

Titre: Influence des variations de qualité d'eau brute et du vieillissement
Title: des matériaux filtrants sur la performance de la filtration granulaire

Auteur: Isabelle Papineau
Author:

Date: 2013

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Papineau, I. (2013). Influence des variations de qualité d'eau brute et du
Citation: vieillissement des matériaux filtrants sur la performance de la filtration granulaire
[Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie.
<https://publications.polymtl.ca/1192/>

 Document en libre accès dans PolyPublie
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/1192/>
PolyPublie URL:

Directeurs de recherche: Benoit Barbeau, Nathalie Tufenkji, & Pierre Payment
Advisors:

Programme: Génie civil
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

INFLUENCE DES VARIATIONS DE QUALITÉ D'EAU BRUTE ET DU VIEILLISSEMENT
DES MATÉRIAUX FILTRANTS SUR LA PERFORMANCE DE LA FILTRATION
GRANULAIRE

ISABELLE PAPINEAU

DÉPARTEMENT DES GÉNIE CIVIL, GÉOLOGIQUE ET DES MINES
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE PHILOPHIAE DOCTOR
(GÉNIE CIVIL)
JUILLET 2013

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée:

INFLUENCE DES VARIATIONS DE QUALITÉ D'EAU BRUTE ET DU VIEILLISSEMENT
DES MATÉRIAUX FILTRANTS SUR LA PERFORMANCE DE LA FILTRATION
GRANULAIRE

présentée par : PAPINEAU Isabelle

en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiae Doctor

a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de :

Mme DORNER Sarah, Ph.D., présidente

M. BARBEAU Benoit, Ph.D., membre et directeur de recherche

Mme TUFENKJI Nathalie, Ph.D., membre et codirectrice de recherche

M. PAYMENT Pierre, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. COURCELLES Benoît, Ph.D., membre

M. SUMMERS Scott, Ph.D., membre

DÉDICACE

À Mathieu

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, j'aimerais remercier Dr Benoit Barbeau. Benoit, ce fut un plaisir d'avoir un directeur de recherche qui croit dans le constructivisme. Tu as su me guider dans cette aventure qu'est le doctorat et m'épauler lors de nombreux défis. Merci pour ta patience, ton calme, ta flexibilité, ta confiance, ton désir de partager ton expertise, mais surtout ta rigueur scientifique.

J'aimerais aussi remercier mes codirecteurs de recherche Dr Nathalie Tufenkji et Dr Pierre Payment qui m'ont permis de voir les choses d'un autre œil. Merci de votre rigueur, de votre disponibilité, mais aussi de votre sens critique.

Merci à Dr Michèle Prévost et à Raymond Desjardins pour vos nombreux conseils en art oratoire ainsi qu'en enseignement. Merci, Michèle, pour ton enthousiasme et ton optimisme qui sont toujours aussi inspirants.

J'aimerais profiter de l'occasion afin de remercier les membres du personnel de la Chaire qui ont tous, à leur façon, contribué à ce projet. Mille mercis à Mélanie Rivard avec qui j'ai eu le plaisir de partager les joies et les déceptions des résultats en temps réel. Au travers toutes nos aventures, tu m'as enseigné comment utiliser de ma créativité à bon escient afin de maximiser le rendement et la productivité au laboratoire. J'aimerais aussi remercier Yves Fontaine et Mireille Blais, sans qui l'élaboration et l'opération des montages pilotes n'auraient été possibles. Votre patience et votre bonne humeur ont créé un milieu de travail propice à l'apprentissage. Je tiens aussi à remercier Jacinthe Mailly et Julie Philibert, qui au cours des dernières années, ont été une source de bons conseils que ce soit sur le plan scientifique ou personnel. Un merci à Marcellin Fotsing pour les multiples explications et enseignements en chimie. Je remercie aussi France Boisclair et Laura Razafinjanahary pour leur aide et leur support. Enfin, je remercie Erika Deziel, Lamine Diop, Louis Lafond et Simon Léveillé qui ont participé à ce projet de recherche à titre de stagiaires.

Je remercie particulièrement Cindy, Arash, Françoise et Majdala avec qui j'ai eu la chance de partager la majeure partie des périples et des étapes charnières du doctorat. Votre amitié, générosité, sens de l'humour et solidarité ont fait de mon séjour à Polytechnique une expérience inoubliable. C'est en côtoyant des gens comme vous qu'on comprend que l'union fait la force! J'aimerais aussi remercier tous mes collègues que j'ai eu le plaisir de côtoyer au cours des

années. Un merci spécial à Céline, à Élise et à Nathasha pour vos mots d'encouragement, à Ana et à Murielle pour votre écoute, à Guillaume pour ton aide lors de ma transition à Polytechnique, à Daniel, à Gabriel et à Éric pour les discussions philosophiques, à Clément pour tes questions et ton sens de l'analyse, à Pierre pour le tiramisu avant les examens et à Romain pour ta générosité.

Je tiens aussi à remercier la contribution scientifique de mes collaborateurs et coauteurs. Je remercie Dr Pierre Servais pour son intérêt exprimé envers mon projet ainsi que son soutien lors de présentations au WQTC. I would also like to take this opportunity to acknowledge the participation of Dr. Wim Hijnen and Dr. Patrick Smeets with whom I have had the pleasure to work with. Thank you for your words of wisdom and scientific advice.

I would also like to extend my gratitude to Dr. George DiGiovanni for the warm welcome and hospitality in El Paso but mostly for his willingness to share his knowledge and scientific opinions which I truly value.

Je remercie de tout coeur Mathieu, mes parents et Stéphane. Merci de votre support et de votre encouragement dans tout ce que j'entreprends. Je me considère choyée de vous avoir dans ma vie. Enfin, j'aimerais aussi remercier Nicole pour ses mots de sagesse qui m'ont fait comprendre que le parcours est souvent plus important que la finalité.

J'aimerais exprimer ma reconnaissance au CRSNG et aux partenaires de la chaire, soit la Ville de Montréal, John Meunier Inc. et la Ville de Laval qui ont permis la réalisation de ces travaux.

Finally, I would like to take this opportunity to thank Dr. Sarah Dorner, Dr. Scott Summers, Dr. Benoit Courcelles, Dr. Benoit Barbeau, Dr. Nathalie Tufenkji and Dr. Pierre Payment who agreed as member of the examination committee to revise and comment this dissertation.

RÉSUMÉ

Le traitement de l'eau potable a comme principale mission de protéger la santé publique. En absence d'éclosion de maladies d'origine hydrique, il est difficile d'établir le lien entre la consommation d'eau potable et le risque d'infection de la population desservie (Teunis & Havelaar 2002). Dans ces circonstances, les modèles d'analyse quantitative du risque microbien (QMRA) permettent d'évaluer la relation entre les concentrations de microorganismes pathogènes à la source, le traitement et la distribution des eaux potables et la santé publique (Regli *et al.* 1991, Teunis *et al.* 1997). Dans une approche multi-barrières du traitement des eaux potables, la description de la performance de chacun des procédés d'une filière de traitement est considérée lors de l'évaluation de l'exposition (Medema & Ashbolt 2006). Actuellement, la plupart des usines canadiennes desservies par des eaux de surface misent sur l'opération de procédés de filtration granulaire afin d'atteindre les objectifs de traitement en matière de *Cryptosporidium* et *Giardia* imposés par la réglementation. Dans ce contexte, il est nécessaire de décrire la performance de ces procédés avec précision afin de pouvoir générer un calcul qui reflète le risque réel d'infection à ces protozoaires parasites. De plus, afin de mieux comprendre les paramètres qui contribuent aux variations de performance de procédés de filtration, il est d'intérêt de combler les lacunes en ce qui concerne l'influence des variations de qualité d'eau brute et de l'impact des caractéristiques des matériaux filtrants sur l'enlèvement de *Cryptosporidium* et *Giardia* par filtration granulaire.

L'objectif général de ce projet d'études doctorales est de comprendre le rôle (i) du vieillissement des matériaux filtrants et (ii) de la nature des particules à l'eau brute sur l'enlèvement de protozoaires parasites par filtration granulaire.

Précisément, les objectifs spécifiques suivants ont été développés pour permettre la réalisation de cet objectif général:

- 1) Étudier l'impact du type et des propriétés de surface de matériaux filtrants sur l'enlèvement de *Cryptosporidium* par filtration granulaire.
- 2) Caractériser l'enlèvement de microsphères (substitut de *Cryptosporidium*) par filtration directe sur sable non assistée chimiquement en fonction de la concentration et de la nature des particules à l'eau brute.

- 3) Évaluer si la performance du traitement conventionnel à l'échelle réelle est influencée par la turbidité, la teneur en particules ou la concentration en endospores de bactéries sporulantes aérobies (BSA) des eaux brutes.
- 4) Comparer la performance du traitement conventionnel de plusieurs installations à l'égard de l'abattement d'endospores de BSA afin de déterminer s'il est pertinent d'utiliser des crédits d'enlèvement identiques pour chaque installation lors de l'analyse quantitative du risque microbien (QMRA).
- 5) Discuter de la pertinence d'utilisation de BSA à titre d'indicateur du traitement conventionnel en eaux chaudes compte tenu des enjeux reliés à leur recroissance possible dans les filtres granulaires.

La première phase de ce projet consiste à évaluer l'impact du type et du vieillissement des matériaux filtrants sur l'enlèvement de *Cryptosporidium parvum*. Pour ce faire, des colonnes de filtration de sable, d'antracite et de charbon actif en grains (CAG) identiques en matière de granulométrie et de dimensionnement ont été opérées en parallèle en laboratoire. Des colonnes ont été vieilles sur une période dix-huit semaines et alimentées avec une eau amendée de nutriments (C:N:P de 100:10:1) pour promouvoir la croissance bactérienne en surface des matériaux. Les résultats obtenus démontrent que la rétention d'oocystes par des matériaux neufs est fonction de leur forme et de leur teneur en métaux, mais aussi des variations de qualité d'eau en matière de carbone organique total (COT). Notamment, une baisse de performance a été observée à la suite d'une hausse de COT, et ce, de façon plus importante pour le CAG, en raison de la capacité d'adsorption de ce matériau. Pour une même qualité d'eau, le vieillissement de matériaux améliore considérablement la performance du sable (26 %) et du CAG (31 %) et a peu d'impact sur la performance de l'antracite. De toutes les conditions testées, le CAG usagé, qui selon les mesures de protéines et polysaccharides était le type de matériau le plus colonisé, a offert la meilleure performance (71 ± 2 %). Bref, les résultats obtenus dans le cadre de ces travaux ont permis de conclure que la formation de biofilm par des bactéries autochtones en surface de matériaux filtrants améliore l'efficacité d'enlèvement de *Cryptosporidium* par filtration directe non assistée chimiquement.

La deuxième étape de ce projet consiste à évaluer en laboratoire l'impact de la concentration de particules d'argile (kaolinite) sur la rétention de microsphères, utilisées à titre de substituts pour

Cryptosporidium, par filtration sur sable. Les concentrations de particules de kaolinite (0 à 10^6 particules mL^{-1}) ont été choisies afin de refléter les concentrations typiques des eaux de surface. En parallèle, des essais ont été menés avec une concentration équivalente de microsphères (10^2 à 10^6 microsphères mL^{-1}) en absence de particules de kaolinite. Les résultats obtenus démontrent que l'enlèvement de microsphères est fonction de la nature des particules. En absence de particules de kaolinite, une augmentation de la concentration de microsphères injectées réduit l'efficacité d'enlèvement de filtres à sable non assistés chimiquement. Les courbes de percées observées indiquent que cette baisse de performance s'explique par un blocage des sites d'attachement puisque les interactions microsphères-microsphères sont non favorables. Ainsi, l'adhésion de microsphères au grain a pour effet de hausser la répulsion entre le sable et les microsphères en suspension et de diminuer la rétention au sein du lit filtrant. À l'opposé, une augmentation de la concentration de particules de kaolinite améliore l'enlèvement de microsphères. Les courbes de percées observées indiquent que cette hausse de rétention est attribuée à la maturation des grains de sable puisque les interactions kaolinite-microsphères sont favorables malgré que les deux types de particules soient chargés négativement. De ce fait, les particules d'argile adhèrent au grain de sable ce qui a pour effet de créer de nouveaux sites d'attachement disponibles aux microsphères en suspension. En conclusion, la performance de la filtration directe non assistée chimiquement est moindre lors de pointes de concentrations de *Cryptosporidium* et de *Giardia* en eaux peu turbides. À l'opposé, elle est accrue lors de pointes de turbidité minérale.

La dernière étape de ce projet de recherche traite de l'analyse de données historiques d'indicateurs de traitement conventionnel provenant de sept usines québécoises. Les données ont été analysées dans une perspective de mieux comprendre l'ampleur de la variabilité inter-usine et de déterminer les paramètres clés qui gouvernent l'abattement d'endospores de BSA. De plus, elles ont permis d'étudier le biais méthodologique associé à l'usage d'endospores de BSA à titre d'indicateur de traitement en eaux chaudes. Les résultats obtenus démontrent que l'enlèvement d'endospores de BSA n'est pas constant comme prédit par les crédits d'enlèvement et que celui-ci est étroitement relié à la concentration d'endospores de BSA à l'eau brute. Par ailleurs, les résultats démontrent que la variabilité de performance inter-usines tout comme la variation de performance temporelle d'une même installation sont considérables. Quant au biais méthodologique associé à la recroissance de BSA en eaux chaudes, celui-ci s'avère négligeable

pour les usines recensées. Alors, les données indiquent qu'il est de mise de faire l'usage d'endospores de BSA afin de décrire la performance du traitement conventionnel dans un contexte québécois. Pour terminer, il est préférable de décrire la performance propre au site du traitement conventionnel à l'aide d'indicateurs de traitement afin de refléter la conception, l'opération et la qualité d'eau brute d'une usine dans le cadre d'analyse de risque de type QMRA.

En conclusion, le type ainsi que le niveau de colonisation bactérienne des matériaux filtrants, la concentration initiale de kystes et d'oocystes tout comme les pointes de turbidité minérale à l'eau brute, contribuent à la variabilité de performance de la filtration granulaire. De surcroît, les différences de conception, d'opération et de qualité d'eau brute propre à chaque usine font en sorte que les crédits d'enlèvement octroyés par la réglementation n'offrent pas une description exacte de la performance de procédés de filtration granulaire. Ainsi, l'usage de probabilité de densité de fonction générée par des données historiques d'indicateurs de traitement devrait être utilisé à titre d'option alternative à l'usage de crédits d'enlèvement afin de décrire la performance de procédés de filtration propre au site lors de l'élaboration de modèles de type QMRA. Compte tenu des résultats obtenus dans le cadre de cette thèse, il est envisageable, en milieu tempéré, d'utiliser des mesures d'endospores de BSA à cette fin puisque la recroissance au sein des installations de production d'eau potable semble négligeable même lorsqu'alimentées en eaux chaudes.

ABSTRACT

The primary role of drinking water treatment is to protect public health. In the absence of waterborne outbreaks, it is difficult to assess the health risk associated with drinking water consumption (Teunis & Havelaar 2002). In such circumstances, quantitative microbial risk analysis (QMRA) models may be used to assess the relation between microbial concentrations in drinking waters and public health (Regli *et al.* 1991, Teunis *et al.* 1997). In a multi-barrier approach to drinking water treatment, process performance of each treatment step contribute to the exposure assessment (Medema & Ashbolt 2006). As most Canadian water treatment plants fed with surface water currently rely on granular filtration processes to meet *Cryptosporidium* and *Giardia* treatment requirements as specified by regulation, it is necessary to accurately describe these processes in QMRA models. This is of importance to generate risk calculation outputs that accurately estimate the actual risk of infection associated to these protozoan parasites. Moreover, to better understand the parameters that contribute to performance variations of these processes, it is of interest to fill the gaps with regards to the influence of source water quality variations and the impact of filter media surface properties may have on *Cryptosporidium* and *Giardia* removal by granular filtration.

The general objective of this Ph.D. thesis is to understand the role of (i) media aging and (ii) of the particulate properties of influent water on protozoan parasite removal by granular media filters.

Precisely, the following specific objectives have been developed to enable the achievement of this general objective:

- 1) Study the impact of granular media type and surface properties on *Cryptosporidium* removal by granular filtration experiments.
- 2) Characterize *Cryptosporidium*-sized microsphere removal by direct sand filtration without coagulation, with various influent microsphere and clay particle concentrations in order to assess the impact of the dominant particle nature.
- 3) Confirm whether or not the performance of full-scale conventional treatment is influenced by source water turbidity, particulate content and/or influent aerobic endospore (AE) concentrations.

- 4) Compare the performance of several conventional treatment utilities with regards to AE removal in order to determine whether it is appropriate to use the unique removal credits for each facility while conducting a quantitative microbial risk analysis.
- 5) Discuss the relevance of using AEs as a conventional process indicator in warm waters, considering issues related to their potential regrowth in granular filters.

Firstly, this research project assessed the impact of media type and media aging on *Cryptosporidium parvum* removal by granular filtration. Filtration experiments were conducted with both new and aged sand, anthracite and granular activated carbon (GAC) columns of identical design and granular size distribution. To promote biofilm development on the surface of collector grains during media aging, columns were fed with influent water amended with nutrients (C: N: P of 100:10:1) for a period of 18 weeks. Variation in oocyst retention by new media was attributed to media shape and media extractable metal content, but also to influent water quality variations. Specifically, decreased removal efficiencies were observed as a result of increased total organic carbon (TOC) concentrations of influent water. This decreased performance, due to TOC concentrations, proved to be more important for GAC due to its higher adsorption capacity. Overall, media aging significantly improved the performance of sand (26 %) and GAC (31 %) and had little impact on the performance of anthracite. Of the tested conditions, aged CAG offered the best performance (71 ± 2 %). According to proteins and polysaccharides measurements GAC supported the highest amount of biomass. In summary, the results obtained in this study led to the conclusion that biofilm formed by autochthonous bacteria on the surface of granular media improves *Cryptosporidium parvum* removal by direct filtration without coagulation.

Secondly, this research project studied the impact of clay particle concentrations on the co-transport behavior of *Cryptosporidium* sized-microspheres in sand columns. Tested clay (kaolinite) particle concentrations (0 - 10^6 particles mL^{-1}) were chosen to reflect typical particle concentrations in surface waters. To assess the impact of the dominant particle nature on microspheres removal, experiments were also conducted using equivalent microspheres concentrations (10^2 - 10^6 microspheres mL^{-1}) in the absence of kaolinite particles. The results show that microsphere removal is subject to the dominant particle nature of influent water. In absence of kaolinite, microsphere removal was impaired by higher influent microsphere concentrations.

The observed breakthrough curves indicate that this decreased performance is due to a blocking mechanism, as microsphere-microsphere interactions showed to be unfavorable due to their negative charge. In contrast, microsphere removal was improved by increased influent kaolinite concentrations. The observed breakthrough curves indicate that this increased retention is attributed to media ripening as the kaolinite-microsphere interactions proved to be favorable, although both particles were negatively charged. Hence, the clay particles adhere onto sand grains and create new attachment sites available for incoming microsphere deposition. In conclusion, direct sand filtration without coagulation seems to be more vulnerable to high *Cryptosporidium* and *Giardia* concentrations in low turbidity waters, whereas it seems to be enhanced by mineral turbidity peaks.

Lastly, this Ph.D. work evaluated historical process indicator data provided by seven conventional water treatment plants (WTPs) located in southern Quebec. The data were analyzed with the perspective to better understand the importance of site-specific performance as well as to identify parameters that drive AE removal. The potential methodological bias of using AE to evaluate treatment performance due to their growth within process units operated warm waters was also assessed. Results demonstrate that both site-specific and temporal local specific performance variations are significant. Therefore, AE removal by optimized conventional WTPs has shown to be inaccurately described by constant removal credits. As per the methodological bias associated with AE regrowth in warm waters, it proved to be negligible for the surveyed WTPs. Hence, the use AE as process indicator in temperate climates proves to be appropriate and may be used to describe the site specific performance of conventional treatment in QMRA models.

In conclusion, biofilm development and media type, influent (oo)cyst concentrations as well as mineral turbidity peaks in raw water, all contribute to the performance variability of granular filtration. In addition, differences in design, operation and raw water quality are such that the fixed removal credits granted by the regulation do not accurately describe the performance of granular filtration processes. Thus, the use of a probability density function generated by historical process indicators data should be used as an alternative to the use of removal credits to describe the granular filtration processes in QMRA models. Considering the results obtained in the scope of this work, in temperate climates, to use AE removal data for this purpose is

advisable as AE regrowth within facilities seems to be negligible even under warm water conditions.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE.....	III
REMERCIEMENTS	IV
RÉSUMÉ.....	VI
ABSTRACT	X
TABLE DES MATIÈRES	XIV
LISTE DES TABLEAUX.....	XIX
LISTE DES FIGURES.....	XX
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	XXII
LISTE DES ANNEXES.....	XXIV
INTRODUCTION.....	1
Mise en contexte.....	1
Structure de la dissertation	4
CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE	5
1.1 Les protozoaires parasites <i>Cryptosporidium</i> et <i>Giardia</i>	5
1.1.1 Biologie	5
1.1.2 Épidémiologie	7
1.1.3 Sources de pointes de contamination des eaux de surface	8
1.1.4 Stratégies d'élimination par le traitement des eaux potables	14
1.2 Mécanismes et modèles théoriques d'enlèvement de colloïdes en milieu poreux	16
1.2.1 Transport	17
1.2.2 Attachement	18
1.2.3 Modèles théoriques microscopiques	20

1.3	Enlèvement de protozoaires parasites par filtration granulaire en traitement des eaux potables.....	25
1.3.1	Propriétés de surface et rétention de protozoaires en milieu poreux.....	25
1.3.2	Substituts pour les kystes et oocystes.....	28
1.3.3	Sommaire des essais pilotes et à l'échelle réelle.....	32
1.3.4	Variations de qualité d'eau et performance de filtres granulaires.....	36
CHAPITRE 2	OBJECTIFS DE RECHERCHE ET PLAN EXPÉRIMENTAL	41
2.1	Critique des travaux antérieurs.....	41
2.2	Objectifs	44
2.3	Hypothèses de recherche.....	46
2.4	Méthodologie	48
2.4.1	Étude de l'impact du vieillissement des matériaux sur l'enlèvement de <i>Cryptosporidium</i> par filtration granulaire (objectif spécifique 1).....	49
2.4.2	Évaluation de l'impact de la concentration et la nature de particules sur la performance de la filtration sur sable en laboratoire (objectif spécifique 2)	51
2.4.3	Impact de la concentration microbienne et de la turbidité à l'eau brute sur l'enlèvement de bactéries sporulantes aérobies (BSA) : Analyse historique de sept usines québécoises (objectifs spécifiques 3, 4 et 5)	53
2.4.4	Sommaire des méthodologies mises en oeuvre.....	55
CHAPITRE 3	PUBLICATION # 1: IMPACT OF MEDIA AGING ON THE REMOVAL OF <i>CRYPTOSPORIDIUM</i> IN GRANULAR MEDIA FILTERS	59
3.1	Introduction	60
3.2	Materials and methods	62
3.2.1	Transport experiments.....	62
3.2.2	Porous media	63
3.2.3	Media aging.....	64

3.2.4	Media characterization	64
3.2.5	<i>Cryptosporidium</i> oocysts.....	65
3.2.6	<i>Cryptosporidium</i> enumeration.....	65
3.2.7	Assessment of retained oocysts and mass balance calculations.....	65
3.2.8	Calculation of retention profiles.....	67
3.2.9	Statistical analysis	67
3.3	Results	67
3.3.1	Seasonal performance of new media.....	67
3.3.2	Impact of media aging on oocyst removal	68
3.3.3	Mass balance of oocysts	69
3.3.4	Retention profiles	69
3.3.5	Metal oxides	70
3.3.6	Biofilm development.....	75
3.4	Discussion	76
3.4.1	Oocyst removal by new media: Impact of media type	76
3.4.2	Oocyst retention profiles	78
3.4.3	Impact of media aging.....	80
3.5	Summary and conclusions.....	81
CHAPITRE 4 PUBLICATION # 2: IMPACT OF KAOLINITE CLAY PARTICLES ON THE FILTRATION OF <i>CRYPTOSPORIDIUM</i> -SIZED MICROSPHERES		83
4.1	Introduction	84
4.2	Materials and methods	86
4.2.1	<i>Cryptosporidium</i> -sized Microspheres.....	86
4.2.2	Kaolinite clay suspension.....	87
4.2.3	Electrokinetic properties of <i>Cryptosporidium</i> -sized microspheres and of kaolinite..	87

4.2.4	Filtration experiments and column set-up	87
4.2.5	Tracer experiments	88
4.2.6	Spatial distribution of retained microspheres	89
4.2.7	Mass balance	89
4.2.8	Calculation of particle deposition rates	89
4.3	Results and Discussion	90
4.3.1	Tracer experiments	90
4.3.2	Impact of influent kaolinite and <i>Cryptosporidium</i> -sized microsphere concentration on filter performance	90
4.3.3	Mass balance of filter coring	94
4.3.4	Microsphere retention profiles	94
4.3.5	Implications for the water industry	96
4.4	Conclusions	97
CHAPITRE 5	PUBLICATION #3: ASSESSING THE USE OF AEROBIC ENDOSPORES TO DESCRIBE CONVENTIONAL TREATMENT PERFORMANCE IN QMRA	98
5.1	Introduction	99
5.2	Methods	102
5.2.1	Description of evaluated treatment plants and data	102
5.2.2	Data Analysis	104
5.3	Results	106
5.3.1	Description of available data	106
5.3.2	Influence of source water turbidity and aerobic endospore influent concentration on treatment performance	107
5.3.3	Approach 4: Step Forward Regression Model	112
5.4	Discussion	115

