controle Watermeters, VEWIN-kantoor.
- 11 oktober 1979, 10.15 uur:
College van Bedrijfsdirecteuren, VEWIN-kantoor.
- 12 oktober 1979, 10.00 uur:
Regionale bijeenkomst Noord en Oost (gecombineerd), Zwolle.
- 12 oktober 1979, 14.00 uur:
Regionale bijeenkomst Noord-West, Eemnes.
- 16 oktober 1979, 10.30 uur:
College van Bedrijfsjuristen.
- 19 oktober 1979, 10.15 uur:
Regionale bijeenkomst Zuid-West, Breda.
- 19 oktober 1979, 14.00 uur:
Regionale bijeenkomst Zuid, Eindhoven.
- 22 oktober 1979, 13.30 uur:
Werkgroep Herziening Aanbevelingen, Jaarbeurs.
- 25 oktober 1979, 10.15 uur:
Commissie voor de Examens in de Waterleidingstechniek, VEWIN-kantoor.

Ter inzage gelegde octrooi-aanvragen

- Nadere inlichtingen zijn verkrijgbaar bij de Octrooiraad, Patentlaan 2, Rijswijk, tel. 070 - 907616.
- 7810917 - Werkwijze voor het verminderen van de noodzakelijke energie voor het samenpersen van een zuurstof bevattend gas bij een vochtig oxidatieproces. Sterling Drug Inc. te New York.
- 7808779 - Werkwijze voor het reinigen van afvalwater. Texaco Development Corporation te New York.
- 7811092 - Werkwijze voor het zuiveren van afvalwater. Sterling Drug Inc. te New York.
- 7810491 - Werkwijze ter behandeling van gevaarlijk vloeibaar afval. Stablex AG te Zug, Zwitserland.
- 7809013 - Buigbaar buizensysteem voor hydraulische en sanitaire inrichtingen. Industrie Pirelli SpA te Milaan, Italië.
- 7900420 - Stuurlichaam voor sanitaire mengkraan met enkelvoudige bedieningshefboom. Aktiengesellschaft Karrer, Waber & Cie te Unterkulm, Zwitserland.
- 7900223 - Inrichting voor het ontzouten van water door omgekeerde osmose. Gesellschaft für Kernenergieverwertung in Schiffbau and Schifffahrt mbH te Geesthacht-Tesperhude, BRD.
- 7800864 - Anionisch polymeer met bimodale molecuulgewichtsverdeling geschikt als aanslag-inhibitor en anti-neerslagmiddel in watersystemen. American Cyanamid Company te Wayne, New Jersey, USA.
- 7811143a - Terugslagklep. Firma Carl Freudenberg te Weinheim, BRD.

Openbaar gemaakte octrooiaanvragen

- 160229 - Werkwijze voor de omzetting van organische stoffen door micro-organismen. Dorr-Oliver Incorporated te Stamford, Connecticut, USA.
- 160352 - Inrichting voor het zuiveren van vloeistoffen, in het bijzonder van water. André Verbandt te Knokke, België.

Regencijfers

	Neerslag in mm tijdvak 25-7 t/m 7-8-'79
Valkenburg (ZH)	9,6
Den Helder (De Kooy)	13,7
Schiphol	8,6
De Bilt	14,0
Leeuwarden	37,7
Groningen	51,7
Twente (vliegveld)	24,8
Vlissingen	17,2
Gilze Rijen	30,6
Eindhoven	19,6
Maastricht	20,2

Bron: KNMI