5.4.1	Limitation of using fixed removal credits	115
5.4.2	Impact of water temperature	117
5.4.3	Limitations to the use of aerobic endospore data	118
5.5	Conclusions	119
CHAPITRE 6 DISCUSSION GÉNÉRALE		120
6.1	Influence des propriétés des matériaux filtrants.....	121
6.1.1	Influence du type de matériaux	121
6.1.2	Influence de l'âge des matériaux.....	122
6.2	Influence de la qualité de l'eau brute	124
6.2.1	Impact des pointes de concentration de protozoaires parasites.....	124
6.2.2	Impact de pointes de turbidité minérale sur l'enlèvement de protozoaires parasites.....	126
6.3	Utilisation d'indicateurs de traitement pour décrire la performance de procédés physico-chimiques.....	128
6.3.1	Limite d'utilisation des BSA à titre d'indicateur de traitement	128
6.3.2	Description de la performance propre au site du traitement conventionnel.....	129
CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS		132
RÉFÉRENCES		136
ANNEXES		154

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1. Sommaire des paramètres adimensionnels nécessaires pour l'évaluation de l'efficacité de collision d'un seul grain (η_0).....	24
Tableau 2.1. Sommaire des concentrations de microsphères et de kaolinite testées dans le cadre des essais de filtration sur sable.	52
Tableau 2.2. Sommaire de la démarche expérimentale de validation des hypothèses de recherche.	56
Table 3.1. Experimental design (number of transport experiments ¹).....	63
Table 3.2. Water quality of influent water.....	63
Table 3.3. Mass balance of oocysts calculated with breakthrough curves and retention profiles (fall).....	72
Table 3.4. Mass balance of oocysts calculated with breakthrough curves and retention profiles (fall).....	73
Table 3.5. Concentration of extracted metals per unit of volume of new and aged media.	73
Table 4.1. Experimental design.	88
Table 4.2. Deposition rate coefficient (k_d) of filtration experiments and mass balance of filter coring experiments.	94
Table 5.1. Source, treatment regime and sampling period per water treatment plant.	103
Table 5.2. Available aerobic endospore data (log CFU L ⁻¹).	103
Table 5.3. Analysis of variance (%) of the regression model (forward stepwise) developed to predict effluent aerobic endospore concentrations.....	114

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1: Illustration des mécanismes d'enlèvement en milieu poreux soit la formation de gâteau, l'enlèvement stérique et enlèvement physico-chimique (tiré de McDowell-Boyer <i>et al.</i> 1986).	17
Figure 1.2: Illustration des mécanismes de transport (tiré de Yao <i>et al.</i> 1971)	18
Figure 3.1: Seasonal variability of <i>Cryptosporidium</i> removal by new media in summer and fall.	68
Figure 3.2: Comparison of <i>Cryptosporidium</i> removals by new and aged media in fall.	69
Figure 3.3: Breakthrough curves of new media, aged media and pre-chlorinated aged media in sand, anthracite and GAC columns.	71
Figure 3.4: Measured retained oocyst concentration profiles of new media, aged media and pre-chlorinated aged media in sand, anthracite and GAC columns corrected for the recovery of extraction protocols of every tested condition.	74
Figure 3.5: Measured polysaccharides and proteins on aged sand, aged anthracite and aged GAC.	75
Figure 3.6: Representative images of tested granular media. Comparison of SEM images of new sand, new anthracite and new GAC.	76
Figure 3.7: Impact of media aging on the shape of GAC grains. Comparison of SEM images of new GAC and aged GAC.	76
Figure 4.1: Comparison of microsphere (MS) breakthrough curves of filtration experiments conducted with a total particulate load of 10^2 particles mL^{-1} , 10^4 particles mL^{-1} , and 10^6 particles mL^{-1} in absence or presence of kaolinite particles (K).....	91
Figure 4.2: Influent particle size distribution of microsphere (MS) and kaolinite particle (K) suspensions of 10^6 K mL^{-1} without MS, 10^2 MS + 10^4 K mL^{-1} and 10^2 MS + 10^6 K mL^{-1} ...	93
Figure 4.3: Measured retained microsphere concentration profiles of filtration experiments conducted with a total influent particulate load of 10^2 particles mL^{-1} , 10^4 particles mL^{-1} and 10^6 particles mL^{-1} in absence or presence of kaolinite.....	96

Figure 5.1: Median source water turbidity and median source water aerobic endospore concentration of surveyed water treatment plants.....	106
Figure 5.2: Complementary cumulative density function of aerobic endospore concentration per water treatment plant in source water, clarifier effluent and filter effluent.	107
Figure 5.3: Point estimate of aerobic endospore (AE) removal of conventional treatment as a function of mean source water turbidity and mean source water AE concentration per water treatment plant.....	109
Figure 5.4: Median aerobic endospore (AE) removal by sedimentation, granular filtration and conventional treatment in cold and warm water per water treatment plant..	111

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

AE	Aerobic endospore
AWWA	American Water Works Association
BSA	Bactéries sporulantes aérobies
BTC	Breakthrough curve
CAG	Charbon actif en grains
CCDF	Complementary cumulative density function
COD	Carbone organique dissous
CFT	Classical colloid filtration theory
DI	Deionized
DOC	Dissolved organic carbon
DLVO	Derjaguin-Landau-Vervey-Overbeek
EPS	Extracellular polymeric substances
FITC	Fluorescein isothiocyanate
GAC	Granular activated carbon
ICP-AES	Inductively coupled plasma atomic emission spectrometry
ICR	Information Collection Rule
K	Particules de kaolinite / Kaolinite particles
k_d	Taux de rétention des particules / Deposition rate coefficient
LT2ESWTR	Long Term 2 Enhanced Surface Water Treatment Rule
MDDEP	Ministère du Développement Durable, de l'Environnement et des Parcs
MES	Matières en suspension
MON	Matière organique naturelle
MS	Microsphères / Microspheres

NOM	Natural organic matter
P	Proteins
PBS	Phosphate buffered saline
PDF	Probabilité de densité de fonction / Probability density function
PV	Volume des pores / Pore volume
PVC	Polychlorure de vinyle / polyvinyl chloride
PS	Polysaccharides
QMRA	Analyse quantitative du risque microbien / Quantitative microbial risk assessment
SEM	Scanning electron microscopy
SRNOM	Suwannee river natural organic matter
SSRC	Spores de Clostridia sulphato réducteur / Spores of sulphite-reducing clostridia
TOC	Total organic carbon
USEPA	United States Environmental Protection Agency
UV	Ultraviolet
WTP	Usine / Water Treatment Plant

LISTE DES ANNEXES

Annexe 1- Schéma des colonnes de filtration.....	154
Annexe 2- Supplemental Data of Publication #1: Impact of Media Aging on the Removal of <i>Cryptosporidium</i> in Granular Media Filters.....	154
Annexe 3- Supplemental Information of Publication #2: Impact of kaolinite Clay Particles on the Filtration of <i>Cryptosporidium</i> -sized Microspheres.....	158

INTRODUCTION

Mise en contexte

Le traitement des eaux potables a comme principal objectif de protéger la santé publique en limitant l'exposition d'une population à des microorganismes pathogènes ou à des contaminants chimiques néfastes. Dans cette optique, l'utilisation de filtres granulaires dans les installations de traitement a pour but de permettre l'enlèvement physique de microorganismes, de minéraux en suspension et de colloïdes organiques (Hendricks *et al.* 2005). Plus de 140 ans à la suite de la mise en service du premier filtre à sable lent en Amérique, à Poughkeepsie (N.Y.) en 1872, le traitement des eaux potables par l'intermédiaire d'une approche multi-barrière qui comprend une étape de filtration granulaire est toujours chose courante (Symons 2006). Puisque la filtration lente est inadaptée pour le traitement des eaux de surface turbides et fortement colorées, des installations munies de décanteurs suivis de filtres rapides ont rapidement vu le jour. À titre d'exemple, l'usine Atwater de la ville de Montréal munie de filtres à sable rapides fut inaugurée en 1918. Quelques années plus tard, l'usage de coagulant a permis d'accélérer la vitesse de décantation/filtration (et par extension la taille des installations) tout en améliorant la qualité d'eau traitée. Le traitement des eaux de surface au moyen de cette approche est à ce point répandu qu'on y réfère communément à titre de traitement conventionnel lequel se définit comme l'utilisation d'une filière de traitement qui comprend une coagulation suivie d'une floculation, d'une décantation et ensuite d'une filtration granulaire (Logsdon *et al.* 2006).

D'autres avancées liées au choix des matériaux filtrants à utiliser ou à la mise en œuvre du prétraitement ont permis à la filière conventionnelle de demeurer encore de nos jours une alternative compétitive. Nonobstant les progrès technologiques au niveau du prétraitement chimique comme l'utilisation de coagulants et l'instauration de floculateurs au début du 20^e siècle, l'apparition de filtres bicouches lors de la Deuxième Guerre mondiale a permis d'augmenter la vitesse de filtration de même que la durée des cycles de filtration puisque ceux-ci permettent un meilleur enlèvement des particules sur toute la profondeur du lit filtrant contrairement aux filtres monocouches à sable (Logsdon *et al.* 2006). Les filtres bicouches sont ainsi composés de deux types de matériau filtrant, un premier, plus grossier, en surface (généralement de l'antracite) de taille supérieure et d'une densité relative plus faible que le

deuxième en profondeur, plus fin (généralement du sable) et d'une densité relative plus élevée ce qui permet de maintenir une stratification après un rétro lavage. Depuis les années 1960, le charbon actif en grains (CAG) a, dans certains cas, remplacé l'usage d'anthracite afin de permettre simultanément l'enlèvement de particules et l'adsorption de contaminants organiques. À l'époque, les contaminants organiques ciblés étaient notablement les composés organiques (i.e. géosmine et 2-méthylisobornéol (MIB)) responsables des goûts et des odeurs (Logsdon *et al.* 2006). Néanmoins, une fois épuisé, le CAG doit être réactivé afin de maintenir sa capacité d'adsorption. Ceci peut s'avérer coûteux. À titre d'option alternative à la réactivation du CAG, le développement de biomasse en surface des matériaux filtrants peut être favorisé de sorte que les filtres sont opérés en mode biologique. Il est à noter que des filtres à sable et à anthracite peuvent aussi être opérés en mode biologique. La filtration biologique a comme avantage de permettre une diminution de la production de sous-produit d'oxydation et de la demande en chlore lors de la post-chloration, mais aussi une augmentation de la stabilité biologique de l'eau traitée (Prévost *et al.* 2005, Rittmann & Snoeyink 1984). Somme toute, l'utilisation de procédés de filtration granulaires permet de répondre simultanément à une multitude d'objectifs de traitement. Ainsi, l'opération et la conception de ces procédés sont propres à chacune des types d'eaux à traiter.

Bien que le traitement des eaux potables ait permis de réduire l'occurrence des épidémies de choléra et de typhoïde, certains microorganismes présentent toujours un intérêt sanitaire en raison de leur résistance aux pratiques conventionnelles de désinfection (Rochelle & Clancy 2006, Logsdon *et al.* 2006). À l'heure actuelle, nonobstant le fait que les épidémies de choléra et de typhoïde soient toujours responsables d'un taux de mortalité élevé dans les pays du tiers monde, le danger associé aux maladies hydriques en Occident est plutôt attribué à des microorganismes résistants au traitement, (e.g. les protozoaires parasites) ou à des microorganismes en mesure de se reproduire dans les réseaux de distribution (e.g. *L. pneumophila*) (Rochelle & Clancy 2006, Craun *et al.* 2010). Dans ce contexte, les protozoaires parasites comme *Cryptosporidium* spp. et *Giardia* spp. figurent parmi les microorganismes pathogènes les plus critiques pour le traitement d'eaux de surface (World Health Organization (WHO) 2002). Conséquemment, le contrôle du risque lié à la présence de *Cryptosporidium* et *Giardia* fait partie des objectifs réglementaires de plusieurs pays. L'importance sanitaire de *Cryptosporidium* spp. est non seulement associée à sa faible dose infectieuse (Chappell *et al.* 1996, DuPont *et al.* 1995), à sa prévalence dans les eaux

de surface (McTigue *et al.* 1998, Messner & Wolpert 2002), mais aussi à sa résistance aux désinfectants communément utilisés en traitement des eaux potables comme le chlore (Korich *et al.* 1990). À l'inverse, les kystes de *Giardia* spp. ne sont pas aussi résistants au chlore mais nécessitent tout de même une dose et un temps de contact plus élevés que les bactéries entéropathogènes afin de permettre une désinfection efficace (World Health Organization (WHO) 2011). Par ailleurs, ces protozoaires se distinguent par un taux élevé de prévalence d'infections diagnostiquées au sein de la population (Baldursson & Karanis 2011, Craun *et al.* 2010, Schuster *et al.* 2005). Étant donné que la désinfection chimique ne permet pas à elle seule l'atteinte des objectifs réglementaires de traitement pour *Cryptosporidium* et *Giardia*, plusieurs installations misent sur la performance de procédés de filtration afin de permettre l'enlèvement de ces protozoaires (Betancourt & Rose 2004).

Afin de minimiser le risque microbiologique associé à la consommation d'eau potable, il est d'intérêt de bien comprendre le fonctionnement des procédés physico-chimiques puisqu'il s'agit d'une barrière clé pour l'enlèvement de parasites. Malgré le resserrement des normes en ce qui concerne les exigences d'abattement de *Cryptosporidium* et des critères d'opération des procédés de filtration (i.e. turbidité à l'eau filtrée), des protozoaires infectieux peuvent tout de même être détectés dans les eaux filtrées (Aboytes *et al.* 2004). Dans un contexte où le nombre de cas de gastroentérites au sein de la population locale est trop faible pour être détecté par des outils de surveillance de santé publique (Teunis & Havelaar 2002), il est difficile de déterminer les circonstances où le risque d'infection à la suite de la consommation d'eau potable est accru. Pour cette raison, des modèles quantitatifs de risques microbiologiques (QMRA) ont été créés afin d'évaluer le risque en tenant compte de l'exposition et de la virulence de différents microorganismes (World Health Organization (WHO) 2011). Afin de tirer profit de ces modèles, il est nécessaire de comprendre les variations de concentrations de *Cryptosporidium* et *Giardia* aux prises d'eau brutes d'installation de traitement des eaux potables, mais aussi de bien décrire l'efficacité de traitement. Spécifiquement, il est astucieux de bien décrire la performance des procédés unitaires de traitement des eaux potables afin de pouvoir déterminer les conditions où la performance est moindre et que les probabilités d'exposition à ces protozoaires parasites sont accrues. Pour cette raison, cette thèse porte sur l'étude de l'impact de la qualité d'eau brute ainsi que sur les caractéristiques des matériaux filtrants dans la perspective de comprendre les causes des variations de performance des procédés de filtration granulaire. À terme, il est attendu que ce

travail permette de raffiner les prédictions des modèles prédictifs de type QMRA ainsi que proposer des solutions techniques permettant d'accroître la stabilité de la qualité des eaux filtrées produites par filtration granulaire.

Structure de la dissertation

Cette thèse présente tout d'abord une revue de littérature (Chapitre 1). Ensuite, le chapitre 2 expose les objectifs et les hypothèses de ce projet de recherche ainsi qu'une brève description de la méthodologie utilisée. Le chapitre 3 présente l'étude de l'impact du vieillissement de matériaux filtrants sur l'enlèvement de *Cryptosporidium parvum* par filtration granulaire (1^{re} publication). Le chapitre 4 présente l'étude de l'influence de la présence de particules d'argile sur l'enlèvement de microsphères par la filtration sur sable (2^e publication). Le chapitre 5 présente l'étude de données historiques de bactéries sporulantes aérobies (BSA) issues de sept usines québécoises dans une perspective d'évaluer la pertinence de l'usage de telles données afin de décrire la performance du traitement conventionnel dans des modèles d'analyse quantitative du risque microbien (QMRA) (3^e publication). Le chapitre 6 présente enfin une discussion générale laquelle nous mène ensuite par une présentation des conclusions et des recommandations de cette thèse.

CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE

Dans un premier temps, cette revue de littérature présente la biologie de *Cryptosporidium* spp. et de *Giardia* spp., l'épidémiologie ainsi que les sources de contamination des eaux de surface par ces protozoaires, mais aussi les stratégies de traitement afin de minimiser le risque d'infection associé à la consommation des eaux potables. Dans un deuxième temps, cette revue de littérature présente un survol des différents mécanismes et modèles théoriques d'enlèvement des particules et colloïdes en milieu poreux. Dans un troisième temps, elle traite de l'enlèvement de protozoaires parasites par filtration granulaire en traitement des eaux potables. Cette section présente, entre autres, l'impact des propriétés de surfaces des matériaux filtrants, mais aussi l'influence des variations de qualité d'eau en matière de concentrations de kystes ou d'oocystes et de particules d'argile sur la performance de la filtration granulaire.

1.1 Les protozoaires parasites *Cryptosporidium* et *Giardia*

1.1.1 Biologie

Cryptosporidium spp. et *Giardia* spp. sont des parasites entériques d'importance réglementaire en traitement d'eau potable. *Cryptosporidium* spp. est un parasite entérique intracellulaire obligé (Smith *et al.* 2005), membre du phylum *Apicomplexa*, de la classe *Coccidia*, de l'ordre *Eucoccidiida* et de la famille *Cryptosporidia*. Cette classification est remise en cause en réponse à des évidences moléculaires que ce protozoaire serait plutôt relié à la classe des *Gregarinea* (Tenter *et al.* 2002). Pour sa part, *Giardia* est un parasite entérique non invasif membre du phylum *Sarcosmastiophora*, de la classe des *Zoomastigophorea*, de l'ordre *Diplomonadida* et de la famille *Hexamitidae* (Percival *et al.* 2004, Thompson 2004).

La transmission de ces deux protozoaires se fait par la voie orofécale (directe, par l'entremise d'eau ou d'aliments contaminés). L'infection d'un hôte est nécessaire afin de compléter le cycle de vie de ces protozoaires. L'hôte infecté permet donc la propagation dans l'environnement de *Giardia* sous forme de kystes (9-12 μm) (Thompson 2004) et de *Cryptosporidium* sous forme d'oocystes à paroi épaisse (4-6 μm) (Smith *et al.* 2005). Une fois ingéré, le kyste de *Giardia* s'exkyste dans l'intestin grêle et il libère deux trophozoïtes flagellés qui se reproduisent par fission binaire. Par la suite, les trophozoïtes s'enkystent et sont rejetés dans l'environnement par

l'entremise des fèces (Olson *et al.* 2004). Le cycle de vie de *Cryptosporidium* est plus complexe. À la suite de l'ingestion d'un oocyste, celui-ci excyste dans l'intestin grêle et libère quatre sporozoïtes. Chacun des sporozoïtes s'attache à une cellule épithéliale de l'intestin et forme une vacuole parasitaire¹. Une reproduction sexuée et asexuée a ensuite lieu. La reproduction sexuée est responsable de la production d'oocystes à paroi mince et à paroi épaisse. La reproduction asexuée, au même titre que les oocystes à paroi mince, est responsable de l'auto-infection de l'hôte tandis que les oocystes à paroi épaisse sont rejetés à l'environnement via les fèces (Smith *et al.* 2005).

Une fois rejetés dans l'environnement, la physiologie des kystes et des oocystes leur permet de résister aux stress environnementaux, et ce, sur de longues périodes. Les kystes peuvent survivre dans des eaux de surface d'une température inférieure à 10°C jusqu'à 8 semaines (deRegnier *et al.* 1989) tandis qu'à 15°C, les oocystes maintiennent leur infectivité pour 12 semaines (King *et al.* 2005). De plus, les oocystes de *Cryptosporidium* peuvent aussi survivre sous le point de congélation. Dans ces conditions, le temps de survie est fonction de la température, mais aussi du temps de congélation (Fayer & Nerad 1996). D'autres facteurs peuvent influencer la survie des kystes et des oocystes dans l'environnement comme l'accumulation dans les sédiments et, de façon moins importante, le rayonnement ultraviolet (UV) et la prédation (Antenucci *et al.* 2005, Brookes *et al.* 2004). Quoi qu'il en soit, la température de l'eau gouverne tout de même la persistance de ces protozoaires dans l'environnement puisqu'une hausse de température cause une augmentation de l'activité métabolique entraînant ainsi une diminution du temps de survie (King *et al.* 2005).

Plusieurs espèces de *Cryptosporidium* et de *Giardia* ont été identifiées. Un total de 13 espèces de *Cryptosporidium* ont été répertoriées (Xiao *et al.* 2004). Cinq d'entre elles ont été identifiées chez l'humain soit *C. hominis* (humains), *C. parvum* (mammifères, humains), *C. meleagridis* (dindes), *C. canis* (chiens), *C. felis* (chats) (Xiao *et al.* 2004, Xiao *et al.* 2001). Par contre, seules *C. hominis* et *C. parvum* sont responsables de la plupart des infections chez les individus immunocompétents (McLauchlin *et al.* 2000). Pour ce qui est de *Giardia*, cinq espèces ont été répertoriées (Thompson 2004). Seul *Giardia duodenalis* (aussi nommé *G. lamblia* ou

¹ Traduction personnelle de «parasitophorous vacuole».

G. intestinalis) est source d'infection chez l'humain (Thompson 2004). Cette espèce est aussi responsable de l'infection de la faune et du bétail. *Giardia duodelanis* est divisée en huit génotypes/assemblages différents. Seuls les génotypes A et B sont responsables d'infections chez l'humain. Ces deux génotypes sont tous deux subdivisés en deux groupes. Les génotypes A (groupe I), génotypes A (groupe II) et le génotype B (groupe III) sont des zoonoses, tandis que le génotype B (groupe IV) est associé uniquement aux humains (Olson *et al.* 2004, Thompson 2004). Bien que le groupe II est une zoonose, il est majoritairement associé aux humains (Thompson 2004).

Dans l'objectif d'atténuer le risque d'infection associé à l'ingestion de kystes ou d'oocystes par l'entremise de consommation d'eau potable, une bonne gestion des eaux usées s'avère nécessaire afin de minimiser la propagation de *Giardia* et de *Cryptosporidium* dans l'environnement. Dans le même ordre d'idée, puisque *C. parvum* et *Giardia duodelanis* (groupes I, II, III) sont des zoonoses responsables d'infections chez le bétail, une bonne gestion des boues agricoles s'avère aussi nécessaire (Olson *et al.* 2004).

1.1.2 Épidémiologie

L'importance sanitaire de *Giardia* et de *Cryptosporidium* est associée à leur faible dose infectieuse. Des études cliniques ont démontré que la dose infectieuse (ID₅₀) de l'isolat Iowa de *C. parvum* est de 132 oocystes (DuPont *et al.* 1995), tandis que la dose infectieuse de *C. hominis* est de 10 oocystes selon la définition clinique et de 83 oocystes selon la définition microbiologique (Chappell *et al.* 2006). Chez les patients infectés, une cryptosporidiose se manifeste sous forme de diarrhée accompagnée de nausées, de vomissements, de crampes abdominales, de douleurs abdominales, de fièvre ou de fatigue (Chappell *et al.* 2006, DuPont *et al.* 1995, Mac Kenzie *et al.* 1994). En ce qui concerne *Giardia duodelanis*, des essais auprès de volontaires ont permis de démontrer qu'après l'ingestion de 10 à 25 kystes, on avait observé un taux d'infection de 35 %. Plus précisément, celui-ci était de 100 % chez les individus ayant ingéré 10 kystes (2/2) et de 30 % chez les individus ayant ingéré 25 kystes (6 / 20) (Rendtorff 1954). Une *Giardiase* se manifeste chez les patients infectés après une période d'incubation de 9 à 15 jours. Celle-ci se caractérise par une diarrhée accompagnée de crampes abdominales, de flatulence, de fatigue et de nausée (Wolfe 1992). Le risque d'infection de ces deux protozoaires parasites est plus élevé chez les enfants, et ce, particulièrement pour

Cryptosporidium (Laupland & Church 2005, Xiao et al. 2001). Pour terminer, il a été répertorié que les infections semblent plus fréquentes chez les hommes que chez les femmes (Laupland & Church 2005).

Dans une perspective de santé publique, l'importance de ces protozoaires parasites s'explique par la prévalence d'épidémies de cryptosporidiose et de *Giardiose* associées à la consommation d'eau. D'ailleurs, à l'échelle mondiale, les épidémies de *Giardiose* et de cryptosporidiose représentent 35 % et 60 % des épidémies hydriques causées par des protozoaires parasites recensées de 2004 à 2010 (Baldursson & Karanis 2011). De surcroît, aux États-Unis (1971-2006), *Giardia* et *Cryptosporidium* ont été identifiés comme étant respectivement responsables de 62 % (85 / 138) et de 7 % (10 / 138) des épidémies hydriques (pour lesquelles l'agent microbiologique a été identifié) associées à la consommation d'eau potable provenant d'un réseau d'approvisionnement public (> 25 personnes) (Craun et al. 2010). Pour terminer, au Canada, 41 % des épidémies liées à la consommation d'eau traitée recensées de 1974 à 2000 ont été associées à *Giardia* (34 %) ou *Cryptosporidium* (8 %) (Schuster et al. 2005). Bref, malgré le resserrement des normes en traitement des eaux potables, les conséquences pour la santé publique associées à ces protozoaires demeurent d'actualité.

1.1.3 Sources de pointes de contamination des eaux de surface

Plusieurs études ont répertorié des variations saisonnières de concentrations de *Giardia* et *Cryptosporidium* dans les eaux de surface (Atherholt et al. 1998, LeChevallier et al. 2003, Schets et al. 2008, Wallis et al. 1996). Aux prises d'eau brute d'usine d'eau potable, une hausse d'échantillons positifs de *Cryptosporidium* (LeChevallier et al. 2003) et de *Giardia* (Wallis et al. 1996) est généralement observée au printemps et/ou en automne. Des études épidémiologiques ont répertorié des tendances similaires quant à l'augmentation des cas de cryptosporidiose à la fois au printemps et en automne (Lake et al. 2005), ainsi que des cas de *Giardiose* au printemps (Laupland & Church 2005). D'ailleurs, une relation entre la concentration de kystes et d'oocystes dans les eaux de surface et les précipitations a été observée par plusieurs auteurs (Atherholt et al. 1998, Hansen & Ongerth 1991, Isaac-Renton et al. 2005, Kistemann et al. 2002, Rechenburg et al. 2006, Wilkes et al. 2009). Parallèlement, d'autres auteurs ont documenté la relation entre l'occurrence de précipitations et d'épidémie de maladies hydriques. Aux États-Unis, 51 % des épidémies liées à la consommation d'eau potable signalée

de 1948 à 1994 seraient associées à une précipitation extrême (supérieure au 90^e centile) lors du mois précédant l'épidémie (Curriero *et al.* 2001). De plus, l'étude des épidémies canadiennes recensées de 1975 à 2001 démontre que le risque relatif d'éclosion de cas de maladies hydriques associé à la consommation d'eau potable augmente d'un facteur 2.3 lorsque celle-ci est précédée par une pluie torrentielle (excédant le 93^e centile) (Thomas *et al.* 2006). Ainsi, l'occurrence de protozoaires au même titre que l'occurrence de maladies hydriques semble dans les deux cas corrélés aux précipitations. Quoi qu'il en soit, les variations de concentrations de protozoaires parasites dans les eaux de surface sont propres à chaque écosystème puisqu'elles sont fonction de l'occupation du territoire (e.g. type et emplacement de sources de pollution fécale) (Dorner *et al.* 2007) mais aussi de l'état de santé des populations hôtes présentes au sein du bassin versant (e.g. taux d'infection, taux d'excrétion et nombre d'individus) (Wu *et al.* 2011). De plus, ces variations spatio-temporelles d'occurrence à même le bassin versant sont aussi fonction des facteurs météorologiques, géologiques et hydrologiques qui gouvernent le transport et la persistance de ces microorganismes dans l'environnement. Trois différents mécanismes de transport peuvent être attribués à l'augmentation de concentration de kystes et d'oocystes dans les eaux de surface à la suite de fortes précipitations soit le ruissellement agricole, les rejets d'eaux usées et les hausses de débit. Ainsi, chacun des mécanismes de transport énumérés ci-haut sera présenté dans les sections qui suivront.

En premier lieu, en zones agricoles, le ruissellement à la suite de pluies torrentielles est responsable d'augmentations significatives d'oocystes retrouvés dans les eaux de surface (Kistemann *et al.* 2002). De plus, en présence de réseau de drainage souterrain, les kystes et oocystes qui s'infiltrant dans le sol peuvent aussi contribuer aux concentrations observées dans les cours d'eau adjacents. En effet, la contribution de ce flux préférentiel à la contamination des eaux de surfaces est non négligeable (Dorner *et al.* 2006, Wu *et al.* 2011). Malgré cela, les circonstances qui occasionnent l'érosion de protozoaires, comme la fonte des neiges ou les pluies torrentielles, sont tout de même responsables d'évènements de pointes de contamination (Dorner *et al.* 2006). Ceci est d'importance, car, comme mentionné précédemment, *Giardia duodenalis* et *Cryptosporidium parvum* sont des zoonoses souvent associées au bétail. D'ailleurs, de telles hausses de contamination ont été répertoriées en aval d'élevage (Ong *et al.* 1996), ainsi que de fermes laitières (Hansen & Ongerth 1991). En moyenne, les concentrations d'oocystes mesurées en aval d'une région sous l'influence de vingt fermes laitières sont de l'ordre de dix

fois plus élevées que les concentrations mesurées en amont de la zone agricole (Hansen & Ongerth 1991). Ces observations peuvent être expliquées par un taux élevé de fermes contaminées. Par exemple, dans le cadre d'une campagne d'échantillonnage dans le nord des États-Unis, la présence d'oocystes de *Cryptosporidium* a été documentée dans 91 % (10 /11) des fermes laitières échantillonnées (Sischo *et al.* 2000). Conséquemment, l'épandage des boues agricoles nécessite une gestion préventive puisque ces pratiques peuvent agir à titre de source de contamination (Olson *et al.* 2004). D'un autre côté, en zone agricole, les variations de concentrations de protozoaires parasites dans les eaux de surface sont aussi reliées au taux d'infection du bétail. Le taux d'infections par *Giardia duodenalis* et *Cryptosporidium parvum* diminue en fonction de l'âge du cheptel (Maddox-Hyttel *et al.* 2006, Sischo *et al.* 2000). Les cas de cryptosporidiose sont particulièrement observés chez les veaux de 0 à 3 semaines et le taux d'infection demeure relativement élevé chez les veaux de 9 à 12 semaines (Sischo *et al.* 2000). Dans le même ordre d'idée, les concentrations de *Giardia* dans les fèces de veaux de fermes laitières sont significativement plus élevées qu'observées chez les vaches adultes (Lalancette *et al.* 2012, Maddox-Hyttel *et al.* 2006). Bien que les animaux adultes soient souvent asymptomatiques, ils excrètent de faibles concentrations et agissent à titre de source de contamination des nouveau-nés (Fayer *et al.* 2000). C'est pourquoi, dans une région dominée par l'élevage bovin, les concentrations maximales de protozoaires parasites dans les eaux de surface ont été observées après la période de vêlage (février à avril). Plus précisément, en aval d'élevages, des concentrations de *Cryptosporidium* et de *Giardia* de l'ordre de 3.5 fois supérieures aux concentrations observées en amont ont été répertoriées (Ong *et al.* 1996). Ce genre de pointe printanière est moins importante dans les régions dominées par les fermes laitières puisque la naissance de veaux a lieu tout au long de l'année (Olson *et al.* 2004). En conclusion, le ruissellement agricole, à la suite de pluies torrentielles ou de la fonte des neiges, est responsable de l'augmentation des concentrations de *Cryptosporidium parvum* et de *Giardia duodenalis* dans les cours d'eau adjacents, et ce, particulièrement au printemps à proximité d'élevages bovins (Ong *et al.* 1996) et en automne (lors de la période d'épandage) à proximité de fermes laitières (Wilkes *et al.* 2013). Ceci étant dit, il est à noter que le risque sanitaire associé aux contaminations de *Giardia duodenalis* par ruissellement agricole semble être de moins grande importance puisque la prévalence d'infection du bétail au génotype E est plus importante qu'aux génotypes A et B (Appelbee *et al.* 2003). Comme mentionné précédemment,

contrairement aux génotypes A et B, le génotype E n'est pas associé aux cas d'infection chez l'humain (Olson *et al.* 2004). Pour terminer, les eaux usées joueraient un rôle plus important en matière de contamination des eaux de surface par *Giardia duodenalis* que le ruissellement agricole, en raison des génotypes rejetés dans l'environnement.

Au même titre que le ruissellement agricole, l'apport de la contamination des eaux de surface associée aux rejets d'eaux usées est aussi fonction des précipitations. Cette contamination est à la fois associée au rejet de stations d'épuration, mais aussi aux déversements d'égouts unitaires. Premièrement, plusieurs auteurs qui ont répertorié les concentrations de kystes et d'oocystes à l'affluent ainsi qu'à l'effluent des stations d'épurations ont noté que les concentrations de protozoaires parasites peuvent varier sur plusieurs ordres de grandeur (Gennaccaro *et al.* 2003, McCuin & Clancy 2006, Robertson *et al.* 2006a). Ces différences répertoriées sont associées à la variabilité de la constitution des eaux usées (particules, graisses, métaux, interférences chimiques), mais aussi au taux de récupération des méthodes utilisées (McCuin & Clancy 2006). Mis à part le biais méthodologique associé au taux de récupération, les campagnes d'échantillonnage faites auprès de plusieurs usines sur un même laps de temps ont tout de même démontré que la concentration de protozoaires à l'affluent varie d'une usine à l'autre (Harwood *et al.* 2005, McCuin & Clancy 2006, Robertson *et al.* 2006a). D'ailleurs, les concentrations de kystes et d'oocystes dans les eaux usées sont fonction de la taille de la communauté, de la proportion des eaux usées associées aux rejets humains, du nombre d'infections au sein de la population ainsi que de la sévérité de ces dernières (McCuin & Clancy 2006). Une variation temporelle des concentrations à l'affluent s'explique par la fluctuation du nombre de cas d'infections dans la population desservie. Cette affirmation est en accord avec des études épidémiologiques qui démontrent, à l'aide de résultats d'analyses de selles, qu'il existe une variabilité saisonnière du taux d'infections observé au sein de la population (Lake *et al.* 2005, Laupland & Church 2005, McLauchlin *et al.* 2000). Bien que le traitement d'eaux usées atténue les concentrations de protozoaires, lors de campagnes d'échantillonnage sur plusieurs sites, des oocystes ont été observés dans tous les effluents de stations d'épuration étudiés (Gennaccaro *et al.* 2003, Huffman *et al.* 2006, Lalancette *et al.* 2012, McCuin & Clancy 2006, Scott *et al.* 2003). Bref, les stations d'épuration sont en partie responsables de la contamination des eaux de surface, même lorsque leur fonctionnement est optimal. Lors de défaillances, les usines d'eau potable en aval de stations d'épuration sont

particulièrement vulnérables (e.g. épidémie de North Battleford, Canada). De plus, lors de pluies torrentielles, la contribution des eaux usées en matière de contamination des eaux de surface est accrue par des déversements d'égouts unitaires. Ces déversements sont d'autant plus importants puisqu'il s'agit alors d'eaux non traitées qui sont rejetées à l'environnement. Les débordements d'égouts unitaires contribuent de façon significative à l'augmentation des concentrations de *Cryptosporidium* et de *Giardia* dans les eaux de surface (Gibson III *et al.* 1998, Rechenburg *et al.* 2006). À la suite de précipitations, les concentrations moyennes de protozoaires en aval de déversement d'égouts unitaires peuvent augmenter de l'ordre de 1 log pour *Cryptosporidium* (Gibson III *et al.* 1998) et de l'ordre de 2 logs pour *Giardia* (Rechenburg *et al.* 2006). Pour terminer, les rejets d'eaux usées, surtout lorsque non traités (e.g. déversement d'égout unitaire), contaminent aussi la faune d'espèces de *Cryptosporidium* et de génotypes de *Giardia* problématiques pour la santé publique. Ainsi, ce réservoir sauvage est responsable de la propagation de ces protozoaires d'un écosystème à l'autre (Wallis *et al.* 1998).

La fonte des neiges et les précipitations gouvernent le transport de kystes et d'oocystes par l'entremise de ruissellement agricole, du déversement d'eaux usées dans les eaux de surface ou de la remise en suspension de sédiments subséquentement à des hausses de débit. D'ailleurs, une relation a été observée entre la concentration de protozoaires parasites et le débit des eaux de surface (Atherholt *et al.* 1998, Rouquet *et al.* 2000, Schijven & de Roda Husman 2005). Parallèlement, des analyses statistiques de données hydrologiques, météorologiques et médicales britanniques ont démontré que le nombre de cas de cryptosporidiose était corrélé au débit (Lake *et al.* 2005). Quoique les conclusions tirées de cette étude aient permis de dégager des tendances nationales qui ne sont pas nécessairement représentatives des tendances locales, celles-ci suggèrent tout de même qu'il existe une relation entre le débit des cours d'eau et le risque d'infection. Dans le même ordre d'idée, il a été démontré que l'effet de dilution résultant de la hausse des débits ne semble pas permettre de compenser les apports de protozoaires parasites puisque les concentrations sont alors augmentées. Cependant, après d'une baisse de débit, une baisse de concentration de protozoaires a été observée (Schijven & de Roda Husman 2005). Comme une telle baisse n'est pas observée pour les concentrations d'entérovirus, il a été suggéré que cette diminution de concentration était liée à la capacité accrue de décantation des protozoaires par rapport aux entérovirus (Schijven & de Roda Husman 2005). Pour ces raisons, les auteurs qui ont démontré la relation entre la concentration de protozoaires et le débit ont posé

comme hypothèse que la hausse de débit entraîne une remise en suspension des sédiments (Atherholt *et al.* 1998, Rouquet *et al.* 2000, Schijven & de Roda Husman 2005). En effet, l'accumulation des oocystes dans les sédiments est non seulement gouvernée par la décantation gravitaire, mais aussi par le transport par advection entre l'eau et les sédiments² (Searcy *et al.* 2006a). Tout d'abord, les vitesses de décantation des kystes et des oocystes libres en suspension sont très faibles et par conséquent une décantation gravitaire est peu probable en milieu naturel (Medema *et al.* 1998), à moins qu'ils ne soient associés à des matières en suspension. La décantation de protozoaires est donc fonction de leur agrégation à des particules qui augmentent leur vitesse de décantation dans la colonne d'eau (Medema *et al.* 1998, Searcy *et al.* 2005, 2006a). D'ailleurs, les kystes et oocystes adhèrent aux particules d'eaux usées (Medema *et al.* 1998), de kaolinite, d'oxyde de fer et de sédiments (Searcy *et al.* 2005, 2006a), tandis qu'ils ne semblent pas adhérer aux particules de sol (loam/humus) (Dai & Boll 2003, Kaucner *et al.* 2005). Par ailleurs, il est probable que les kystes et oocystes soient aussi présents sous forme de floc ou d'agrégats dans la colonne d'eau puisqu'il a été démontré que les communautés microbiennes sont souvent présentes sous cette forme dans les eaux de surfaces (Droppo 2001). Ces floes constitués de particules organiques (e.g. acides humiques, débris cellulaires), de particules inorganiques (silts et argiles), de pores et d'eau, altèrent le transport de microorganismes pathogènes (e.g. *E.coli*) et de sédiments dans la colonne d'eau (Droppo 2001, 2003, Droppo 2004, Droppo *et al.* 2009). Une fois décantés, les interactions hydrodynamiques font en sorte que les oocystes sont filtrés dans le lit de sédiments et s'accumulent dans celui-ci (Searcy *et al.* 2006a). La rétention et l'accumulation d'oocystes dans les sédiments peuvent donc agir à titre de réservoir de contaminants disponibles lors de périodes de débit élevé (Searcy *et al.* 2005, 2006a). L'importance relative de ce réservoir est fonction du temps de séjour des protozoaires dans l'environnement, de la décantation, de l'exposition aux UV, ainsi que de la température de l'eau (Brookes *et al.* 2004). Vu la persistance des kystes et des oocystes dans l'environnement, il est pertinent de considérer le risque relatif associé à la remise en suspension des sédiments et à la redistribution de ces protozoaires dans la colonne d'eau (Brookes *et al.* 2004).

² Traduction personnelle d'«advective stream subsurface exchange».

En conclusion, les précipitations, la fonte des neiges et les hausses de débit ont comme répercussion d'augmenter les concentrations de kystes et d'oocystes dans les eaux de surface soit par ruissellement agricole, déversement d'égouts unitaires ou remise en suspension des sédiments. Quoique spécifique à chaque région, l'importance sanitaire des sources de contamination varie dans le temps au sein d'un même écosystème (McLauchlin *et al.* 2000). Afin de minimiser le risque d'infection associé à la consommation d'eau potable, il apparaît donc pertinent d'évaluer les vulnérabilités ainsi que les performances des procédés de traitement, lorsqu'ils sont exposés à des pointes de concentrations de *Cryptosporidium* et de *Giardia* à l'eau brute.

1.1.4 Stratégies d'élimination par le traitement des eaux potables

Le risque d'infection à *Giardia* et à *Cryptosporidium* associé à la consommation d'eau potable est non seulement une conséquence de leur faible dose infectieuse et de leur persistance dans l'environnement (tel que discuté précédemment), mais aussi de leur résilience aux pratiques traditionnelles de désinfection des eaux potables. Plus précisément, les oocystes de *Cryptosporidium* sont résistants aux oxydants (e.g. le chlore) communément utilisés en traitement de l'eau potable (Korich *et al.* 1990). Seul l'ozone permet une désinfection chimique à la suite d'un temps de contact raisonnable (Korich *et al.* 1990). Cependant, en eaux froides, la lenteur de la cinétique de réaction d'ozonation nécessite une dose plus importante ainsi qu'un temps de contact plus long (Finch *et al.* 1993). De ce fait, en eaux froides, l'ozonation ne permet pas l'atteinte des objectifs de traitement (Oppenheimer *et al.* 2000). Dans ce contexte, l'irradiation aux rayons UV peut être utilisée à titre d'alternative à la désinfection chimique afin d'inactiver les oocystes (Bukhari *et al.* 1999, Clancy *et al.* 2004, Craik *et al.* 2001, Hijnen *et al.* 2006). Voilà pourquoi, trois stratégies de traitement ont été adoptées pour améliorer le rendement des usines, soit l'optimisation de la filtration granulaire, le recours à la filtration membranaire et l'inactivation par irradiation aux rayons UV (Betancourt & Rose 2004).

Une approche multi-barrière qui inclut un enlèvement physique s'avère donc fondamentale; surtout lorsque la désinfection chimique n'est pas suffisante (Betancourt & Rose 2004). D'ailleurs, l'importance du bon fonctionnement de l'enlèvement physique est mise en évidence par les épidémies de Milwaukee (É.-U.), de North Battleford (Canada) et de Bergen (Norvège). Tout d'abord, l'épidémie de cryptosporidiose à Milwaukee (mars-avril 1993) a été associée à des

problèmes de dosage de coagulant et de filtration granulaire. Lors de celle-ci, il a été estimé que 400 000 individus ont eu des problèmes gastro-intestinaux. De surcroît, 600 cas de cryptosporidiose ont été confirmés suite à cet incident (Mac Kenzie *et al.* 1994). Dans le même ordre d'idée, l'épidémie de cryptosporidiose de North Battleford (avril 2001) a été attribuée à des problèmes de décantation, mais aussi à un mauvais fonctionnement de l'usine d'épuration située en amont de la prise d'eau potable (Woo & Vicente 2003). Pour terminer, l'épidémie de *Giardiase* à Bergen (automne 2004), soit la première associée aux protozoaires parasites en Norvège, a été attribuée à une eau potable chlorée et non filtrée (Robertson *et al.* 2006b). En dépit des avancées en irradiation UV ainsi qu'en filtration membranaire, les procédés physico-chimiques traditionnels demeurent des incontournables à titre de barrière pour *Giardia* et *Cryptosporidium* (Emelko *et al.* 2005); d'autant plus que la plupart des usines nord-américaines s'en remettent encore de nos jours à ces procédés afin d'atteindre les objectifs de traitement exigés par la réglementation (Betancourt & Rose 2004).

À titre de stratégie complémentaire pour mieux contrôler le risque microbiologique, au Québec comme aux États-Unis, les eaux brutes sont classées afin d'identifier les usines desservies par des eaux de piètre qualité. Cette approche a été adoptée afin d'exiger de façon réglementaire des enlèvements additionnels aux usines vulnérables dans le but d'atteindre un risque microbiologique équivalent indépendamment de la qualité des eaux brutes. Aux États-Unis, les eaux brutes sont classées en fonction des concentrations de protozoaires, plus spécifiquement de *Cryptosporidium* (United States Environmental Protection Agency (USEPA) 2006), tandis qu'au Québec elles sont classées en fonction des concentrations d'*E.coli* (Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs du Québec (MDDEP) 2012b). Bien que la classification des eaux brutes à l'aide de concentrations moyennes permette d'apporter des modifications aux installations les plus vulnérables, cette approche atténue dans certains cas l'importance sanitaire des périodes de pointes de contamination. Dans une perspective d'analyse de risque, il est d'intérêt de comprendre l'impact des périodes de pointes de contamination généralement observées aux prises d'eaux brutes sur l'efficacité de traitement, et ce, plus particulièrement, car ces pointes de concentrations gouvernent souvent le risque d'infection au même titre que les défaillances de traitement (Haas *et al.* 1996, Teunis & Havelaar 2002). Le risque associé à ces périodes de pointes est d'autant plus important pour les usines qui possèdent une filière de traitement minimal (une seule barrière de filtration pour contrôler le risque parasitaire) ou qui

sont opérées en eaux froides. Cette situation étant encore fréquente au Canada, l'étude de l'abattement des parasites dans les milieux granulaires demeure donc un sujet d'importance.

1.2 Mécanismes et modèles théoriques d'enlèvement de colloïdes en milieu poreux

Trois différents mécanismes gouvernent l'enlèvement de particules dans des filtres granulaires soit la formation de gâteau, l'enlèvement stérique³ et l'attachement physico-chimique (McDowell-Boyer *et al.* 1986). Premièrement, l'enlèvement de particules par formation de gâteau a lieu lorsque les particules en suspension de taille équivalente ou supérieure à la taille des matériaux filtrants s'accumulent en surface du lit filtrant (Herzig *et al.* 1970, McDowell-Boyer *et al.* 1986). Les procédés de filtration lente tirent profit de la formation de gâteau plus spécifiquement de *schmutzdecke* afin de permettre l'enlèvement de particules (Collins *et al.* 1991, Hendricks *et al.* 1991). Cependant, la formation de gâteau engendre des hausses importantes de pertes de charge, ce qui est peu souhaitable lors de l'opération de filtres granulaires rapides. Le microtamisage, de même que le prétraitement chimique suivi d'une décantation, permettent d'éviter la formation de gâteau en surface des filtres de façon à minimiser les pertes de charge et à favoriser la rétention des particules plus en profondeur dans le lit filtrant (Jegatheesan & Vigneswaran 2005). Deuxièmement, l'enlèvement stérique est défini comme l'exclusion physique d'une particule ou d'un agrégat de particules dans un contexte où le diamètre des pores entre les grains est inférieur au diamètre de la particule (Herzig *et al.* 1970, McDowell-Boyer *et al.* 1986). Ainsi, les particules sont retenues à des sites que l'on nomme site de constriction (Herzig *et al.* 1970). Ce mécanisme est d'importance lorsque le ratio entre le diamètre des particules et le diamètre des grains est supérieur à 0,005 (Bradford *et al.* 2003, 2006). De surcroît, l'importance de l'enlèvement stérique est accrue par l'angularité des matériaux (Tufenkji *et al.* 2004). Dans un contexte de filtration granulaire dans le traitement des eaux potables, si l'on considère le ratio entre la taille de la plupart des particules en suspension et la taille des grains, l'importance de l'enlèvement stérique est négligeable. La filtration est donc principalement le résultat du troisième mécanisme, l'attachement physico-chimique, lequel résulte d'une série

³ Traduction personnelle de «straining».

d'interactions physico-chimiques entre les matériaux filtrants, l'eau et les particules en suspension (Amirtharajah 1988). L'enlèvement de particules par filtration physico-chimique est couramment décrit en deux temps, soit le transport et l'attachement de particules (O'Melia & Stumm 1967, Yao *et al.* 1971).

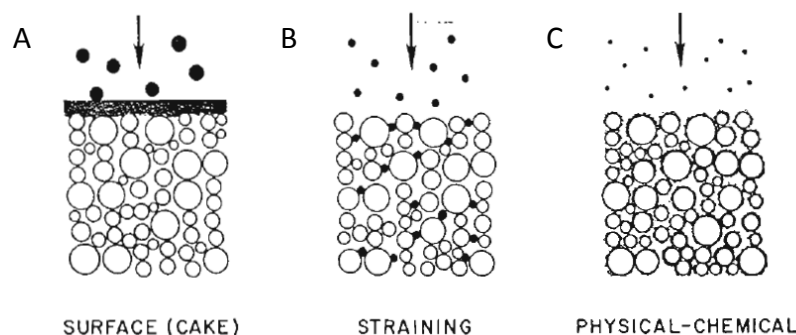


Figure 1.1: Illustration des mécanismes d'enlèvement en milieu poreux soit (A) la formation de gâteau, (B) l'enlèvement stérique et (C) enlèvement physico-chimique (tiré de McDowell-Boyer *et al.* 1986).

1.2.1 Transport

Le transport de colloïdes en suspension vers le matériau filtrant peut être décrit par des forces physiques comme la vitesse d'écoulement, les forces gravitaires, la température et la taille des particules (O'Melia & Stumm 1967, Yao *et al.* 1971). Plus spécifiquement, cinq mécanismes permettent de décrire le transport de particules qui entraînent une collision avec le grain soit la diffusion, l'interception, la décantation, l'inertie et l'effet hydrodynamique (Amirtharajah 1988, Herzig *et al.* 1970). Tout d'abord, la **diffusion** est régie par le mouvement brownien. Ainsi, le transport par diffusion s'applique notamment aux petites particules ($< 1 \mu\text{m}$) et est fonction de la température de l'eau. Deuxièmement, l'**interception** a lieu lorsqu'une particule demeure dans sa ligne d'écoulement et s'approche suffisamment du grain pour entrer en collision avec celui-ci. Troisièmement, le transport par **décantation** a lieu lorsque la densité d'une particule excède celle de l'eau. Ces particules sont donc sujettes aux forces gravitaires si bien qu'elles sortent des lignes d'écoulement pour entrer en collision avec les matériaux filtrants. Quatrièmement, l'**inertie** a lieu lorsque les lignes d'écoulement convergent à proximité d'un grain et qu'un colloïde possède assez d'inertie afin d'entrer en collision avec celui-ci. L'inertie est cependant considérée comme négligeable en filtration de l'eau contrairement à la filtration de l'air (Amirtharajah 1988). Pour

terminer, le transport de colloïdes en milieu poreux est aussi influencé par l'**effet hydrodynamique**. La turbulence est responsable du transport des colloïdes à l'extérieur des lignes d'écoulement ce qui peut provoquer une collision avec la surface d'un grain. Malgré la présence de cinq mécanismes, il est à noter que le transport des particules dans un filtre granulaire est dominé par trois d'entre eux : la diffusion, l'interception et la décantation. Par ailleurs, l'importance de l'interception et de la décantation augmente en fonction de la taille des particules (Yao *et al.* 1971). À titre d'exemple, le transport des kystes et des oocystes est plutôt dominé par la décantation (Amirtharajah 1988).

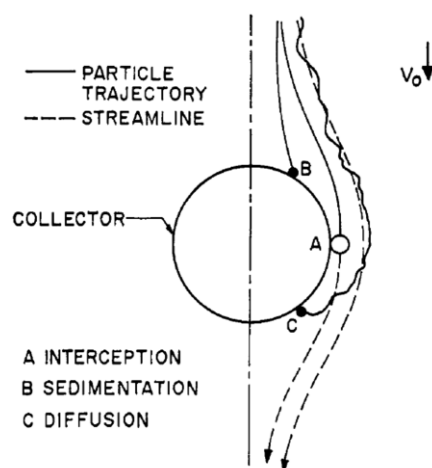


Figure 1.2: Illustration des mécanismes de transport (tiré de Yao *et al.* 1971)

1.2.2 Attachement

L'attachement de colloïdes en surface des matériaux est fonction des propriétés de surface des colloïdes en suspension, des matériaux filtrants, mais aussi de la chimie de l'eau (O'Melia & Stumm 1967). L'attachement est gouverné à la fois par des forces de longue portée et de courte portée. Les forces de longue portée exercent des forces de répulsion et d'attraction sur le colloïde en suspension jusqu'à une distance de 100 nm (Jegatheesan & Vigneswaran 2005). À cette distance les forces de London-Van der Waals exercent des forces généralement attractives, tandis que des forces attractives et répulsives électrostatiques associées à la double couche électrique⁴ sont aussi ressenties (O'Melia & Stumm 1967, Tobiason & O'Melia 1988). À l'opposé, les forces

⁴ Traduction personnelle de «electrical double layer interactions».

de courte portée s'exercent à une distance de 5 nm. Celles-ci correspondent aux forces répulsives de Born et aux forces d'hydratation (Jegatheesan & Vigneswaran 2005). L'attachement d'un colloïde au grain a lieu lorsque la force résultante soit la somme des forces de London-Van der Waals, de la double couche électrique, des forces répulsives de Born et d'hydratation est attractive (Elimelech *et al.* 1995). D'ailleurs, comme décrit par la théorie Derjaguin-Laudau-Verwey-Overbeek (DLVO) (Derjaguin & Landau 1941, Verwey 1947, Verwey & Overbeek 1948), la force résultante est fonction de la distance entre le colloïde et le grain. Plus un colloïde s'approche d'un grain, plus la force résultante est attractive, jusqu'à ce que le colloïde atteigne une distance équivalant au deuxième minima d'énergie⁵. Une fois cette distance franchie, au moment où le colloïde poursuit sa trajectoire vers le grain, il est exposé à des forces de répulsion. Si la particule possède assez d'énergie cinétique pour franchir la barrière énergétique, soit la distance du grain à laquelle les forces de répulsions sont maximales, et poursuit sa trajectoire vers le grain celle-ci sera exposée à une force résultante attractive croissante jusqu'à ce que celle-ci atteigne le premier minima d'énergie⁶. Le premier minima d'énergie est défini comme la distance à laquelle le colloïde subit une force attractive maximale. L'attachement d'un colloïde peut avoir lieu à une distance équivalant au premier ou deuxième minima d'énergie (Hahn & O'Melia 2003). Puisque la force attractive résultante du deuxième minima d'énergie est moins grande, l'attachement est dit réversible et les colloïdes retenus à cette distance du grain sont plus vulnérables au détachement (McDowell-Boyer 1992, Tufenkji & Elimelech 2005b).

L'attachement de particules aux matériaux filtrants est en partie régi par des interactions électrostatiques comme présentées précédemment, mais aussi par des interactions hydrophobes et stériques. Ces interactions hydrophobes ont lieu entre deux surfaces hydrophobes en milieu aqueux. Les forces d'attraction résultantes de longue portée (jusqu'à 80 nm) excèdent celles des interactions de van der Waals (Elimelech *et al.* 1995, Jegatheesan & Vigneswaran 2005). Pour leur part, les interactions stériques découlent des interactions entre les macromolécules en surface de biocolloïdes et les surfaces avoisinantes. Une compression de ces macromolécules provoque

⁵ Traduction personnelle de «second energy minima».

⁶ Traduction personnelle de «first energy minima».

une augmentation des forces de répulsion (Jegatheesan & Vigneswaran 2005) et de ce fait diminue l'attachement (Tufenkji 2007).

Pour conclure, en traitement des eaux potables, l'utilisation de coagulants permet de tirer profit de la filtration physico-chimique en minimisant la répulsion entre les matériaux filtrants et les particules (Amirtharajah 1988, Tobiason & O'Melia 1988, Yao *et al.* 1971).

1.2.3 Modèles théoriques microscopiques

Il est possible de modéliser la performance de la filtration à l'aide de modèles théoriques mécanistiques à l'échelle microscopique. Ainsi, la variation spatio-temporelle de la concentration de particules ou de microorganismes en milieu poreux homogène et complètement saturé en eau peut être décrite par l'équation de dispersion-advection (équation 1.1). Tandis que le transport unidimensionnel de particules ou de microorganismes en milieu poreux homogène, saturé en eau est décrit par l'équation 1.2 (Tufenkji 2007).

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} \quad (\text{Équation 1.1})$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\rho_b}{\theta} \frac{\partial S}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} \quad (\text{Équation 1.2})$$

Où C est la concentration de microorganismes (cellules mL^{-1}), t le temps (sec), D le coefficient de dispersion hydrodynamique ($\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$), x la distance parcourue dans le lit filtrant (cm), v est la vitesse interstitielle⁷ (cm s^{-1}), ρ_b la densité du grain sec (g mL^{-1}), θ la porosité (aucune unité) et S la concentration de microorganismes retenue par le lit filtrant (nombre g^{-1} de matériau).

D'ordre général, ces modèles conceptuels sont utilisés afin de décrire la rétention de particules ou de microorganismes au sein d'un système à l'équilibre à l'étape initiale de filtration. La théorie classique de filtration des colloïdes décrit la filtration physico-chimique si l'on considère que l'attachement des colloïdes est irréversible et que l'influence du détachement, de la mortalité ou de la prédation de microorganismes est négligeable. Plus précisément, elle décrit l'attachement à la suite d'une injection continue d'une concentration donnée de particules ou de microorganismes en milieu poreux homogène, complètement saturé en eau et sous des conditions où l'influence de

⁷ Traduction personnelle de «pore water velocity».

la dispersion hydrodynamique est négligeable (Tufenkji 2007). La variation spatio-temporelle de la concentration de microorganismes en suspension en fonction de la profondeur du lit filtrant selon la théorie classique de filtration des colloïdes est décrite par l'équation 1.3. Pour sa part, l'attachement physico-chimique en fonction de la profondeur est décrit par l'équation 1.4 (Yao *et al.* 1971):

$$C(x) = C_0 \exp\left(\frac{k_d}{v} x\right) \quad (\text{Équation 1.3})$$

$$S(x) = \frac{t_0 \theta k_d C_0}{\rho_b} \exp\left(\frac{k_d}{v} x\right) \quad (\text{Équation 1.4})$$

où C_0 est la concentration de microorganismes initialement injectée (cellules mL⁻¹), t_0 le temps d'injection (sec) et k_d le taux de rétention des particules⁸ (sec⁻¹) qui est défini par l'équation 1.5.

$$k_d = \frac{3(1-\theta)}{2 d_c} v \eta \quad (\text{Équation 1.5})$$

Où d_c est le diamètre du grain (mm) et η , l'efficacité d'enlèvement d'un seul grain (aucune unité)⁹. Par ailleurs, ces modèles microscopiques prédisent la performance du filtre selon η qui reflète à la fois le transport de particules et l'attachement de celles-ci à un seul grain (équation 1.6).

$$\eta = \alpha \eta_0 \quad (\text{Équation 1.6})$$

Où α est l'efficacité d'attachement (aucune unité)¹⁰ et η_0 l'efficacité de collision d'un seul grain¹¹ (aucune unité). D'une part, l'efficacité d'attachement (α) est définie par le ratio entre le nombre de collisions qui provoque un attachement et le nombre total de collisions. Il est à noter que α intègre les propriétés chimiques des grains, des particules et de la solution. De plus, la valeur de α varie entre 0 et 1. Dans les circonstances où aucune collision mène à un attachement, α est de zéro et, lorsque toutes les collisions provoquent un attachement, α est de 1 (Amirtharajah 1988). D'autre part, l'efficacité de collision d'un seul collecteur (η_0) décrit les paramètres physiques qui

⁸ Traduction personnelle de «deposition rate coefficient».

⁹ Traduction personnelle de «single collector removal efficiency».

¹⁰ Traduction personnelle de «attachment efficiency».

¹¹ Traduction personnelle de «single collector collision efficiency».

régissent le transport de particules en milieu poreux. Plus précisément, η_0 est défini par le ratio entre le taux de collision de particules avec le grain et le taux auquel les particules s'approchent du grain. Dans un contexte où ces modèles théoriques sont utilisés afin de modéliser des données expérimentales, l'efficacité d'attachement (α) à une surface d'un grain est déterminée selon l'équation 1.7.

$$\alpha = -\frac{2}{3} \frac{d_c}{(1-\theta)L\eta_0} \ln\left(\frac{C}{C_0}\right) \quad (\text{Équation 1.7})$$

Où L est la profondeur du filtre (mm). Afin de permettre la détermination de α , l'efficacité de collision d'un seul grain (η_0) est quantifiée par la somme des collisions associées au transport par diffusion (η_D), interception (η_I) et décantation (η_G) (équation 1.8)(Yao *et al.* 1971).

$$\eta_0 = \eta_D + \eta_I + \eta_G \quad (\text{Équation 1.8})$$

Des modifications à l'équation initialement présentée par Yao ont été proposées par Rajagopalan & Tien (1976) afin d'intégrer l'influence des forces de London-van der Waals ainsi que les forces hydrodynamiques au terme qui décrit le transport par interception (η_I). D'autres améliorations ont par la suite été proposées par Tufenkji & Elimelech 2004a. D'une part, des modifications au terme de diffusion (η_D) ont permis d'intégrer les interactions de London-van der Waals de même que les interactions hydrodynamiques associées à la viscosité sur le transport par diffusion brownienne. D'autre part, les auteurs ont démontré que l'intégration des forces de London van der Waals au terme de décantation (η_G) est de mise tandis qu'un ajustement de celui-ci en fonction de la porosité (comme initialement proposé) ne s'avère pas nécessaire. Ainsi, une prédiction plus précise du transport de particules est offerte par l'équation de Tufenkji & Elimelech 2004a (équation 1.9). Chacun des termes adimensionnels utilisés est décrit dans le tableau 1.1.

$$\eta_0 = 2.4A_S^{1/3} N_{Pe}^{-0,715} N_R^{-0,081} N_{vdW}^{0,052} + 0,55A_S N_R^{1,675} N_A^{0,125} + 0,22N_R^{-0,24} N_G^{1,11} N_{vdW}^{0,053} \quad (\text{Équation 1.9})$$

L'application de la théorie classique de filtration des colloïdes se limite à des conditions idéales comme énumérées préalablement. Ainsi, ces modèles conceptuels ne permettent pas de prédire l'enlèvement physico-chimique de particules sous des conditions jugées non favorables. En effet, ils ne considèrent pas l'attachement au 2^e minima d'énergie répertorié en laboratoire (Tufenkji & Elimelech 2004b, 2005a, b). De plus, l'utilisation de ces modèles se limite à un

moment précis du cycle de filtration, c'est-à-dire au moment où un filtre propre atteint l'équilibre. Alors, ces modèles ne peuvent décrire l'enlèvement de particules attribué aux mécanismes d'enlèvement dynamiques comme la maturation et le blocage des sites d'attachement. Pourtant, ces interactions entre particules sont prédominantes lors de la période stable d'opération d'un filtre granulaire. Qui plus est, puisque l'impact du détachement est jugé négligeable, ces modèles conceptuels ne peuvent prédire le relargage de microorganismes du lit filtrant ni la percée d'un filtre (Tufenkji 2007). Nonobstant les limites d'utilisation de la théorie classique de filtration des colloïdes, celle-ci permet manifestement une meilleure compréhension des mécanismes qui gouvernent l'enlèvement de microorganismes par filtration granulaire.

Tableau 1.1. Sommaire des paramètres adimensionnels nécessaires pour l'évaluation de l'efficacité de collision d'un seul grain (η_0).

Paramètre	Définition	Formule	Interprétation
A_s	Paramètre dépendant de la porosité selon le modèle de Happel	$\frac{2(1 - \gamma^5)}{2 - 3\gamma + 3\gamma^5 + 2\gamma^6}$	Ou $\gamma = (1 - \theta)^{1/3}$
N_{Pe}	Nombre de Peclet	$\frac{U d_c}{D_\infty}$	Ratio entre le transport par convection et par diffusion. Ou $D_\infty = \frac{KT}{6\pi\mu a_p}$
N_{vdW}	Nombre de van der Waals	$\frac{A}{kT}$	Ratio entre l'énergie des interactions de van der Waals et l'énergie thermique de la particule.
N_R	Facteur de forme ¹²	$\frac{d_p}{d_c}$	Ratio entre le diamètre de la particule et le diamètre du grain.
N_A	Nombre d'attraction	$\frac{N_{vdW}}{N_R N_{Pe}} = \frac{A}{12\pi\mu a_p^2 U}$	Influence à la fois des forces de van der Waals et de la vitesse d'écoulement sur le taux de rétention associé à l'interception.
N_G	Nombre de gravité	$\frac{2}{9} \frac{a_p^2 (\rho_p - \rho_f) g}{\mu U}$	Ratio de la vitesse de décantation selon la loi de Stokes et la charge superficielle.

Tableau traduit et adapté de Tufenkji & Elimelech 2004a

Où θ est la porosité, U la charge superficielle, d_c le diamètre du grain, D_∞ le coefficient hydrodynamique, K la constante de Boltzmann, T la température absolue, a_p le rayon de la particule, μ le viscosité de l'eau, A la constante de Hamaker, d_p le diamètre de la particule, ρ_p la densité de la particule, ρ_f la densité de l'eau, g la force gravitationnelle.

¹² Traduction personnelle de «aspect ratio».

1.3 Enlèvement de protozoaires parasites par filtration granulaire en traitement des eaux potables

1.3.1 Propriétés de surface et rétention de protozoaires en milieu poreux

En l'absence de coagulant, les propriétés de surface jouent un rôle clé sur l'enlèvement de protozoaires parasites par filtration granulaire. Elles gouvernent l'ampleur des interactions entre les kystes ou oocystes et les matériaux filtrants (Hijnen *et al.* 2005, Tufenkji *et al.* 2006). Dans cette optique, cette section de revue de littérature traite tout d'abord des propriétés de surface de *Cryptosporidium* et de *Giardia* pour ensuite traiter des propriétés de surface des matériaux filtrants les plus couramment utilisés en traitement des eaux potables.

1.3.1.1 Propriétés de surface des kystes et des oocystes

Comme la plupart des biocolloïdes, les propriétés électrocinétiques des kystes et des oocystes sont à la fois dépendantes de la force ionique de la solution et du pH (Lytle *et al.* 2002, Ongerth & Pecoraro 1996). D'une part, une augmentation de la force ionique provoque une compression de la double couche électrique et de ce fait déstabilise les kystes et oocystes. Voilà pourquoi plusieurs ont documenté une diminution de la valeur absolue du potentiel zêta des protozoaires ainsi qu'une augmentation de leur rétention en milieu poreux à la suite d'une augmentation de la force ionique d'une eau (Abudalo *et al.* 2005, Hsu & Huang 2002, Hsu *et al.* 2001). D'autre part, le point isoélectrique des oocystes varie entre un pH 2,5 (Drozd & Schwartzbrod 1996) et un pH 3,3 (Hsu & Huang 2002) tandis que celui des kystes a été répertorié à un pH 3,2 (Hsu & Huang 2002). C'est pourquoi en eaux naturelles les protozoaires parasites sont faiblement hydrophobes (Drozd & Schwartzbrod 1996) et chargés négativement (Considine *et al.* 2002, Tufenkji *et al.* 2006). La charge négative des oocystes est à la fois attribuée aux groupements phosphate, mais aussi aux groupements carboxyles des protéines membranaires (Karaman *et al.* 1999), riches en cystéine, proline et histidine (Ranucci *et al.* 1993). Ces protéines membranaires contribuent non seulement à la charge négative des kystes et des oocystes, mais aussi à la répulsion stérique entre ces protozoaires et les matériaux filtrants. Cette affirmation a été validée lors d'essais en laboratoire qui ont démontré sous des conditions expérimentales équivalentes que la rétention d'oocystes viables était moindre que celle d'oocystes préalablement traités à la protéinase K (Kuznar & Elimelech 2006). D'ailleurs, ces interactions stériques gouvernent

l'attachement d'oocystes (Kuznar & Elimelech 2004, 2005, 2006, Tufenkji *et al.* 2006) et de kystes (Ruohola *et al.* 2012) en milieu poreux et l'ampleur de ces interactions diminue lors de la baisse de pH. Pour terminer, les propriétés de surface des oocystes peuvent varier d'un lot à un autre (Kuznar & Elimelech 2004), mais aussi en fonction de l'âge de ceux-ci (Drozd & Schwartzbrod 1996).

En milieu naturel, les paramètres physico-chimiques d'une eau peuvent aussi influencer les propriétés de surface des oocystes. Premièrement, une augmentation de la dureté calcique d'une eau implique une hausse de calcium ce qui provoque une diminution de la densité des charges ainsi qu'une compression des structures membranaires (Considine *et al.* 2002). La concentration de calcium d'une eau déstabilise donc les oocystes et diminue la valeur absolue de leur potentiel zêta ce qui favorise leur attachement en milieu poreux (Kuznar & Elimelech 2006). À l'inverse de l'impact du calcium, l'adsorption de matière organique naturelle (MON) aux oocystes provoque une compression des structures membranaires ainsi qu'une augmentation de la densité des charges (Considine *et al.* 2002). La MON a donc pour effet d'augmenter la valeur absolue du potentiel zêta des kystes et des oocystes (Considine *et al.* 2002, Dai & Hozalski 2002), et ce, en fonction de la concentration de carbone organique dissous (COD) (Considine *et al.* 2002). De plus, l'adsorption de MON provoque aussi une augmentation de l'hydrophobicité des oocystes (Dai & Hozalski 2002). À titre d'exemple, un prétraitement des oocystes avec une solution de 5 ppm de MON provenant de la rivière Suwannee pour une période de 30 minutes a provoqué une baisse de rétention de 37 % en milieu poreux (colonne de billes de verre) par rapport à la rétention observée en absence de prétraitement (Dai & Hozalski 2002). Néanmoins, l'impact de la MON sur les propriétés de surface des protozoaires ne fait pas l'unanimité. D'ailleurs, aucune différence significative de potentiel zêta n'a été observée entre des oocystes traités aux acides fulviques (provenant des Everglades de Floride), jusqu'à une concentration de 20 mg L⁻¹, et les oocystes non traités (Abudalo *et al.* 2010). Conséquemment, l'impact de la MON sur les propriétés de surface des oocystes semble être fonction de la composition de cette dernière. Dans l'ensemble, il est important de considérer l'impact des paramètres physico-chimiques d'une eau sur les propriétés de surface de ces protozoaires afin de comprendre la rétention de kystes et d'oocystes par filtration granulaire en l'absence de coagulation.

1.3.1.2 Propriétés de surface des matériaux filtrants

Les propriétés de surface des matériaux filtrants sont à la fois fonction de la teneur en métaux des grains, de l'adsorption de matière organique naturelle (MON) et de la prolifération de biofilm. De manière générale, une hausse de la teneur en oxydes de métaux en surface des grains favorise la rétention de protozoaires en milieu poreux (Abudalo *et al.* 2010). Des essais en laboratoire confirment que l'impact de l'hétérogénéité de composition géochimique des matériaux sur la rétention de colloïdes est plus important que le potentiel zêta des grains et la force ionique de l'eau (Elimelech *et al.* 2000). À des pH similaires aux eaux de surface, ces oxydes confèrent une charge positive ou neutre aux grains et ainsi minimisent la répulsion entre les matériaux filtrants et les oocystes (tous deux étant chargés négativement), ce qui favorise l'attachement (Abudalo *et al.* 2005). C'est pourquoi la rétention d'oocystes est corrélée à la fraction de la surface des grains couverte d'oxydes de métaux (Abudalo *et al.* 2005, Metge *et al.* 2010). En d'autres termes, la teneur en métaux d'un matériau filtrant donné explique en partie la performance de celui-ci en matière de l'enlèvement de protozoaires parasites.

Les propriétés de surface des matériaux filtrants peuvent aussi être altérées en raison d'une exposition à une eau naturelle. L'adsorption de MON à la surface des grains cause une diminution de la rétention d'oocystes en milieu poreux (Metge *et al.* 2010). Plus précisément, il a été répertorié que la MON masque les oxydes de métaux en surface des matériaux filtrants. Par exemple, une inversion des charges des matériaux filtrants riches en oxyhydroxides ferriques (75 %) a été observée à la suite d'un dosage de 1 mg L⁻¹ d'acides fulviques (Everglades de Floride). De plus, l'ampleur de la charge négative est fonction de la concentration d'acides fulviques dosés (Abudalo *et al.* 2010). Similairement, d'autres auteurs ont démontré en milieu contrôlé (colonnes de filtration de billes de verre dépourvues d'oxydes de métaux) qu'un prétraitement du lit filtrant à la MON (5 mg L⁻¹) diminue l'efficacité d'enlèvement des oocystes. Les auteurs ont suggéré que l'accumulation de MON augmente l'hydrophobicité des grains ce qui a comme répercussion de hausser les répulsions stériques entre les grains et les oocystes (Dai & Hozalski 2002). D'autres ont aussi expliqué cette baisse d'attachement par une hausse de répulsions stériques et électrostatiques entre les colloïdes et les grains (Franchi & O'Melia 2003). En somme, en l'absence de coagulation, l'adsorption de MON en surface des matériaux filtrants favorise le transport de kystes et d'oocystes en milieu poreux.

La prolifération de biofilm peut aussi modifier les propriétés de surface des grains et ainsi influencer l'enlèvement de protozoaires parasites par filtration granulaire. Lors d'essais de filtration à l'aide de colonnes de billes de verres colonisés par *Pseudomonas aeruginosa*, une diminution de l'enlèvement d'oocystes de 27 % a été observée par rapport à la performance offerte en l'absence de biofilm (Dai & Hozalski 2002). Similairement, lors d'essais pilotes, l'enlèvement d'oocystes sur charbon actif en grain (CAG) à base minérale épuisé et colonisé (1,2 log) était moindre que celui offert sur du CAG neuf (2,7 logs). À l'inverse, lors des mêmes essais, aucune différence n'a été observée quant à l'enlèvement de kystes de *Giardia* entre le CAG neuf et usagé (Hijnen et al. 2010). Ces observations sont d'intérêt puisqu'elles contredisent une étude précédente menée à l'échelle pilote qui a démontré une augmentation de l'enlèvement d'oocystes par l'entremise de filtres biologiques par opposition à des filtres conventionnels (Amburgey et al. 2005). Ces observations contredisent aussi des études à l'échelle microscopique et laboratoire qui ont démontré que les oocystes s'accumulent et persistent dans le biofilm (Helmi et al. 2008, Searcy et al. 2006b). Pour tout dire, la prolifération de biofilm en surface de matériaux filtrants influence la performance de la filtration granulaire, mais actuellement il est impossible de statuer sur ce phénomène puisque les observations relevées dans la littérature scientifique sont contradictoires. En conclusion, les propriétés de surface des matériaux filtrants jouent un rôle clé sur l'attachement de kystes et d'oocystes dans le lit filtrant, et ce, particulièrement lorsque la filtration n'est pas assistée chimiquement.

1.3.2 Substituts pour les kystes et oocystes

L'utilisation de substitut de *Cryptosporidium* et de *Giardia* pour évaluer la performance de la filtration est souhaitable puisqu'actuellement les méthodes d'énumération, par exemple la méthode 1623 (United States Environmental Protection Agency (USEPA) 2005), sont coûteuses et laborieuses. De plus, les concentrations de *Cryptosporidium* et de *Giardia* aux prises d'eau brutes sont telles qu'il est difficile d'observer des concentrations au-dessus des limites de détection à l'eau filtrée (Nieminski et al. 2000). Bien qu'il ait été répertorié que des kystes et des oocystes traversent le traitement conventionnel (Aboytes et al. 2004), la fraction d'échantillons positifs disponibles est souvent trop faible pour permettre une évaluation de la performance de traitement à l'échelle réelle (Hashimoto et al. 2001, LeChevallier et al. 1991). Par ailleurs, l'incertitude associée à la quantification de protozoaires à l'eau filtrée est élevée puisque le

nombre de microorganismes énuméré par échantillon positif est faible (Emelko *et al.* 2008). Pour ces raisons, plusieurs particules inertes, organismes et indicateurs de performance ont été étudiés dans le but d'identifier un substitut pour les protozoaires parasites. Le substitut idéal serait quantifié par une méthode simple (sans équipements spécialisés ou personnel hautement qualifié), rapide et peu coûteuse, mais aurait aussi, dans le cas d'un substitut indigène, une concentration suffisante à l'eau filtrée pour permettre une évaluation de performance (Nieminski *et al.* 2000). Le substitut idéal agirait en outre à titre d'indicateur semi-quantitatif de l'enlèvement de protozoaires sous différentes conditions d'opération. À l'heure actuelle, aucun indicateur quantitatif pour *Giardia* et *Cryptosporidium* n'a été identifié (Emelko *et al.* 2005). Le choix de substitut repose donc sur la question posée ainsi que le contexte de son utilisation.

Il a été répertorié lors d'essais pilotes que les enlèvements de kystes et d'oocystes sont similaires, (LeChevallier *et al.* 1991, McTigue *et al.* 1998) mais non directement reliés (Charles *et al.* 1995, Patania *et al.* 1995). Plus précisément, l'enlèvement des oocystes est généralement moindre que l'enlèvement des kystes (Huck *et al.* 2001, Nieminski & Ongerth 1995). En raison (i) d'une moins bonne performance de l'enlèvement de *Cryptosporidium* par opposition à *Giardia* par procédé de filtration, (ii) de la résistance des oocystes aux oxydants, ainsi que (iii) des coûts associés à l'achat et à l'énumération de ces protozoaires, plusieurs auteurs se sont seulement attardés à l'évaluation de substituts de *Cryptosporidium*.

1.3.2.1 Microsphères

Les microsphères carboxylées en polystyrène de taille ($\approx 4,5 \mu\text{m}$) et de densité ($\approx 1,04 \text{ g mL}^{-1}$) similaires aux oocystes peuvent généralement agir à titre de substitut semi-quantitatif de l'enlèvement d'oocystes (Emelko *et al.* 2005). La quantification de celles-ci est moins laborieuse et moins coûteuse que la quantification d'oocystes. Leur utilisation a été validée lors d'essais pilotes (Amburgey *et al.* 2005, Emelko *et al.* 2003, Swertfeger *et al.* 1999), ainsi qu'en laboratoire (Dai & Hozalski 2003, Tufenkji *et al.* 2004). Les microsphères de polystyrène carboxylées possèdent un potentiel zêta qui est légèrement plus négatif que celui des oocystes ce qui fait d'elles un substitut conservateur pour l'enlèvement de *Cryptosporidium* (Dai & Hozalski 2003). De plus, l'enlèvement de ces substituts abiotiques par traitement conventionnel (Swertfeger *et al.* 1999) et filtration directe (Amburgey *et al.* 2005) est généralement du même ordre de grandeur que l'enlèvement d'oocystes tant en condition d'opération stable que sous des

conditions d'opération non optimales (Emelko & Huck 2004, Emelko *et al.* 2003). Toutefois, il a été documenté que la relation entre l'enlèvement de *Cryptosporidium* et de microsphères semble propre au filtre (Emelko & Huck 2004). Ceci indique que les microsphères ne peuvent être utilisées à titre de substitut quantitatif de *Cryptosporidium*, mais plutôt comme substitut semi-quantitatif (Emelko *et al.* 2005). Nonobstant le fait que ces microsphères soient un bon substitut, leur utilisation à l'échelle réelle s'avère problématique. Enfin, elles ne peuvent pas être utilisées à titre d'indicateur de performance pour des suivis routiniers puisqu'elles ne sont pas naturellement présentes à l'eau brute.

1.3.2.2 Substituts biologiques

À titre d'option alternative aux substituts inertes comme les microsphères, des substituts biologiques ou microbiens ont aussi été étudiés. Premièrement, la relation entre l'enlèvement de bactéries hétérotrophes aérobies et de protozoaires a été évaluée à l'échelle réelle pour conclure que ces bactéries ne sont pas de bons substituts en raison de leur recroissance dans les lits filtrants (Nieminski & Bellamy 2000). Deuxièmement, la relation entre l'enlèvement de *Cryptosporidium* et l'enlèvement d'algues de tailles similaires a été étudiée. Tout d'abord, lors d'essais de filtration directe, *S. capricornutum* s'est avéré un bon substitut pour *Cryptosporidium*. Or, cette relation doit être interprétée avec réserve lorsqu'appliquée pour une autre installation puisqu'elle s'est montrée sensible aux conditions de coagulation (Akiba *et al.* 2002). Dans le même ordre d'idée, l'enlèvement de diatomées (*Stephanodiscus hantzschii*) par filtration lente sur sable s'est avéré trop conservateur (4 logs plus élevés) par opposition à l'enlèvement d'oocystes (Hijnen *et al.* 2007). Ainsi, les algues ne semblent pas être de bons substituts pour les protozoaires parasites vu les limites de leur utilisation. Troisièmement, l'utilisation d'endospores bactériennes à titre de substitut pour *Cryptosporidium* et *Giardia* a été évaluée. Deux types d'endospores ont été étudiés à cet égard soit les endospores de BSA et les endospores anaérobies (*C. perfringens* et endospores de *Clostridia* sulphato-réducteur (SSRC)). Dans les eaux de surface, les concentrations de ces endospores bactériennes indigènes excèdent largement celles des kystes et des oocystes. Il est donc possible de les utiliser afin d'évaluer la performance de procédés de filtration à l'échelle réelle (Payment & Franco 1993, Rice *et al.* 1996). Dans ce contexte, il a été démontré que les endospores de *C. perfringens*, c'est-à-dire la fraction dominante des SSRC (Sartory *et al.* 1993), sont des substituts conservateurs des oocystes de

Cryptosporidium et des kystes de *Giardia* lors de traitement conventionnel à l'échelle réelle (Payment & Franco 1993). Néanmoins, les concentrations de SSRC sont souvent sous la limite de détection à l'eau filtrée (Sartory 2003). De ce fait, afin de permettre une évaluation de l'efficacité de traitement par l'entremise de mesures de SSRC, de plus grands volumes doivent être analysés (Hijnen *et al.* 2000b, Payment *et al.* 2002). Contrairement aux SSRC, les endospores de BSA sont présentes en plus grand nombre dans les eaux brutes ce qui facilite la quantification de leur concentration à l'eau filtrée (Galofré *et al.* 2004, Mazoua & Chauveheid 2005, Nieminski *et al.* 2000, Rice *et al.* 1996). Par le fait même, les résultats de traitement conventionnel ainsi que de filtration directe démontrent que les endospores de BSA peuvent être utilisées à titre de substitut conservateur de *Cryptosporidium* (Nieminski *et al.* 2000), et ce, même sous conditions d'opération non optimales (e.g. coagulation sous optimale) (Huck *et al.* 2002b). Toutefois, les endospores de BSA recèlent quelques faiblesses quant à leur utilisation en eaux chaudes. Spécifiquement, une augmentation de leur concentration a été observée à l'effluent de filtre de CAG en 2^e étage (Galofré *et al.* 2004, Mazoua & Chauveheid 2005). Il a été suggéré, sans observations à l'appui, que cette augmentation était causée par une recroissance bactérienne dans le lit filtrant (Galofré *et al.* 2004) ou par une percée anticipée¹³ (Mazoua & Chauveheid 2005). Néanmoins, les limites d'utilisation des endospores de BSA à titre d'indicateur de traitement, surtout en eaux chaudes demeurent indéterminées. Ainsi, leur usage doit être adapté aux circonstances de leur utilisation. Somme toute, bien qu'elles s'avèrent des substituts moins adéquats que les microsphères de polystyrène, les endospores bactériennes peuvent être utilisées à titre d'indicateur de la performance conservateur pour évaluer l'enlèvement de protozoaires à l'échelle réelle. Bref, c'est pour cette raison que la réglementation américaine propose l'utilisation d'endospores bactériennes afin de permettre une évaluation de performance de procédés de filtration dans l'objectif d'obtenir des crédits d'enlèvement additionnels (United States Environmental Protection Agency (USEPA) 2006).

1.3.2.3 Indicateurs indirects de performance

Plusieurs ont documenté que la turbidité et les comptes de particules peuvent servir à titre d'indicateur indirect de performance des procédés de filtration. Certains ont même observé une

¹³ Traduction personnelle de «early breakthrough».

corrélation positive entre l'enlèvement de la turbidité, de particules et d'oocystes (LeChevallier & Norton 1992, LeChevallier *et al.* 1991, Nieminski 1994), et ce, particulièrement lors de la coagulation-décantation (Dugan *et al.* 2001). L'enlèvement de ces indicateurs est généralement inférieur à l'enlèvement de protozoaires (Patania *et al.* 1995, Swertfeger *et al.* 1999, West *et al.* 1994), mais s'avère équivalent ou supérieur sous des conditions de coagulation sous-optimale (Dugan *et al.* 2001). Nonobstant les corrélations positives répertoriés entre l'enlèvement de turbidité ou de particules et l'enlèvement de protozoaires, plusieurs ont démontré que l'enlèvement de ces indicateurs est non représentatif de l'enlèvement de protozoaires (Baudin & Laine 1998, Edzwald & Kelley 1998, Huck *et al.* 2001, Kelley *et al.* 1995, LeChevallier & Norton 1992, McTigue *et al.* 1998, Nieminski & Ongerth 1995, Patania *et al.* 1995). C'est pourquoi un suivi de ces paramètres à l'eau filtrée s'avère plus approprié qu'un suivi de leur enlèvement (McTigue *et al.* 1998). Autrement dit, la turbidité et les comptes de particules sont de bons indicateurs du cycle de filtration (Huck *et al.* 2002b, Nieminski *et al.* 2000) et représentatifs de la baisse d'enlèvement de protozoaires lors de la maturation des filtres (Baudin & Laine 1998, Huck *et al.* 2002b, Patania *et al.* 1995), ainsi qu'à la fin du cycle de filtration (Emelko *et al.* 2003, Huck *et al.* 2002b). Par ailleurs sous condition d'opération stable, il a été documenté qu'une diminution de la turbidité à l'eau filtrée augmente l'enlèvement médian (Patania *et al.* 1995), mais aussi l'enlèvement minimal de protozoaires, lorsqu'inférieur à 0,2 UTN (Xagorarakis *et al.* 2004). Cette baisse de turbidité à l'eau filtrée reflète la performance de la coagulation qui a une répercussion directe sur la rétention de particules, mais aussi de protozoaires dans le lit filtrant (Xagorarakis *et al.* 2004). Essentiellement, un suivi de la turbidité à l'eau filtrée s'avère d'intérêt pour des fins d'opération, mais peut difficilement agir à titre de substitut pour prédire les enlèvements des kystes et des oocystes.

1.3.3 Sommaire des essais pilotes et à l'échelle réelle

Considérant les limites d'application des connaissances issues en laboratoire, il est commun d'avoir recours à des essais pilotes ou à l'échelle réelle dans l'objectif d'améliorer la compréhension en ce qui concerne le prétraitement, la conception et l'opération de procédés de filtration rapide. L'usage d'essais pilotes permet d'évaluer une gamme de conditions d'opération, dont certaines qui ne sont pas toujours souhaitables en usine. Ces essais permettent aussi le dosage de protozoaires parasites ou de substituts, ce qui n'est pas forcément permis en usine.

Somme toute, les résultats de ces études s'avèrent très utiles pour les instances réglementaires. Spécifiquement, elles nous informent sur l'attribution de crédits d'enlèvement aux différents procédés et sur le choix de critères d'opération qui doivent être respectés afin de minimiser le transport de protozoaires parasites à l'eau filtrée. Pour ces raisons, cette section de revue de littérature résume l'état des connaissances sur l'enlèvement de *Cryptosporidium* et de *Giardia* dans les filtres granulaires.

1.3.3.1 Impact de la présence d'un décanteur en amont des filtres

Certains auteurs se sont penchés sur l'influence du type de procédé de filtration sur l'enlèvement de *Cryptosporidium* spp. et de *Giardia* spp. par l'entremise d'essais pilotes. De manière générale, la filtration en ligne offre de moins bons enlèvements de protozoaires que le traitement conventionnel (Hendricks *et al.* 2005, Patania *et al.* 1995). À titre d'exemple, des essais pilotes de filtration sur anthracite opérés avec une dose d'alun et une vitesse de filtration équivalente (12 m h^{-1}) démontrent que l'enlèvement de kystes et d'oocystes par traitement conventionnel est respectivement de l'ordre de 0,8 log et de 0,6 log supérieur à l'enlèvement offert par la filtration en ligne (Hendricks *et al.* 2005). Cette performance accrue du traitement conventionnel est associée à la décantation (Dugan *et al.* 2001, Patania *et al.* 1995) qui semble être plus performante lorsque la turbidité à l'eau brute est plus élevée (Dugan *et al.* 2001, Logsdon *et al.* 1985). Bien que le type de décanteur influence l'enlèvement de protozoaires par décantation, celui-ci ne semble pas influencer la performance globale du traitement conventionnel (Edzwald *et al.* 2000, Hall *et al.* 1995). Contrairement aux résultats répertoriés lors d'essais pilotes, aucune différence significative d'enlèvement de *Cryptosporidium* et de *Giardia* n'a été observée à l'échelle réelle en fonction du type de filtration (Nieminski & Ongerth 1995). Dans ce contexte, il est difficile de comparer la performance de ces procédés puisque les usines diffèrent non seulement en matière de conception et d'opération, mais aussi en matière de qualité d'eau brute laquelle peut agir à titre de facteur confondant (Nieminski & Ongerth 1995). Enfin, puisque la décantation agit à titre de barrière physique additionnelle, à l'heure actuelle les instances réglementaires octroient 0,5 log d'enlèvement additionnel au traitement conventionnel par rapport à la filtration directe tant pour *Cryptosporidium* (Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs du Québec (MDDEP) 2012a, United States Environmental Protection Agency (USEPA) 2006) que pour *Giardia* (Ministère du Développement Durable de

l'Environnement et des Parcs du Québec (MDDEP) 2012a, United States Environmental Protection Agency (USEPA) 1989).

1.3.3.2 Impact de la vitesse de filtration

D'ordre général, une augmentation de la vitesse de filtration granulaire diminue l'enlèvement de *Cryptosporidium* et de *Giardia* par filtration en ligne (Dugan & Williams 2004) et par traitement conventionnel (Dugan *et al.* 2001, Patania *et al.* 1995) quoique la vitesse de filtration ait parfois un impact négligeable sur la performance d'un même système (Harrington *et al.* 2003). Parallèlement, une brève augmentation de la charge superficielle lorsqu'un filtre est à l'équilibre provoque une diminution de performance (Logsdon *et al.* 1981, McTigue *et al.* 1998). Plus précisément, ces variations causent le détachement de protozoaires préalablement retenus par le lit filtrant (Huck *et al.* 2002a). Toutefois, dans des conditions expérimentales identiques l'ampleur de la baisse d'efficacité de traitement d'un même système à la suite d'une courte hausse de vitesse de filtration varie d'un cycle de filtration à l'autre (Huck *et al.* 2001, Huck *et al.* 2002a). Ainsi, les baisses d'enlèvement de protozoaires qui résultent de courtes pointes de débit n'ont pas pu être répliquées et, à l'heure actuelle, il n'est pas possible de quantifier celles-ci avec précision. Par contre, il est possible d'en conclure que les procédés de filtration sont vulnérables aux augmentations soudaines de la vitesse de filtration puisque celles-ci ont des répercussions substantielles sur la rétention et le relargage de protozoaires dans le lit filtrant.

1.3.3.3 Type de filtre granulaire

Une différence négligeable d'enlèvement de kystes et d'oocystes est offerte avec différentes configurations de filtres granulaires qu'il s'agisse de filtres monocouches, bicouches ou multicouches opérés dans des conditions de coagulation équivalentes (Dugan *et al.* 2001, Emelko 2003, Hall *et al.* 1995, Hendricks *et al.* 2005, Patania *et al.* 1995, Swertfeger *et al.* 1999). Similairement, sous les mêmes conditions de coagulation, seules des différences marginales de performance ont été observées entre des filtres granulaires composés de différents matériaux filtrants (Hall *et al.* 1995, Patania *et al.* 1995). Ainsi, lorsque des filtres granulaires sont conçus et opérés pour respecter les normes de turbidité à l'eau filtrée, le type de filtre et de matériau filtrant semble avoir un impact négligeable sur l'enlèvement de protozoaires. Pour terminer, le type de

procédé utilisé (conventionnel vs filtration directe) tout comme le régime de coagulation sont plus importants que la configuration de filtres granulaires (Patania *et al.* 1995).

1.3.3.4 Rôle du prétraitement de coagulation

Plusieurs auteurs ont étudié l'impact de la coagulation sur l'enlèvement de protozoaires par filtration granulaire. Tout d'abord, le type de coagulant semble avoir un effet négligeable sur l'enlèvement de kystes et d'oocystes (Dugan *et al.* 2001, Nieminski *et al.* 2000), et ce, surtout lorsque le dosage de coagulant est optimisé pour l'enlèvement de particules et de turbidité (Patania *et al.* 1995). Similairement, l'ajout de polymères lorsque la coagulation est optimisée ne s'avère pas nécessaire afin d'améliorer l'enlèvement de kystes et d'oocystes (Patania *et al.* 1995). En contrepartie, il a été démontré que l'efficacité de traitement est très sensible à la coagulation sous-optimale. Spécifiquement, lors d'essais pilotes, une coagulation sous optimale diminue l'enlèvement de *Cryptosporidium* par traitement conventionnel de l'ordre de 1,5-2,0 logs (Dugan *et al.* 2001, Huck *et al.* 2001, Huck *et al.* 2002a, Huck *et al.* 2002b, Ongerth & Pecoraro 1995). Il est à noter que ces différences significatives de performance sont d'autant plus importantes qu'elles ont été observées lorsque des turbidités à l'eau filtrée étaient tout de même inférieures à 0,3 UTN (Huck *et al.* 2002b). Par ailleurs, un arrêt du dosage de coagulant pour un court laps de temps cause une diminution de performance encore plus importante (Logsdon *et al.* 1981). À titre d'exemple, une baisse d'enlèvement d'oocystes par traitement conventionnel de plus de 3 logs a été observée à la suite de l'arrêt du dosage d'alun (Emelko 2003). Bref, l'importance de la coagulation sur l'enlèvement de *Cryptosporidium* et de *Giardia* par filtration granulaire est considérable et excède celle de l'ajout de polymères, de la vitesse de filtration et de la configuration des filtres granulaires (Patania *et al.* 1995).

1.3.3.5 Variations de performance durant le cycle de filtration

Dès les premiers essais de caractérisation d'enlèvement de *Giardia* par filtration granulaire, il a été noté que la performance lors de la période de maturation ainsi qu'à la fin du cycle de filtration était plus faible qu'observée lors de conditions d'opération stable (Logsdon *et al.* 1981). Par exemple, lors de la maturation, l'enlèvement de *Cryptosporidium* et de *Giardia* par filtration en ligne est de l'ordre de 0,4-1,0 log plus faible qu'en période d'opération stable (Patania *et al.* 1995). De la même façon, l'enlèvement de *Cryptosporidium* par traitement conventionnel lors de

la période de maturation est plus faible de l'ordre de 0,5-1,0 log qu'en conditions d'opération stables (Emelko 2003, Huck *et al.* 2002a, Huck *et al.* 2002b). C'est pourquoi il a été jugé pertinent de filtrer à l'égout après le lavage des filtres afin d'améliorer la performance générale du procédé (Logsdon *et al.* 1985). Quant à la baisse de performance à la fin du cycle de filtration, celle-ci s'avère substantielle (Emelko *et al.* 2003, Huck *et al.* 2002a, Huck *et al.* 2002b). Par exemple, l'enlèvement d'oocystes par traitement conventionnel lors de conditions d'opération stables, de la percée anticipée¹⁴ et de la percée des filtres est respectivement de l'ordre de 4,5 logs, 2,1 logs et < 2 logs. Il est aussi à noter que la diminution d'efficacité de traitement répertoriée lors de la percée anticipée, qui s'explique par un non-attachement d'oocystes à la fin du cycle de filtration, a été observée dans des circonstances où la turbidité à l'eau filtrée était inférieure à 0,1 UTN. Ainsi, ces baisses de performance considérables ne sont pas bien décrites par des indicateurs de performance comme la turbidité et les comptes de particules qui sont utilisés à titre de référence pour l'opération des filtres (Emelko *et al.* 2003). Malheureusement, les auteurs des études ayant quantifié les baisses de performance à la fin du cycle de filtration n'ont pu prendre position par rapport à l'importance du détachement qui a lieu dans ces circonstances. En conclusion, la performance de procédés de filtration en traitement des eaux potables s'avère moins efficace au début ainsi qu'à la fin du cycle de filtration. Cependant, ces baisses d'efficacité de traitement s'avèrent moins importantes qu'observées lors de perte de coagulation (Huck *et al.* 2002b).

1.3.4 Variations de qualité d'eau et performance de filtres granulaires

Les prises d'eau potable sont sujettes à des variations de qualité d'eau. Ces variations sont fonction de l'occupation du territoire en amont, mais aussi de facteurs hydrologiques, météorologiques et géologiques comme discuté dans la section 1.1.3. Voilà pourquoi cette section de revue de littérature s'intéresse à l'impact de ces variations de concentrations de *Cryptosporidium* et *Giardia*, mais aussi à l'occurrence de particules d'argiles à l'eau brute sur l'efficacité d'abattement de kystes et oocystes.

¹⁴ Traduction personnelle de « early breakthrough »

1.3.4.1 Impact de la concentration initiale de protozoaires sur la performance des filtres

Seules quelques études relevées dans la littérature scientifique ont évalué l'effet de la concentration microbienne sur l'enlèvement par filtration granulaire par l'entremise d'essais pilotes ou de données issues en usine. Tout d'abord, des observations faites lors d'une étude pilote ont indiqué que la performance du traitement conventionnel était indépendante de la concentration de protozoaires à l'eau brute (McTigue *et al.* 1998). Toutefois, dans le cadre de cette étude, aucun duplicata d'expérience n'a été fait. Par ailleurs, la méthode analytique utilisée pour énumérer les kystes et oocystes manquait de précision puisqu'un taux de récupération supérieur à 100 % a été répertorié par moment. Conséquemment, les conclusions issues de cette dernière étude sont discutables. À l'opposé, d'autres ont par la suite démontré qu'il semble exister une relation entre la concentration de protozoaires à l'eau brute et leur abattement par procédés de filtration. D'une part, les résultats obtenus lors d'essais pilotes de filtration en ligne ont démontré qu'il semble exister une relation entre les concentrations à l'affluent et l'abattement seulement pour les plus gros microorganismes comme *Giardia*. Ces observations sont cependant peu concluantes puisque la relation entre la concentration d'organismes/substituts à l'affluent (*Cryptosporidium*, *Giardia*, microsphères, *E.coli*, *Bacillus stearothermophilus*, *Micrococcus luteus*, MS-2, Phi-X-174, Eco-virus-12 et 3 types d'algues) et l'enlèvement total mesuré a seulement été observée auprès d'organismes dont la concentration à l'eau filtrée était négligeable (Hendricks *et al.* 2005). D'autre part, cette problématique a aussi été étudiée dans le cadre d'essais pilotes de traitement conventionnel. Les essais ont été menés à l'aide d'eau très peu turbide et, donc, avec un très faible nombre de particules. Lors de ces essais, une hausse de l'enlèvement de *Giardia* et de *Cryptosporidium* a été observée en fonction de la concentration de kystes et d'oocystes dosés à l'affluent. Précisément, une amélioration de la performance sur deux ordres de grandeur a été observée à la suite d'une hausse de la concentration de kystes et d'oocystes à l'eau brute de 2 logs. (Assavasilavasukul *et al.* 2008a, Assavasilavasukul *et al.* 2008b). Quoi qu'il en soit, la relation entre l'abattement et la concentration de kystes ou d'oocystes à l'eau brute semble dissimuler l'impact de la dose d'alun tout comme la hausse de cinétique de floculation en raison d'une hausse de la concentration de protozoaires dosés à l'affluent. Ceci est pertinent, d'autant plus qu'il a été répertorié dans le cadre de la même étude, que la performance était fonction de la concentration de protozoaires, mais aussi de la turbidité de

l'eau brute. D'autres recherches sont donc nécessaires afin de déterminer si la relation répertoriée entre la concentration de protozoaires et l'enlèvement est indépendante de la concentration de particules à l'eau brute. Pour terminer, la relation entre la concentration initiale et la performance du traitement conventionnel a été étudiée par l'entremise de données historiques issues du suivi réglementaire britannique de *Cryptosporidium* à l'eau filtrée provenant de huit usines et de mesures de parasites non paires à l'eau brute provenant des mêmes installations. Les résultats obtenus démontrent que la performance du traitement conventionnel varie d'un site à l'autre puisque l'évaluation ponctuelle de l'enlèvement moyen d'oocystes par usine varie de 1.8 à 5.2 logs. Plus précisément, les résultats indiquent que l'abattement de *Cryptosporidium* semble relié à la concentration d'oocystes à l'eau brute puisque les concentrations observées à l'eau filtrée de chacun des sites étudiés sont comparables (Smeets *et al.* 2007). Par contre, il est à noter qu'aucune donnée de turbidité n'a été intégrée dans cette analyse et qu'il est impossible de déterminer si ces variations de performances entre usines sont attribuables à des variations de concentrations de particules à l'eau brute. Ainsi, il est d'intérêt de poursuivre des recherches sur l'influence des variations de concentrations de protozoaires parasites sur la performance de procédés de filtration granulaire tout en s'intéressant à la turbidité ou à la concentration des particules à l'eau brute.

Seules des études en laboratoire ont été menées afin d'évaluer en milieu poreux les répercussions de l'impact de la concentration initiale de bactéries ou de substituts (microsphères) sur les mécanismes d'enlèvement dynamiques impliqués comme la maturation, le blocage¹⁵ et l'enlèvement stérique. La maturation a lieu lorsque les interactions entre les colloïdes (ou microorganismes) sont favorables. Dans ces circonstances, les microorganismes préalablement attachés aux matériaux filtrants agissent à titre de collecteurs additionnels (Camesano *et al.* 1999). Plus la concentration initiale de microorganismes est élevée, plus ce mécanisme est amplifié, ce qui se répercute en une amélioration de rétention de microorganismes en fonction de la concentration dosée à l'affluent (Camesano & Logan 1998). Au contraire, lorsque les interactions entre les microorganismes sont non favorables, un blocage des sites d'attachement a lieu. Plus précisément, lorsque ces microorganismes sont retenus en surface du matériau filtrant,

¹⁵ Traduction personnelle de « blocking ».

ils bloquent les sites d'attachement et confèrent une charge négative additionnelle au matériau. Ainsi les microorganismes subséquents subissent de plus grandes forces de répulsions ce qui cause une diminution de l'attachement. Ce phénomène est en outre amplifié par la concentration de colloïdes qui est injectée (Bradford & Bettahar 2006, Camesano & Logan 1998, Liu *et al.* 1995, Rijnaarts *et al.* 1996). Pour terminer, une hausse de la concentration initiale de colloïdes augmente l'ampleur de la rétention par enlèvement stérique. Une fois qu'un colloïde se coince dans un pore, les colloïdes subséquents s'accumulent derrière celui-ci dans l'embouchure du pore et ce phénomène s'amplifie lorsque de plus grandes concentrations sont dosées (Bradford & Bettahar 2006). Enfin, en absence de coagulation, la concentration initiale de microorganismes injectée influence la rétention en milieu poreux, et ce, en fonction des interactions entre microorganismes ou particules. Alors, une identification des mécanismes impliqués lors d'essais de filtration rapide non assistée chimiquement permettrait une meilleure compréhension de l'impact des variations de concentration de *Giardia* et de *Cryptosporidium* à l'eau brute sur la performance de la filtration granulaire en usine.

1.3.4.2 Impact de la cooccurrence de particules d'argile sur la rétention de protozoaires parasites

Peu d'études se sont attardées à l'impact du cotransport de particules d'argile et de microorganismes. Ce sujet est d'intérêt d'autant plus que les particules d'argile dans les eaux de surface peuvent représenter une fraction importante des matières en suspensions (Gauthier *et al.* 2001, Gauthier *et al.* 2003). D'ailleurs, les seules études relevées dans la littérature scientifique ont été menées en milieu contrôlé et à des débits représentatifs du transport en eaux souterraines. D'ordre général, la rétention de virus (Syngouna & Chrysikopoulos 2013), de bactéries (Vasiliadou & Chrysikopoulos 2011, Yang *et al.* 2012) et de protozoaires (Gitis *et al.* 2002, Park *et al.* 2012) en milieu poreux, semble plus importante en présence de particules d'argile. Notamment, une augmentation de l'efficacité d'attachement d'oocystes de *Cryptosporidium* aux grains de sable d'un réacteur complètement mélangé a été répertoriée après l'ajout de particules de kaolinite. Les auteurs de cette étude en ont déduit que les particules de kaolinite adhèrent aux grains de sable pour ensuite former de nouveaux sites plus favorables à l'attachement d'oocystes (Gitis *et al.* 2002). Dans le même ordre d'idée, une amélioration de l'efficacité d'attachement de *Cryptosporidium* dans des colonnes de sable a été observée lorsque les oocystes étaient

simultanément dosés avec des particules d'illite. Les auteurs de cette étude ont posé comme hypothèse que la hausse de rétention observée était le résultat d'hétéroaggrégation d'oocystes et de particules d'illite. Puisque la densité des particules d'illite est supérieure à celle des oocystes, la formation d'agrégats hausserait de transport d'oocystes par décantation à proximité du grain et ainsi augmenterait l'efficacité d'attachement de *Cryptosporidium* (Park *et al.* 2012). Malgré que ces études relèvent que les particules d'argiles semblent améliorer la rétention d'oocystes en milieu poreux, les conclusions issues de celles-ci se limitent en des conditions expérimentales contrôlées. Il est donc difficile de transposer ces connaissances à filtration rapide en traitement des eaux potables. Conséquemment, d'autres recherches doivent être poursuivies notamment dans un contexte de filtration directe non assistée chimiquement pour déterminer si la performance de ce procédé est sujette à des pointes de turbidité de nature minérale.

Enfin, cette revue de littérature nous a permis de conclure que les concentrations de *Giardia* et de *Cryptosporidium* présents dans les prises d'eau brute d'usine de traitement des eaux potables varient dans le temps. Ces variations de concentrations de kystes et d'oocystes sont fonction de l'occupation du territoire, mais aussi de facteurs hydrologiques et météorologiques. Actuellement, peu d'études ont investigué l'impact de ces variations de concentrations, qui sont parfois concomitantes avec des pointes de turbidité, sur l'efficacité de traitement de la filtration rapide.

CHAPITRE 2 OBJECTIFS DE RECHERCHE ET PLAN EXPÉRIMENTAL

2.1 Critique des travaux antérieurs

En l'absence d'épidémie, l'évaluation du risque associé à la consommation d'eau potable par l'entremise d'études épidémiologiques est peu précise et manque de sensibilité (Teunis & Havelaar 2002). Dans ce contexte, les modèles d'analyse quantitative du risque microbien (QMRA) permettent de faire le lien entre les concentrations de microorganismes pathogènes à la source, le traitement des eaux potables et la santé publique. Ces analyses probabilistes permettent de déterminer un niveau de risque en fonction de la virulence d'un microorganisme cible (courbes dose-réponse) et de la probabilité d'exposition (Regli *et al.* 1991, Teunis *et al.* 1997). Plus précisément, la probabilité d'exposition est définie par le produit de fonctions de probabilité de distribution (PDF) de plusieurs variables comme l'occurrence à l'eau brute, la performance du traitement des eaux potables (abattement physique et désinfection), l'état du réseau de distribution, ainsi que le volume d'eau non bouillie ingéré quotidiennement par individu (Medema & Ashbolt 2006). En l'absence de réacteur UV, plusieurs usines misent sur l'enlèvement de protozoaires parasites par procédés de filtration (Betancourt & Rose 2004), et ce, particulièrement en eaux froides, car la cinétique de la réaction d'ozonation de *Cryptosporidium* est telle qu'elle ne permet pas l'atteinte des objectifs de traitement uniquement par l'intermédiaire de la désinfection chimique (Oppenheimer *et al.* 2000). Conséquemment, la description de la performance des procédés physico-chimiques à l'égard de l'enlèvement de *Giardia* et de *Cryptosporidium* dans le cadre de QMRA est d'importance puisque celle-ci contribue de façon significative à l'évaluation de l'exposition. Étant donné que le risque d'infection associé aux protozoaires parasites est accru lors d'événements rares tels que les défaillances de traitement (Haas *et al.* 1996, Teunis *et al.* 1997), une description détaillée de la performance des procédés de traitement est de mise.

Considérant que les concentrations de kystes et d'oocystes dans les eaux de surface varient dans le temps parfois même sur plusieurs ordres de grandeur (Atherholt *et al.* 1998, Kistemann *et al.* 2002, LeChevallier *et al.* 2003, Ong *et al.* 1996, Signor *et al.* 2007, Wilkes *et al.* 2009), il est

astucieux, dans une perspective d'analyse du risque, de déterminer si ces variations saisonnières ont un impact sur l'efficacité des traitements. L'étude de ce phénomène s'avère fort pertinente étant donné que peu de travaux ont étudié l'effet de la concentration initiale de protozoaires parasites sur la performance des procédés de filtration de l'eau potable.

Jusqu'à présent, seuls les travaux de Hendricks *et al.* (2005) (filtration en ligne) et d'Assavasilavasukul *et al.* (2008 a, b) (traitement conventionnel) traitent spécifiquement de l'impact de la concentration initiale de protozoaires parasites (*Cryptosporidium* spp. et *Giardia* spp.) sur l'enlèvement obtenu par filtration lors d'essais pilotes. Les résultats obtenus par filtration en ligne sont toutefois discutables puisqu'une relation entre la concentration initiale d'organismes et l'enlèvement total mesuré a seulement été observée auprès d'organismes dont la concentration à l'eau filtrée était négligeable (Hendricks *et al.* 2005). Quant aux résultats obtenus par traitement conventionnel (Assavasilavasukul *et al.* 2008a, Assavasilavasukul *et al.* 2008b), ceux-ci démontrent que la performance est fonction de la concentration de kystes et d'oocystes dosés de même que de la turbidité à l'eau brute. En effet, une hausse de performance résulte d'une hausse du dosage de protozoaires à l'eau brute. Par ailleurs, cette étude démontre que, pour les concentrations de *Giardia* et de *Cryptosporidium* généralement observées dans les eaux brutes, les crédits d'enlèvement octroyés par la réglementation surestimeraient l'enlèvement de protozoaires. Néanmoins, d'autres études sont nécessaires afin de valider les résultats répertoriés. Les modèles de régression élaborés par ces auteurs afin d'interpréter les résultats obtenus sont inexacts pour la simple raison qu'ils font l'usage de la concentration initiale de protozoaires pour prédire l'efficacité de traitement (i.e. $\log(C/C_0)$ vs C_0) alors que ces deux variables sont interdépendantes. De ce fait, il aurait été préférable de modéliser la concentration de protozoaires à l'effluent plutôt que l'enlèvement en fonction de la concentration à l'affluent. C'est pourquoi seules les tendances générales dégagées dans le cadre de cette étude sont valables. Quoi qu'il en soit, ces observations corroborent tout de même les résultats d'analyse de données à l'échelle réelle issue du suivi réglementaire britannique qui contraint toute installation à quantifier les concentrations de *Cryptosporidium* à l'eau filtrée (Smeets *et al.* 2007). Cependant, le faible nombre de données paires ainsi que d'échantillons positifs disponibles dans le cadre de cette étude font en sorte que les résultats obtenus permettent uniquement de dégager des tendances

statistiques à l'égard de la relation entre la concentration d'oocystes et la performance du traitement conventionnel. Il apparaît donc nécessaire d'approfondir l'état des connaissances par rapport à l'effet de la concentration de protozoaires parasites sur la performance des procédés de filtration granulaire considérant l'importance accordée à ce procédé de traitement pour le contrôle du risque microbiologique, en particulier par rapport à *Cryptosporidium* en eaux froides.

Dans le même ordre d'idées, il est important de se pencher sur l'influence des variations de concentrations de kystes et d'oocystes sur la performance de la filtration granulaire tout en considérant la teneur en particules à l'eau brute. Étant donné que les pointes printanières de turbidité des eaux brutes provenant du fleuve Saint-Laurent sont principalement causées par des particules minérales (Gauthier *et al.* 2003), il est pertinent de s'intéresser à l'impact des concentrations de particules d'argile sur l'abattement de protozoaires parasites par filtration granulaire. Seules quelques études en laboratoire, qui traitent du cotransport de *Cryptosporidium* et de particules d'argile, ont été relevées dans la littérature scientifique. Spécifiquement, celles-ci ont été menées afin d'étudier l'impact de particules d'illite sur la rétention d'oocystes en milieu poreux (Park *et al.* 2012) et l'impact de particules de kaolinite sur l'attachement d'oocystes dans des réacteurs complètement mélangés (Gitis *et al.* 2002). Nonobstant la validité de ces recherches, ces conclusions sont issues de conditions expérimentales non représentatives des filtres granulaires d'installations alimentées avec des eaux de surface. Une validation à l'aide d'un montage plus représentatif du design et de l'opération de filtres rapides à l'échelle réelle s'avère donc nécessaire.

Finalement, pour ce qui est de l'impact du vieillissement de matériaux sur l'enlèvement de *Cryptosporidium* spp. par filtration granulaire, des études ont démontré que la présence de biofilm diminue la rétention d'oocystes. Ce phénomène a été répertorié tant en laboratoire (Dai & Hozalski 2002) que lors d'essais pilotes (Hijnen *et al.* 2010). Ces observations sont d'importance puisqu'elles contredisent une étude menée en laboratoire qui a répertorié que l'attachement de *Cryptosporidium* est accru par la présence de biofilm (Searcy *et al.* 2006b), mais aussi que les oocystes persistent dans des biofilms typiques de réseaux de distribution d'eau potable (Helmi *et al.* 2008). De surcroît, ces observations contredisent les résultats relevés dans la littérature sur des matériaux filtrants colonisés en ce qui a trait non seulement à la rétention de bactéries (Hijnen *et*

al. 2010, Liu *et al.* 2007, 2008) et de nanoparticules (Tripathi *et al.* 2012) mais aussi à l'enlèvement d'oocystes par filtration biologique (Amburgey *et al.* 2005). Pour terminer, la plupart des travaux mentionnés ont évalué l'impact de la prolifération de biofilm sur la performance de la filtration granulaire à l'aide d'un seul type de matériau filtrant. Or, les matériaux fréquemment utilisés en usine diffèrent en matière de forme, de rugosité, de capacité d'adsorption et de teneur en métaux. Ces derniers sont tous des paramètres qui ont pour effet d'influencer la capacité de colonisation des grains. De ce fait, il est impossible de statuer sur l'effet général du vieillissement sur l'efficacité d'enlèvement de *Cryptosporidium* en usine.

2.2 Objectifs

L'objectif général de ce projet d'études doctorales est de comprendre le rôle (i) du vieillissement des matériaux filtrants et (ii) de la nature des particules à l'eau brute sur l'enlèvement de protozoaires parasites par filtration granulaire. Plus précisément, l'objectif général de ce projet sera atteint par l'entremise des objectifs spécifiques suivants:

- 1) Étudier l'impact du type et des propriétés de surface de matériaux filtrants sur l'enlèvement de *Cryptosporidium* par filtration granulaire.
- 2) Caractériser l'enlèvement de microsphères (substitut de *Cryptosporidium*) par filtration directe sur sable non assistée chimiquement en fonction de la concentration et de la nature des particules à l'eau brute.
- 3) Évaluer si la performance du traitement conventionnel à l'échelle réelle est influencée par la turbidité, la teneur en particules ou la concentration en endospores de bactéries sporulantes aérobies (BSA) des eaux brutes.
- 4) Comparer les performances du traitement conventionnel de plusieurs installations à l'égard de l'abattement des BSA afin de déterminer s'il est pertinent d'utiliser des crédits d'enlèvement identiques pour chaque installation lors de l'analyse quantitative du risque microbien (QMRA).

- 5) Discuter de la pertinence d'utilisation de BSA à titre d'indicateur du traitement conventionnel en eaux chaudes compte tenu des enjeux reliés à leur recroissance possible dans les filtres granulaires.

La réalisation de ces objectifs devrait permettre de combler les lacunes observées dans la littérature scientifique en apportant les contributions suivantes:

- Une comparaison de l'effet du type de matériau et de son vieillissement sur la performance de la filtration granulaire pour l'enlèvement de *Cryptosporidium parvum*.
- Une évaluation de l'efficacité de l'enlèvement de protozoaires par filtration granulaire lors des périodes de pointes de contaminations, en présence ou non, d'une pointe de turbidité de nature minérale à l'eau brute.
- Une analyse et une identification des conditions dans lesquelles l'enlèvement de protozoaires est moindre et ne répond pas aux crédits octroyés par la réglementation.
- Une réflexion sur la pertinence de l'intégration de données historiques d'indicateurs de traitement afin de décrire la performance de procédés physico-chimiques dans le cadre de modèles d'analyse quantitative du risque microbien.
- Une discussion des limites d'utilisation des BSA à titre d'indicateur de traitement pour les procédés physico-chimiques. Plus précisément, une réflexion sur l'importance du biais méthodologique associé à la recroissance bactérienne dans les lits filtrants.

2.3 Hypothèses de recherche

La réalisation de ce projet de recherche repose sur les hypothèses de recherche suivantes:

- 1) Pour des filtres de dimensions et de granulométrie identiques, l'enlèvement de *Cryptosporidium* par filtration directe non assistée chimiquement diffère significativement ($p < 0,05$) en fonction du type de matériau filtrant utilisé.

Cette hypothèse peut être démontrée par une évaluation en parallèle de l'enlèvement de Cryptosporidium par filtration sur sable, sur anthracite et sur charbon actif en grain (CAG) en laboratoire.

- 2) Pour tous les types de matériaux filtrants, le développement de biofilm améliore significativement ($p < 0,05$) l'enlèvement de *Cryptosporidium* par filtration directe non assistée chimiquement.

Cette hypothèse peut être démontrée par une comparaison en laboratoire de l'enlèvement de Cryptosporidium obtenu sur des colonnes de filtration utilisant différents matériaux neufs ou colonisés (sable, anthracite et CAG).

- 3) L'enlèvement de microsphères par filtration directe sur sable non assistée chimiquement est réduit à la suite d'une hausse de la concentration de microsphères dosée à l'eau brute.

Cette hypothèse peut être validée en laboratoire par une comparaison de la performance ainsi que par une caractérisation des mécanismes d'enlèvement qui gouvernent la rétention de microsphères par filtration sur sable sous différentes concentrations de microsphères dosées à l'eau brute.

- 4) La performance d'enlèvement de microsphères par filtration directe sur sable non assistée chimiquement est significativement accrue à la suite d'une hausse de la concentration de particules de kaolinite à l'eau brute.

Cette hypothèse peut être validée en laboratoire en étudiant les mécanismes de rétention des microsphères au sein de filtres alimentés par des concentrations relatives variables de kaolinite et de microsphères.

- 5) Les crédits de performance accordés par la réglementation au traitement conventionnel sont inadéquats puisqu'ils sont octroyés de façon indépendante de la qualité de l'eau brute.

Cette hypothèse peut être démontrée par une analyse statistique de données historiques d'indicateurs de traitement quantifiés à l'échelle réelle afin de déterminer l'impact de la qualité de l'eau brute (turbidité, concentration microbienne) sur les performances des procédés de décantation, de filtration granulaire et du traitement conventionnel dans son ensemble.

- 6) L'usage de crédits d'enlèvement dans le cadre d'une analyse quantitative du risque microbien (QMRA) ne permet pas une description exacte de la performance du traitement conventionnel puisque ceux-ci ne tiennent pas compte de la performance propre au site.

D'abord, cette hypothèse peut être vérifiée par une quantification de la variabilité de performance inter-usine par l'entremise de données historiques d'indicateurs de traitement provenant d'installations détenant une filière de traitement conventionnel similaire. Ensuite, cette hypothèse peut aussi être validée par une comparaison de l'efficacité de traitement observée à la performance prédite par la réglementation, et ce, de façon propre à chaque site.

- 7) L'usage de BSA en eaux chaudes afin de décrire la performance du traitement conventionnel est pertinent puisque l'impact de la recroissance d'endospores bactériennes en usine est négligeable.

Cette hypothèse peut être vérifiée par une analyse statistique de données historiques de BSA à l'échelle réelle de façon à déterminer si la performance en eaux chaudes est moindre qu'en eaux froides.

2.4 Méthodologie

La démarche expérimentale de ce projet de recherche a eu lieu en trois volets. Le premier a permis d'évaluer la performance de la filtration granulaire en fonction des caractéristiques du filtre. Plus précisément, ce volet a permis de caractériser l'impact du vieillissement de matériaux filtrants sur l'enlèvement d'oocystes de *Cryptosporidium* par filtration granulaire. Le deuxième volet a permis d'étudier l'impact de la concentration de particules d'argile sur l'enlèvement de substituts de *Cryptosporidium* par filtration sur sable. En effet, ce volet a permis de distinguer les mécanismes d'enlèvement qui gouvernent la rétention de microsphères par filtration directe non assistée chimiquement en fonction de la concentration de particules d'argile ainsi qu'en fonction de la concentration de microsphères à l'affluent. Pour terminer, le troisième volet a permis d'identifier les paramètres qui gouvernent l'enlèvement de microorganismes par traitement conventionnel à l'échelle réelle. Ainsi, ce volet a permis de quantifier l'importance de la charge microbienne sur l'enlèvement à l'échelle réelle, mais aussi d'évaluer l'ampleur de la variabilité de performance entre plusieurs installations opérées en conditions optimales. Ces analyses ont été menées dans l'objectif de déterminer si l'intégration de données d'indicateurs de traitement dans les modèles de QMRA offrirait une meilleure description de la performance du traitement conventionnel que l'usage de crédits d'enlèvement fixe. Chacun des volets de cette démarche expérimentale a été l'objet d'un article soumis pour publication. Les prochains paragraphes résument la méthodologie de chacun de ces articles.

2.4.1 Étude de l'impact du vieillissement des matériaux sur l'enlèvement de *Cryptosporidium* par filtration granulaire (objectif spécifique 1)

Cette étape consiste à évaluer l'enlèvement d'oocystes de *Cryptosporidium* en fonction des caractéristiques du filtre, et ce, plus précisément en fonction du type ainsi que de l'âge des matériaux filtrants. Cette étude est la première à répertorier l'effet du vieillissement sur l'enlèvement de *Cryptosporidium parvum* à l'aide de trois différents matériaux filtrants testés dans les mêmes conditions expérimentales.

Des essais ont été réalisés à l'aide d'un montage pilote opéré au laboratoire du CREDEAU à l'École Polytechnique de Montréal. Les colonnes de filtration utilisées ont été conçues en respectant les critères de conception généralement utilisés lors de l'élaboration de montages à pilotes. C'est pourquoi des colonnes en polychlorure de vinyle clair (CPVC) d'un diamètre de 32 mm, soit 50 fois supérieur au diamètre effectif des grains, ont été sélectionnées afin de minimiser l'effet de paroi (Lang *et al.* 1993). De plus, une profondeur de 74 cm de matériau filtrant a été choisie afin de respecter un ratio hauteur des matériaux/diamètre effectif des grains (L / d_c) supérieur à 1000. Un schéma du montage est disponible en annexe (Figure A-1.1). Pour terminer, les colonnes de filtration ont été opérées à une vitesse de filtration de 5 m hr^{-1} . Ces deux derniers critères permettaient également de simuler les caractéristiques des filtres de l'installation d'Atwater de la Ville de Montréal (1 360 MLD).

Afin de valider l'impact du vieillissement sur la performance, des essais de filtration ont été menés avec des matériaux neufs et avec des matériaux usagés. À cet effet, des filtres monocouches à sable, à anthracite et à CAG, tous de granulométrie identique ($d_{10} = 630 \text{ } \mu\text{m}$, $d_{50} = 860 \text{ } \mu\text{m}$, $\text{CU} = 1.4$), ont été vieillis pour une période de dix-huit semaines. Les colonnes de filtration ont été alimentées avec de l'eau déchlorée provenant de l'usine Atwater (Montréal, Canada) amendée d'une solution riche en nutriments ($\text{C} = 1 \text{ mg C-acétate L}^{-1}$, ratio C: N: P de 100:10: 1) afin de favoriser la croissance bactérienne, soit le développement de biofilm en surface des matériaux filtrants. Parallèlement, une autre série de filtres à sable préchlorés ($2 \text{ mg Cl}_2 \text{ L}^{-1}$) ont été vieillis en absence de solution de nutriments afin de pouvoir compter sur un filtre témoin qui aurait le moins de biofilm possible. Pour chaque type de matériau, des essais de filtration ont été menés afin d'évaluer l'enlèvement de *Cryptosporidium*

parvum à l'aide de trois à quatre colonnes (réplicats) de matériaux neufs. Ces essais de filtration ont été répartis en été ainsi qu'en automne. De la même façon, pour chaque type de matériau ainsi que de protocole de vieillissement, des essais de filtration ont été menés en automne à l'aide de deux colonnes de matériaux usagés. Le tableau 3.1 résume le plan expérimental utilisé.

Les essais de filtration ont été menés à la température ambiante (20°C) avec une eau traitée déchlorée provenant de l'usine Atwater. Avant chaque essai, la colonne de filtration a été rétrolavée et ensuite lessivée à l'eau déchlorée afin de permettre le conditionnement des matériaux filtrants. Les oocystes de *Cryptosporidium parvum* (Waterborne, É.-U.), préalablement irradiés aux rayons UV (50 mJ cm⁻²) (Tetratech Inc., É.-U.), ont été dosés dans de l'eau déchlorée afin d'obtenir une concentration finale de 750 ± 250 oocystes mL⁻¹. Aucun ajout de coagulant n'a été fait, car il était visé de simuler les conditions d'opération de l'usine Atwater de la Ville de Montréal qui utilise la filtration directe non assistée chimiquement. L'injection d'oocystes a eu lieu sur une période équivalente à 18 volumes des pores (PVs) et fut ensuite suivie d'une élution avec une eau sans oocyste pour une période de 12 PVs. Des échantillons ont été prélevés à l'affluent et à l'effluent lors de l'injection d'oocystes ainsi que lors de l'élution de la colonne de filtration. Une fois l'essai terminé, chacune des colonnes a été carottée à différentes profondeurs. D'une part, ce carottage a permis de déterminer le profil de rétention d'oocystes, mais aussi de compléter un bilan de masse. D'autre part, ce carottage a permis le prélèvement d'échantillons dans le but de caractériser la biomasse présente en surface des matériaux usagés (après une période de 4 mois de vieillissement) en matière de concentrations de polysaccharides (DuBois *et al.* 1956) et de protéines (Pierce BCA Protein Assay kit, Thermo Scientific, USA). Pour terminer, le reste des matériaux filtrants ont été prélevés afin de permettre une caractérisation de l'impact du vieillissement par microscopie électronique à balayage, mais aussi pour quantifier leur teneur en métaux par une extraction à l'acide selon la méthode 3050B (United States Environmental Protection Agency (USEPA) 1996b) suivie d'une analyse par spectrométrie d'émission atomique à plasma à couplage inductif (ICP-MS) selon la méthode 6010B (United States Environmental Protection Agency (USEPA) 1996a). En dernier lieu, les échantillons ont été filtrés sur des membranes d'une porosité de 2 µm (Chemunex Inc., France). Les oocystes ont ensuite été marqués à l'isothiocyanate de fluorescéine conjugué à des anticorps monoclonaux (Easy stain, BTF Ltd., Australie), énumérés par cytométrie en phase solide (ScanRDI, AES

Chemunex Inc, France) (Stanfield *et al.* 2000) et confirmés par microscopie à 600X (BX60, Olympus Inc, Japon). Pour terminer, le taux de récupération et la précision de l'énumération des oocystes ont été évalués à l'aide de *colorseeds* (BTF Ltd., Australie).

L'analyse des résultats obtenus s'est faite en trois temps. Premièrement, l'enlèvement d'oocystes offert par chacune des colonnes de filtration a été calculé à l'aide de quatre échantillons pairés et prélevés lorsque le filtre était à l'équilibre. La performance moyenne des duplicatas de colonnes a ensuite été comparée aux autres conditions testées à l'aide de test de student ou d'ANOVA. Deuxièmement, les profils d'enlèvement observés ont été comparés aux profils d'enlèvement prédits par la théorie de filtration des colloïdes en fonction des conditions expérimentales étudiées. Finalement, la caractérisation des matériaux en terme de biomasse et de métaux a permis de mieux cibler les paramètres clés qui expliquent les variations de performance observées.

2.4.2 Évaluation de l'impact de la concentration et la nature de particules sur la performance de la filtration sur sable en laboratoire (objectif spécifique 2)

Cette étude a été réalisée à l'échelle laboratoire afin d'évaluer l'enlèvement de microsphères par filtration directe sur sable non assisté chimiquement pour des concentrations initiales variables de microsphères et de particules d'argiles. Des microsphères carboxylées (Polyscience Inc., USA) ont été utilisées à titre de substitut semi-quantitatif des oocystes de *Cryptosporidium* spp.. De plus, des particules de kaolinite (Hydrite® R grade, Phipps & BirdTM) ont été choisies afin d'imiter les particules d'argiles qui sont souvent associées aux pointes de turbidité dans les eaux de surfaces. Ces essais permettent d'étudier le co-transport de microsphères et de particules de kaolinite afin d'identifier les mécanismes qui gouvernent l'enlèvement de microsphères en fonction de la nature de la fraction dominante des particules injectées. L'originalité de ces essais tient également à l'évaluation de la performance de la filtration directe sur sable en absence de coagulation, lorsque ce procédé est exposé à une pointe de contamination microbienne par opposition à une pointe de turbidité à l'eau brute. En outre, aucun des travaux traitant de cette question en l'absence de coagulation n'a été mené à des vitesses de filtration ainsi qu'à l'aide de

matériaux filtrants représentatifs des filtres granulaires utilisés dans les installations traitant des eaux de surface. Pour ce faire, un montage de filtration en laboratoire a été construit afin de reproduire les filtres granulaires de l'usine Atwater (Montréal, Canada). Par conséquent, du sable d'un diamètre effectif de 630 μm et d'un coefficient d'uniformité de 1.4 (Témisca Inc., Canada) a été utilisé à titre de matériau filtrant. Les colonnes de filtration ont été mises au point tel que préalablement décrit dans la section 2.4.1 et ont été opérées à une vitesse de 5 m h^{-1} .

Dans un premier temps, l'enlèvement de microsphères pour des dosages de 10^2 microsphères mL^{-1} , 10^4 microsphères mL^{-1} , 10^6 microsphères mL^{-1} a été évalué. Ensuite, l'enlèvement de microsphères (10^2 microsphères mL^{-1}) a été évalué lorsque celles-ci sont simultanément dosées avec une solution de particules de kaolinite d'une concentration de 10^4 particules de kaolinite mL^{-1} et de 10^6 particules de kaolinite mL^{-1} . Les concentrations de particules ont été choisies afin de refléter les concentrations typiques recensées dans les eaux brutes (McTigue *et al.* 1998). Le plan expérimental a été complété en duplicata dans une eau synthétique imitant la minéralisation du fleuve Saint-Laurent. D'ailleurs, une eau synthétique a été favorisée par rapport à une eau naturelle afin de permettre la reproduction des essais. Le tableau 2.1 illustre le design expérimental de ces essais de filtration.

Tableau 2.1. Sommaire des concentrations de microsphères et de kaolinite testées dans le cadre des essais de filtration sur sable.

Essai	Concentration initiale (mL^{-1})		
	Microsphères	Particules de kaolinite	Charge particulaire
M1	10^2	0	10^2
M2	10^4	0	10^4
M3	10^6	0	10^6
K1	10^2	10^4	10^4
K2	10^2	10^6	10^6

Tableau tiré et traduit du chapitre 4

Avant le début des essais de filtration, un rétrolavage a été lancé après l'ajout de matériaux filtrants. Par la suite, afin de permettre un conditionnement des matériaux avant l'essai, la colonne de filtration a été lessivée avec de l'eau synthétique sur une période d'une heure. L'injection de la solution de microsphères et/ou de particules de kaolinite s'est déroulée sur une période équivalant à 20 PVs et fut suivie d'une période d'élution à l'eau synthétique sans microsphère et/ou particule de kaolinite d'une durée de 12 PVs. Lors des essais de filtration, un

échantillon composite a été collecté pour chaque PV. Une fois l'essai terminé, un carottage du lit filtrant a été fait afin de déterminer le profil d'enlèvement de microsphères en fonction de la profondeur. Les concentrations de microsphères ont ensuite été quantifiées par cytométrie en phase solide (ScanRDI, Chemunex, France) ainsi que confirmées par microscopie (BX-60, Olympus, Japon). Les profils de courbe de percée¹⁶ obtenus pour chacune des conditions testées ont été scrutés afin d'identifier les mécanismes d'enlèvement dominants, mais aussi pour permettre une comparaison statistique des performances observées. Pour terminer, les profils d'enlèvement observés ont été comparés aux profils d'enlèvement prédits par la théorie de filtration des colloïdes en fonction des conditions expérimentales étudiées.

2.4.3 Impact de la concentration microbienne et de la turbidité à l'eau brute sur l'enlèvement de bactéries sporulantes aérobies (BSA) : Analyse historique de sept usines québécoises (objectifs spécifiques 3, 4 et 5)

Ce troisième volet du plan expérimental a permis une évaluation de l'impact de la concentration microbienne ainsi que de la turbidité à l'eau brute sur la performance du traitement conventionnel à l'échelle réelle. Qui plus est, cette étude a permis une évaluation de la variabilité inter-usine de l'efficacité du traitement conventionnel pour des installations optimisées. Enfin, elle a permis une comparaison de la performance observée avec la performance prédite par les crédits d'enlèvements de protozoaires parasites octroyés par la réglementation. Cette étude se distingue des travaux antérieurs puisqu'elle fait usage à la fois de données de turbidité et d'indicateur de traitement (BSA) paires provenant de plusieurs installations à pleine échelle. Assurément, elle se décerne par le grand nombre de données disponibles pour cette analyse (jusqu'à 12 ans de données hebdomadaires).

Au total, sept installations ont participé à l'étude. Celles-ci ont été choisies parce qu'elles ont recours à une filière de traitement similaire. De plus, chacune des usines recensées avait préalablement évalué la performance du traitement conventionnel par l'entremise du même indicateur de traitement, c'est-à-dire les endospores de BSA. Conséquemment, toutes les

¹⁶ Traduction personnelle de «breakthrough curve»

installations avaient quantifié les concentrations d'endospores de BSA à l'eau brute et à l'eau filtrée. La majorité d'entre elles avaient aussi quantifié les concentrations d'endospores de BSA à l'eau décantée. Les données compilées ont été pairées par date afin de permettre l'évaluation de l'efficacité de traitement. La base de données a ensuite été complétée avec des données de température et de turbidité (e.g. eau brute, eau décantée et eau filtrée). Pour terminer, puisqu'il a été suggéré que les endospores de BSA peuvent croître dans les lits filtrants en eaux chaudes (Galofré *et al.* 2004), la base de données a été divisée en deux catégories, chacune représentant généralement six mois d'opération: eau froide ($\leq 5^{\circ}\text{C}$) et eau chaude ($> 5^{\circ}\text{C}$).

Afin de permettre la rencontre des objectifs spécifiques, trois différentes approches ont été utilisées. En premier lieu, une évaluation ponctuelle de l'enlèvement moyen d'endospores de BSA par usine a été calculée. Ensuite, l'enlèvement en fonction de la turbidité moyenne à l'eau brute, mais aussi en fonction de la concentration moyenne de BSA à l'affluent, a été analysé graphiquement. Cette approche a été adoptée afin de permettre une comparaison avec les résultats relevés dans la littérature scientifique. La deuxième approche utilisée visait à évaluer l'impact des concentrations de BSA à l'affluent sur la performance de la décantation, de la filtration granulaire et du traitement conventionnel. Spécifiquement, cette approche a permis d'évaluer l'enlèvement en fonction des concentrations naturelles de BSA observées aux prises d'eau de chacune des usines en comparant leurs performances sous des conditions de faibles concentrations de BSA ($< 25^{\text{ième}}$ centile) par rapport à celles obtenues sous des fortes concentrations de BSA ($> 75^{\text{ième}}$ centile). Pour ce faire, un test de Mann-Whitney (Statistica 10, StatSoft) a permis de comparer les deux conditions. Troisièmement, une approche plus robuste sur le plan statistique, soit un modèle de régression de type pas-à-pas (Statistica 10, StatSoft), a été utilisée afin d'analyser les données disponibles. Ces modèles de régression ont permis d'intégrer les données de turbidité ainsi que de température dans l'analyse de données. Finalement, afin de pouvoir statuer sur l'impact de la température sur l'usage de BSA à titre d'indicateur de traitement pour l'évaluation de la performance de procédés physico-chimiques, les conclusions tirées en eaux froides ont été comparées aux conclusions obtenues en eaux chaudes.

2.4.4 Sommaire des méthodologies mises en oeuvre

Une synthèse des méthodologies utilisées pour infirmer ou confirmer chacune des hypothèses de recherche posées dans le cadre de cette thèse est présentée dans le tableau 2.2.

Tableau 2.2. Sommaire de la démarche expérimentale de validation des hypothèses de recherche.

Hypothèses de recherche	Échelle expérimentale	Méthodologie	Résultats et conclusions
1. Pour des filtres de dimensions et de granulométrie identiques, l'enlèvement de <i>Cryptosporidium</i> par filtration directe non assistée chimiquement diffère significativement ($p < 0,05$) en fonction du type de matériau filtrant utilisé.	Laboratoire	Essais de filtration de <i>Cryptosporidium</i> menés de façon identique avec des matériaux neufs à l'aide d'un montage pilote. (i) Comparer les efficacités d'enlèvement en fonction du type de matériau (sable, anthracite et CAG).	(i) Observer une différence significative ($p < 0,05$) de performance entre les trois types de matériaux filtrants étudiés.
2. Pour tous les types de matériaux filtrants, le développement de biofilm améliore significativement ($p < 0,05$) l'enlèvement de <i>Cryptosporidium</i> par filtration directe non assistée chimiquement.	Laboratoire	Essais de filtration de <i>Cryptosporidium</i> menés de façon identique avec des matériaux neufs et usagés à l'aide d'un montage pilote. (i) Comparer les efficacités d'enlèvement en fonction du vieillissement. (ii) Comparer la biomasse en surface des grains en fonction du type de matériau.	(i) Observer une différence significative ($p < 0,05$) d'enlèvement offert par un même type de matériau en fonction de son âge. (ii) Observer une différence significative ($p < 0,05$) de biomasse entre les trois types de matériaux étudiés.
3. L'enlèvement de microsphères par filtration directe sur sable non assistée chimiquement est réduit à la suite d'une hausse de la concentration de microsphères dosée à l'eau brute.	Laboratoire	Essais pilotes en laboratoire permettant l'évaluation de l'enlèvement de microsphères par filtration sur sable en fonction de: (i) la concentration initiale de microsphères.	(i) Observer une différence significative de performance en fonction de la dose de microsphères injectée. (ii) Identification du mécanisme d'enlèvement impliqué.

Tableau 2.2. Sommaire de la démarche expérimentale de validation des hypothèses de recherche (suite).

Hypothèses de recherche	Échelle expérimentale	Méthodologie	Résultats et conclusions
4. La performance d'enlèvement de microsphères par filtration directe sur sable non assistée chimiquement est significativement accrue à la suite d'une hausse de la concentration de particules de kaolinite à l'eau brute.	Laboratoire	Essais pilotes en laboratoire permettant l'évaluation de l'enlèvement de microsphères par filtration sur sable en fonction de: (i) la concentration initiale de particules de kaolinite.	(i) Observer une différence significative d'enlèvement de microsphères pour des concentrations de particules d'argile équivalentes. (ii) Identification des mécanismes d'enlèvement impliqués.
5. Les crédits de performance accordés par la réglementation au traitement conventionnel sont inadéquats puisqu'ils sont octroyés de façon indépendante de la qualité de l'eau brute.	Réelle	Analyse statistique d'une base de données historiques d'indicateurs de traitement (BSA) afin d'évaluer: (i) l'impact de la concentration de BSA à l'affluent (ii) l'impact de la turbidité à l'eau brute.	(i) Une hausse de la concentration de BSA à l'eau brute cause une amélioration de la performance. (ii) Une hausse de la turbidité à l'eau brute cause une augmentation de l'efficacité de traitement.
6. L'usage de crédits d'enlèvement dans le cadre d'analyse quantitative du risque microbien (QMRA) ne permet pas une description exacte de la performance du traitement conventionnel puisque ceux-ci ne tiennent pas compte de la performance propre au site.	Réelle	Analyse statistique de base de données historiques de BSA provenant de six usines similaires en matière de conception et d'opération par l'entremise de modèle de régression de type pas à pas.	Observer une contribution significative de la variable catégorique nommée «usine» au modèle de régression qui décrit les concentrations de BSA à l'eau filtrée.

Tableau 2.2. Sommaire de la démarche expérimentale de validation des hypothèses de recherche (suite).

Hypothèses de recherche	Échelle expérimentale	Méthodologie	Résultats et conclusions
7. L'usage de BSA en eaux chaudes afin de décrire la performance du traitement conventionnel est pertinent puisque l'impact de la recroissance d'endospores bactériennes en usine est négligeable.	Réelle	Analyse statistique de base de données historiques de BSA provenant de six usines similaires en matière de conception et d'opération par l'entremise de modèle de régression de type pas à pas en eaux chaudes et en eaux froides.	Observer un faible impact de température de l'eau sur les prédictions du modèle de régression tant en eaux chaudes qu'en eaux froides.

CHAPITRE 3 PUBLICATION # 1: IMPACT OF MEDIA AGING ON THE REMOVAL OF *CRYPTOSPORIDIUM* IN GRANULAR MEDIA FILTERS

Ce chapitre présente les résultats d'essais de filtration visant à étudier l'impact du type de matériaux filtration ainsi que du vieillissement de ceux-ci sur l'enlèvement de *Cryptosporidium parvum*. Les résultats de ces essais expérimentaux ont permis une comparaison de la performance sous des conditions d'opération identiques. Cet article a été publié dans le *Journal of Environmental Engineering* en mai 2013.

IMPACT OF MEDIA AGING ON THE REMOVAL OF *CRYPTOSPORIDIUM* IN GRANULAR MEDIA FILTERS

Isabelle Papineau^{1*}, Nathalie Tufenkji², Pierre Servais³ and Benoit Barbeau¹

¹ Industrial NSERC Chair on Drinking Water, Department of Civil, Geological and Mining Engineering, École Polytechnique de Montréal, P.O. Box 6079, Downtown Station, Montréal, Québec, Canada, H3C 3A7.

² Department of Chemical Engineering, McGill University, Montréal, Québec, Canada, H3A 2B2.

³ Écologie des Systèmes Aquatiques, Université Libre de Bruxelles Campus de la Plaine, C.P. 221, Boulevard du Triomphe, Bruxelles 1050, Belgique.

* Corresponding author: tel.: 1.514.340.4711 x 3711; fax: 1.514.340.5918;
e-mail: isabelle.papineau@polymtl.ca

Abstract: A study was conducted to assess the impact of media aging on *Cryptosporidium parvum* transport and retention in granular filters. Column experiments were conducted with sand, anthracite and granular activated carbon (GAC) filters. All columns possessed an identical filter design and grain size distribution. Oocyst removal was evaluated with both new and aged media. The variation of performance amongst new media was attributed to the shape of the tested granular media and to the concentration of extractable metals on the surface of collector grains. Media aging significantly increased the treatment performance of sand (26%) and of GAC (31%) but had no influence on the performance of anthracite. This enhanced performance of aged media correlated well with the extent of biofilm development. The best removal performance was observed with aged GAC ($71 \pm 2\%$) which supported the highest amount of biomass according to polysaccharide and protein measurements. The results of this investigation are of particular interest as they suggest that media aging increases the removal of protozoan parasites in full-scale granular filters.

3.1 Introduction

Removal of *Cryptosporidium spp.* in granular media filtration has been the topic of numerous investigations as this process is a key barrier for drinking water treatment plants without UV irradiation. Although the impact of coagulation (Dugan *et al.* 2001, Huck *et al.* 2002b, Ongerth & Pecoraro 1995, Patania *et al.* 1995), filter design (Patania *et al.* 1995, Swertfeger *et al.* 1999) and filter operation (Emelko *et al.* 2003, Huck *et al.* 2002b, Nieminski & Ongerth 1995, Patania *et al.* 1995) have been given important attention, the impact of media aging on oocyst removal has received significantly less consideration. An earlier study has shown that biofilm development can hinder *Cryptosporidium* removal on glass beads (Dai & Hozalski 2002). Similarly, another study revealed greater oocyst removal using fresh granular activated carbon (GAC) filters versus loaded GAC filters (Hijnen *et al.* 2010). Nevertheless, these studies contradict what has been reported in the literature with regards to the removal of bacteria (Hijnen *et al.* 2010, Liu *et al.* 2007, 2008), non-biological particles (Tripathi *et al.* 2012) and oocysts (Amburgey *et al.* 2005). In fact, oocysts can attach to biofilm-coated surfaces in greater numbers than on abiotic surfaces (glass without biofilm). This enhanced attachment has been associated to biofilm roughness and to the composition of extracellular polymeric substances (EPS) (Searcy *et al.* 2006b). Moreover,

it has been documented in controlled laboratory experiments that oocysts are able to attach and persist within drinking water biofilms (Helmi *et al.* 2008). A better understanding of the biofilm EPS composition present on the surface of aged granular media might help explain the observed discrepancies with regards to filtration performance.

As most investigations assessing the impact of biofilm development on *C. parvum* removal by granular filtration were conducted with only one media type, its influence remains largely unknown. This is of importance as various porous media differ in terms of shape, roughness, metal oxides content, adsorption and capacity to be colonized. Firstly, it is known that the shape of grains influences the performance of granular filtration as different removal mechanisms come into play. For instance, physical exclusion by straining might be of greater importance when angular media is used (Tufenkji *et al.* 2004). Secondly, it has been documented that metal oxides on the surface of grains enhance the removal of *C. parvum* oocysts (Abudalo *et al.* 2005, Hijnen *et al.* 2005). Thirdly, as porous media age, natural organic matter (NOM) will adsorb on the surface of grains and influence filter performance. Adsorption of humic acids onto collectors hinders removal as it can lead to increased electrostatic and steric repulsion between particles and collectors (Franchi & O'Melia 2003, Pelley & Tufenkji 2008). Furthermore, the adsorption capacity of some porous media can enhance their capacity to be colonized. For example, GAC which is commonly used in the water industry to adsorb NOM particularly favors biofilm development (Magic-Knezev & van der Kooij 2004, Prévost *et al.* 2005, Wang *et al.* 1995, Zhu *et al.* 2010). For all of the reasons stated above, we hypothesize that different types of granular media will not age in a similar fashion and, consequently, differences ought to be expected with respect to oocyst removal.

The objective of this research is to investigate the impact of new and aged media on *Cryptosporidium parvum* transport and retention profiles in drinking water granular filters. The scientific hypothesis of this research is that media aging, defined as increased biofilm development on porous media, enhances *Cryptosporidium* retention in granular filters. This was assessed with parallel experiments using identical sand, anthracite and GAC filters. Such increased knowledge is of use to the water industry and regulators as it supports backwashing strategies and contributes more knowledge for quantitative microbial risk assessment (QMRA) calculations.

3.2 Materials and methods

3.2.1 Transport experiments

Transport experiments were performed in monomedia filters (bed depth of 74 cm) in PVC columns (inner diameter of 32 mm) at a filtration rate of 5 m h⁻¹. The experimental design is summarized in Table 3.1. All experiments were conducted with unchlorinated tap water from the St-Lawrence River, stored at room temperature, which had the following characteristics: a temperature of 20.4 ± 0.5°C, a pH of 8.3 ± 0.2, an alkalinity of 85 ± 2 mg CaCO₃ L⁻¹ and a conductivity of 300 ± 6 µS cm⁻¹ (Table 3.2). Prior to loading columns with new media (fresh media from the supplier), the grains were soaked in deionized water for 72 hours. Columns were then backwashed to allow a 40 % bed expansion and flushed overnight with an oocyst free influent solution to precondition the media to the water of the St-Lawrence River (no nutrient enrichment). Prior to transport experiments, *C. parvum* stock solution was vortexed, diluted in influent water and agitated for 30 minutes with a stir bar to allow the conditioning (acclimation) of oocysts. Oocyst injection was conducted for 18 pore volumes (PVs) at a concentration of 750 ± 250 oocysts mL⁻¹. Subsequently, the column was eluted for 12 PVs with an oocyst free influent solution. Samples of the column influent were collected at 0, 9, 11, 13, 15, 17 and 30 PVs. Column effluent samples were collected at every PV. As the chosen sand, anthracite and GAC differ in terms of porosity, oocyst injection, filter elution and sampling protocols used a pore volume approach rather than the traditional time based approach in order to normalize contact times. An empty bed pore volume is defined as the volume occupied by the solution within the filter bed. In this study, the time equivalents of a PV are the following: 210 s (sand), 221 s (anthracite), 274 s (GAC).

Table 3.1. Experimental design (number of transport experiments¹).

Media Type	Media Aging Condition		Aged with nutrient solution ² (18 weeks)	Aged with pre-chlorination ³ without nutrient solution (18 weeks) ⁴
	New (0 weeks)			
	Summer	Fall		
Sand	1	2	2	2
Anthracite	1	2	2	---
GAC	1	1	2	---

¹- All transport experiments (including replicates) were conducted with different filters.

²- Nutrient solution: 1 mg C L⁻¹: 0.1 mg N L⁻¹: 0.01 mg P L⁻¹.

³- Pre-chlorination: 2 mg Cl₂ L⁻¹ (free chlorine).

⁴- Transport experiments with aged media were all conducted during fall.

Table 3.2. Water quality of influent water.

Parameter	Summer (Mean ± SD)	Fall (Mean ± SD)
pH	8.4 ± 0.1	8.3 ± 0.2
Alkalinity (mg CaCO ₃ L ⁻¹)	87.0 ± 1.6	84.6 ± 2.0
Conductivity (µS cm ⁻¹)	303.2 ± 4.8	299.8 ± 5.8
Total organic carbon (mg L ⁻¹)	1.89 ± 0.16	2.46 ± 0.26
Total hardness (mg CaCO ₃ L ⁻¹)	117 ± 1.0	117 ± 4.6
Calcium (mg L ⁻¹)	32.9 ± 0.3	32.9 ± 1.0
Magnesium (mg L ⁻¹)	8.5 ± 0.2	8.5 ± 0.7

3.2.2 Porous media

Silica sand (Temisca Inc., Canada), anthracite (Terratech Inc., Canada) and GAC (Picabiol, H120-3D, PICA, France) were used as porous media for transport experiments. The size distribution of sand grains was assessed by sieving experiments (n=5) using a Ro-Tap Sieve Shaker (W.S. Tyler, USA). Identical size distributions were then reproduced for anthracite and GAC. All media possessed an effective size (d_{10}) of 650 µm, median size (d_{50}) of 860 µm and a uniformity coefficient of 1.4. Density and porosity of sand (2.53 g cm⁻³; 0.35), of anthracite (1.49 g cm⁻³; 0.40) and of GAC (dry 0.39 g cm⁻³, wet 1.25 g cm⁻³; 0.45) were determined by gravimetric methods.

3.2.3 Media aging

Media aging results from media ripening and/or a modification of media surface properties due to abiotic factors (e.g. metal deposition) and/or biofilm development. In this study, the experimental design was conceived to assess the impact of biofilm development on oocyst removal by granular filtration. For each granular medium investigated, two replicate monomedia filters were fed during 18 weeks at a superficial velocity of 5 m h^{-1} with unchlorinated tap water from the St-Lawrence River at a temperature of $20.4 \pm 0.5^\circ\text{C}$. Biofilm growth on the filter media was promoted by amending the influent water with a nutrient solution composed of sodium acetate (1 mg C L^{-1}), NH_4Cl (0.1 mg N L^{-1}) and K_2HPO_4 (0.01 mg P L^{-1}) during 18 weeks. One set of replicate sand columns was not amended with nutrients but instead chlorinated at $2 \text{ mg Cl}_2 \text{ L}^{-1}$ (as free chlorine) throughout the same period to allow media aging under unfavorable conditions for biofilm development.

3.2.4 Media characterization

Metals on new and aged media were extracted according to Method 3050B (United States Environmental Protection Agency (USEPA) 1996b) and analyzed by inductively coupled plasma atomic emission spectrometry (ICP-AES) according to Method 6010B (United States Environmental Protection Agency (USEPA) 1996a). Media grains were also imaged with a scanning electron microscope (SEM) (JSM 840A, JEOL) to assess the impact of aging on their shape and structure.

Spatial distribution of the biomass was assessed by core sampling the filter beds at various depths. Biofilm constituents such as polysaccharides and proteins were quantified to better understand the role of biofilm from a biochemical perspective. Samples were placed in a centrifuge tube containing sterile phosphate buffered water. Polysaccharides and proteins were extracted from the filter media by formaldehyde (36.5 %, 4°C , 1 h) followed by NaOH (1N, 4°C , 3 h) (Liu & Fang 2002). The polysaccharide and protein suspension was purified by high-speed centrifugation ($12,000 g$, 15 minutes, 4°C). The supernatant was filtered through a $0.45 \mu\text{m}$ pore-size membrane, placed in sterilized tubes and stored at -18°C . Extracted polysaccharides were quantified by the phenol-sulphuric acid method (DuBois *et al.* 1956) with

D-glucose as a standard. Total proteins were quantified by colorimetric detection based on bicinchoninic acid (Pierce BCA Protein Assay kit, Thermo Scientific, USA) with bovine serum albumin as a standard.

3.2.5 *Cryptosporidium* oocysts

Cryptosporidium parvum oocysts, Iowa isolate (bovine origin) were purchased from Waterborne Inc., USA. The oocysts were purified by the supplier using a sucrose and Percoll density gradient and placed in 1X phosphate buffered saline (PBS) with antibiotics (penicillin, streptomycin, gentamicin, amphotericin B) and 0.01 % Tween 20. The oocysts were irradiated by low pressure UV lamps at a dose of 50 mJ cm⁻² by Tetrattech Inc., USA. The stock solution was diluted in sterile 1X PBS to a concentration of 6.0 x 10⁵ oocysts mL⁻¹ and stored in the dark at 4°C.

The electrophoretic mobility of a suspension of 10⁶ oocysts mL⁻¹ in tap water at 20°C was measured using a Zetasizer Nano (Malvern Instruments Ltd., UK). Electrophoretic mobilities were converted to zeta potentials using the Smoluchowski equation (Hunter 2001). The calculated zeta potential was found to be -6.5 ± 1.7 mV.

3.2.6 *Cryptosporidium* enumeration

Samples of suspended oocysts were filtered onto a 2 µm pore-size membrane (ChemFilter CB 2.0, AES Chemunex Inc., France). Oocysts were stained with fluorescein isothiocyanate (FITC) labeled monoclonal antibodies (Easy stain, BTF Ltd., Australia). Each membrane was placed on 100 µL of labeling solution and incubated at 37°C for an hour. Oocysts were enumerated by laser scanning cytometry (ScanRDI, AES Chemunex Inc., France) (Stanfield *et al.* 2000) and confirmed by a microscopic examination at a magnification of 600× (BX 60, Olympus Inc., Japan). Colorseeds (BTF Ltd., Australia) were spiked as described by the supplier in an oocyst free sample (influent or effluent) to evaluate the recovery and precision of the enumeration method for every media type and age.

3.2.7 Assessment of retained oocysts and mass balance calculations

After deloading (elution with an oocyst free influent solution) (i.e., 30 PVs), the spatial distribution of oocysts inside the filter bed was assessed by core sampling at different depths. The

extraction protocols used to detach oocysts from the filter media were inspired by Hijnen *et al.* 2010 and were optimized for each media type in order to maximize the number of enumerated oocysts (based on enumeration). Sand samples were treated successively by hand shaking (2 min.), vortex mixing (2 min.) and low intensity sonication in a sonication bath (2 min.). Anthracite samples were treated by hand shaking (2 min.) followed by vortex mixing (2 min.). As for GAC samples, they were only treated by hand shaking (2 min.) as further vortexing or sonication reduced recovery due to the formation of GAC fines. Once the extraction protocol was completed, the supernatant was immediately removed and placed in a sterilized tube for oocyst enumeration. To evaluate the recovery of the retained oocysts, a mass balance was calculated as described below:

$$N_{influent} = N_{effluent} + N_{filter\ bed} = t\bar{C}_0Q \quad (\text{Equation 3.1})$$

$$N_{effluent} = \sum_{i=1}^{30} V_{PV} \left(\frac{C_i + C_{i+1}}{2} \right) \quad (\text{Equation 3.2})$$

$$N_{filter\ bed} = \left(0.05 S_{0.05} + 0.025 \left(\frac{S_{0.05} + S_{0.075}}{2} \right) + 0.125 \left(\frac{S_{0.075} + S_{0.2}}{2} \right) + 0.3 \left(\frac{S_{0.2} + S_{0.5}}{2} \right) + 0.25 \left(\frac{S_{0.5} + S_{0.75}}{2} \right) + 0.25 S_{0.75} \right) \times M_t \quad (\text{Equation 3.3})$$

Where N is the number of *Cryptosporidium* oocysts, t the duration of continuous oocyst injection (min), C_0 the mean influent concentration of suspended oocysts (oocysts mL⁻¹), Q the flow rate (mL min⁻¹), V_{PV} the volume of water per PV (mL), C_i the effluent concentration of suspended oocysts at pore volume i (oocysts mL⁻¹), S the number of oocysts per gram of dry media at a given fractional depth, L the total column length (cm) and M_t the total mass of dry media contained in the column (g). The recovery of the extraction protocol (%) was calculated as described below:

$$Recovery_{filter\ bed} = \frac{N_{filter\ bed}}{\left(\frac{N_{influent}}{Recovery_{influent}} - \frac{N_{effluent}}{Recovery_{effluent}} \right)} \times 100 \quad (\text{Equation 3.4})$$

where, the recovery of the oocyst enumeration method in both influent and effluent waters were assessed using colorseedsTM. Here, it was hypothesized that oocyst removal due to predation by higher organisms was negligible due to the short duration of the transport experiments.

3.2.8 Calculation of retention profiles

The profile of retained oocysts, $S(x)$, as described by the classical colloid filtration theory (CFT) can be estimated as follows (Yao *et al.* 1971):

$$S(x) = \frac{t_0 \theta k_d C_0}{\rho_b} \exp\left(\frac{-k_d}{v} x\right) \quad (\text{Equation 3.5})$$

where t_0 is the duration of continuous oocyst injection (s), θ the bed porosity (unitless), k_d the particle deposition rate coefficient (sec^{-1}), C_0 the influent oocyst concentration (oocyst mL^{-1}), ρ_b the media bulk density (g cm^{-3}), v the fluid approach velocity (cm s^{-1}) and x the column depth (cm). The oocyst retention profiles ($S(x)$) were calculated for each experiment.

3.2.9 Statistical analysis

For each replicate column, removals were calculated using four paired influent/effluent samples at steady state. For one media condition, mean performance was assessed by pooling paired sample from replicate columns. Unless otherwise noted, paired t-test or ANOVA analysis was conducted on oocyst removal (expressed as percentage) using Statistica 9.0 (Statsoft, USA). Removals in percentage rather than log removals were selected for the statistical analysis as log removal residuals did not exhibit a normal distribution as opposed to removal residuals expressed in percentage.

3.3 Results

3.3.1 Seasonal performance of new media

Initially, the experimental plan was scheduled to be completed over two seasons: summer and fall. However, a seasonal variation of removal efficiencies was observed between transport experiments conducted with new media during these two seasons (Figure 3.1). Oocyst removal was significantly lower during fall than during summer ($p < 0.05$). In summer, sand had the poorest performance ($54 \pm 4\%$) while GAC offered the greatest oocyst removal ($89 \pm 1\%$). During fall, sand also offered the lowest performance ($p < 0.05$) of the tested media while similar removal efficiencies were observed for anthracite and GAC ($p = 0.11$).

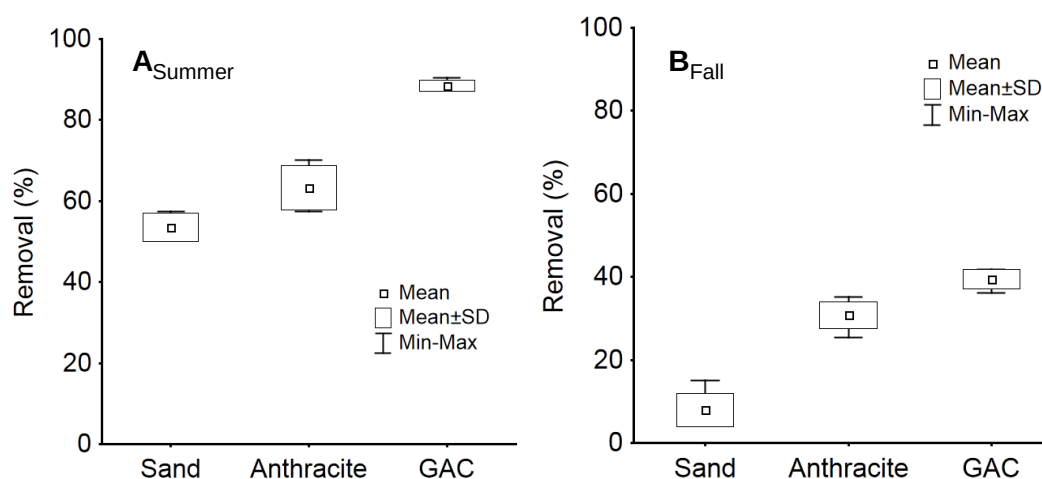


Figure 3.1: Seasonal variability of *Cryptosporidium* removal (%) by new media in summer (A) and fall (B).

Seasonal water quality parameters were assessed in order to evaluate their potential contribution to this variability (Table 3.2). Total organic carbon (TOC) proved to be the only parameter that significantly differed between both seasons amongst the evaluated parameters. Because experiments with aged media were conducted during the fall, the comparison of performance between new and aged media (presented in Figure 3.2) was done with data obtained during the same season.

3.3.2 Impact of media aging on oocyst removal

Media aging significantly improved the performance of sand and GAC ($p < 0.05$) but had no impact on the performance of anthracite ($p = 0.81$) (Figure 3.2). Media aging in the presence of pre-chlorination also significantly improved ($p < 0.05$) the performance of sand columns although significantly less than when aged in absence of pre-chlorination ($p < 0.05$). Furthermore, the performance of aged sand and aged anthracite columns did not differ ($p = 0.22$). In contrast, aged GAC proved to be the most efficient of all tested conditions for the removal of *Cryptosporidium* oocysts ($71 \pm 2\%$). Finally, as portrayed by the breakthrough curves (Figure 3.3), all experiments reached a plateau and were conducted at steady state.

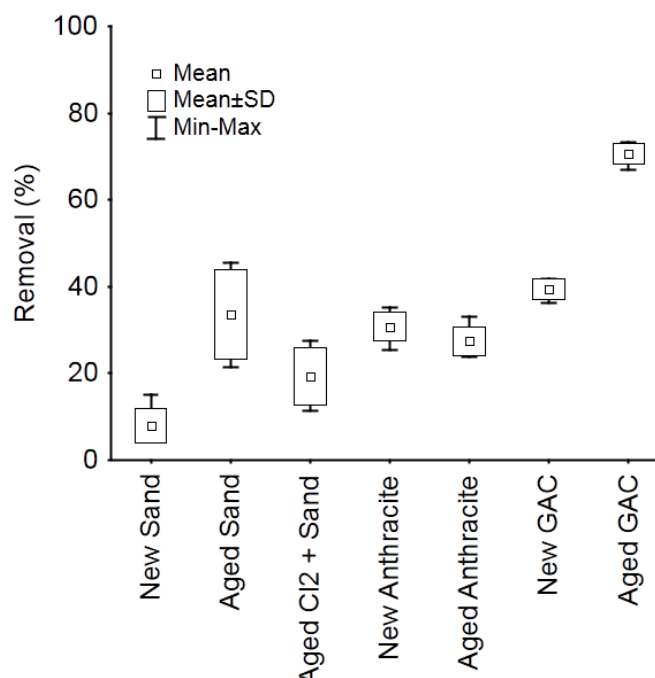


Figure 3.2: Comparison of *Cryptosporidium* removals (%) by new and aged media in fall.

3.3.3 Mass balance of oocysts

Mass balance calculations (Table 3.3) demonstrate that the established extraction protocol to detach oocysts from collectors was suitable for anthracite (87-92 %) and new GAC (90%). As for sand, the extraction procedure caused an overestimation of the attached oocysts for all cases (> 100%). This overestimation can be explained by the low number of retained oocysts by sand filters as well as the total volume of extracted granular media (1.2 ± 0.5 % of the filter bed) used to evaluate the number of retained oocysts within the filter bed. These experimental conditions resulted in greater calculation error and consequently to an overestimation of the number of oocysts retained within the filter bed of sand filters. Lastly, the protocol used to detach oocysts from GAC grains offered the lowest recovery when used on aged media (36 %). The recoveries of all tested extraction protocols were higher when used on new media compared to aged media.

3.3.4 Retention profiles

Measured oocyst retention profiles (Figure 3.4) demonstrate that a greater portion of oocysts was retained in the top layer of the filter bed (near the inlet). Namely, oocyst retention in the top layer

(15 cm) of the filter bed, expressed in percentage of the total retention, occurred to a greater extent in GAC columns (new 48 %; aged 56 %) than in sand (new 35 %; aged 39 %) and anthracite columns (new 36 %; aged 39 %). Furthermore, after corrections for the recovery of extraction protocols, the oocyst concentrations in the upper portion of aged sand, anthracite and new GAC filters exceeded predictions based on the classical CFT. Finally, sieving experiments confirmed that subsequent to backwash, smaller grains accumulated in the top layer of the filter (Figure A-2.1, Supplemental Data). Hence, factors not considered in the classical CFT, such as grain size heterogeneity may also be influencing the oocyst retention behavior. This would explain the notable variation between the experimental measurements and the retained oocyst profiles predicted by colloid filtration theory (in Figure 3.4).

3.3.5 Metal oxides

The total concentration of extracted metals (Table 3.4) differed between media types, but independently of their age ($p < 0.05$). Sand possessed the least amount of extractable metals. Anthracite possessed the greatest concentrations of aluminum and iron and GAC had the greatest concentration of total extractable metals due to its remarkably high calcium concentration. Media aging had no impact on the sum of extractable metals of sand ($p = 0.62$) and of anthracite ($p = 0.32$). Moreover, no differences were observed between aged sand and aged pre-chlorinated sand ($p = 0.97$). In contrast, media aging slightly increased (13 %) the total concentration of extractable metals for GAC ($p < 0.05$).

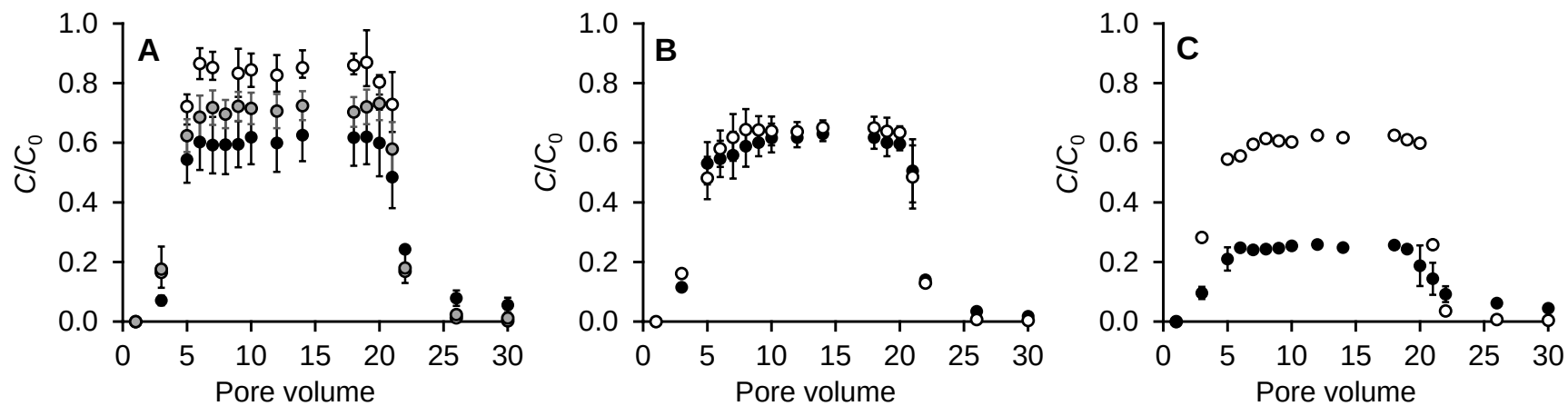


Figure 3.3: Breakthrough curves of new media (open symbols), aged media (solid black symbols) and pre-chlorinated aged media (solid grey symbols) in sand (A), anthracite (B) and GAC (C) columns. Error bars represent minimum and maximum value.

Table 3.3. Mass balance of oocysts calculated with breakthrough curves and retention profiles (fall).

Media	Mass balance			Recovery (R^1)		
	Effluent ²	Filter bed ³	Explained ⁴	Influent	Effluent	Filter bed ⁵
New Sand	97 %	17 %	113 %	98 %	87 %	512 %
Aged Sand	70 %	54 %	124 %	98 %	91 %	173 %
Aged Sand + Cl ₂	83 %	19 %	102 %	94 %	83 %	118 %
New Anthracite	69 %	23 %	92 %	96 %	90 %	75 %
Aged Anthracite	72 %	15 %	87 %	96 %	83 %	54 %
New GAC	55 %	35 %	90 %	95 %	97 %	79 %
Aged GAC	29 %	25 %	55 %	96 %	84 %	36 %

¹⁻ R-Recovery of the enumeration method assessed with colorseedsTM.

²⁻ Calculated using Eq. (1) adjusted with $R_{influent}$ and Eq. (2) adjusted with $R_{effluent}$.

³⁻ Calculated using Eq. (1) adjusted with $R_{influent}$ and Eq. (3).

⁴⁻ Sum of % effluent and % filter bed.

⁵⁻ Calculated using Eq. (4).

Table 3.4. Mass balance of oocysts calculated with breakthrough curves and retention profiles (fall).

Media	Mass balance			Recovery (R ¹)		
	Effluent ²	Filter bed ³	Explained ⁴	Influent	Effluent	Filter bed ⁵
New Sand	97 %	17 %	113 %	98 %	87 %	512 %
Aged Sand	70 %	54 %	124 %	98 %	91 %	173 %
Aged Sand + Cl ₂	83 %	19 %	102 %	94 %	83 %	118 %
New Anthracite	69 %	23 %	92 %	96 %	90 %	75 %
Aged Anthracite	72 %	15 %	87 %	96 %	83 %	54 %
New GAC	55 %	35 %	90 %	95 %	97 %	79 %
Aged GAC	29 %	25 %	55 %	96 %	84 %	36 %

¹- R-Recovery of the enumeration method assessed with colorseedsTM.

²- Calculated using Eq. (1) adjusted with R_{influent} and Eq. (2) adjusted with R_{effluent}.

³- Calculated using Eq. (1) adjusted with R_{influent} and Eq. (3).

⁴- Sum of % effluent and % filter bed.

⁵- Calculated using Eq. (4).

Table 3.5. Concentration of extracted metals per unit of volume of new and aged media.

Element (mg cm ⁻³ *) (mean ± SD)	Sand			Anthracite		GAC	
	New	Aged	Aged + Cl ₂	New	Aged	New	Aged
Al	0.08 ± 0.01	0.07 ± 0.01	0.09 ± 0.02	0.88 ± 0.03	1.02 ± 0.12	0.06 ± 0.00	0.16 ± 0.05
Ca	0.35 ± 0.13	0.44 ± 0.22	0.40 ± 0.07	0.25 ± 0.06	0.36 ± 0.04	15.75 ± 1.2	18.1 ± 0.67
Cu	0.01 ± 0.00	0.02 ± 0.00	0.03 ± 0.00	0.04 ± 0.00	0.12 ± 0.00	0.11 ± 0.01	0.69 ± 0.28
Fe	0.81 ± 0.52	0.26 ± 0.27	0.29 ± 0.17	2.34 ± 0.27	2.71 ± 0.11	0.07 ± 0.01	0.12 ± 0.02
Mg	0.18 ± 0.06	0.08 ± 0.04	0.05 ± 0.03	0.13 ± 0.01	0.18 ± 0.01	3.86 ± 0.23	3.26 ± 0.40
Mn	0.002 ± 0.001	0.001 ± 0.001	0.005 ± 0.001	0.02 ± 0.00	0.01 ± 0.00	0.02 ± 0.00	0.01 ± 0.01
Zn	0.004 ± 0.002	0.003 ± 0.000	0.004 ± 0.000	0.01 ± 0.00	0.02 ± 0.00	0.01 ± 0.00	0.09 ± 0.04
Sum	1.43 ± 0.37	0.86 ± 0.30	0.87 ± 0.21	3.67 ± 0.35	4.42 ± 0.26	19.9 ± 1.4	22.5 ± 0.72

*Using wet density

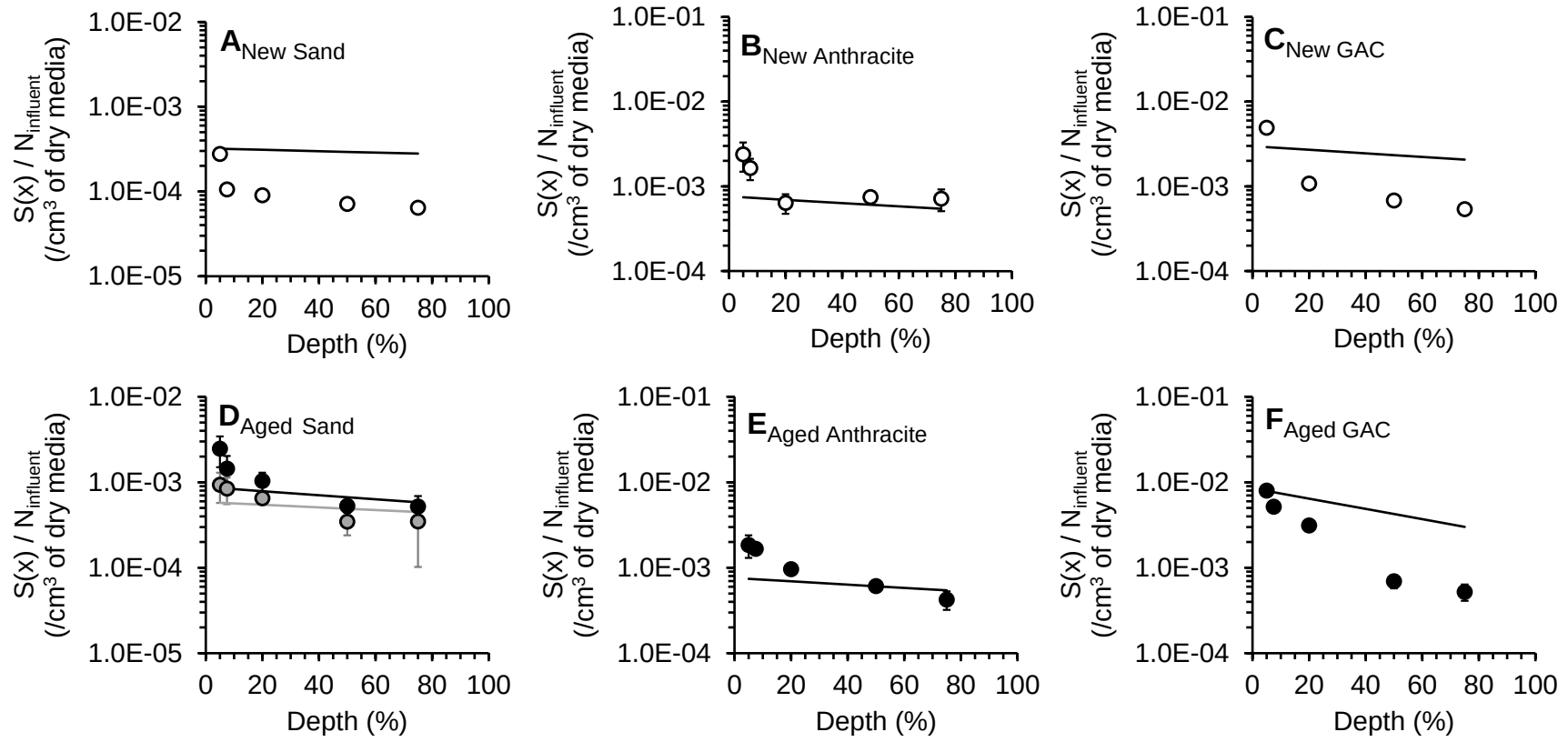


Figure 3.4: Measured retained oocyst concentration profiles of new media (open symbols), aged media (solid black symbols) and pre-chlorinated aged media (solid grey symbols) in sand (A, D), anthracite (B, E) and GAC (C, F) columns corrected for the recovery of extraction protocols of every tested condition. Bold lines represent predictions based on classical CFT. Error bars represent minimum and maximum values.

3.3.6 Biofilm development

Significant differences in biofilm biomass were observed between GAC and other tested media. Aged GAC supported the highest amount of biomass whereas no differences were observed between aged sand and aged anthracite. In addition, distribution profiles (Figure 3.5) demonstrate that both polysaccharide (PS) and protein (P) concentrations were more abundant in the upper portion of the filter bed (near the inlet). The two EPS measurements (PS and P), were highly correlated ($r = 0.96$). The magnitude biofilm development observed in this investigation was validated with full-scale data. The polysaccharide and protein measurements in the upper portion of the GAC filter bed proved to be in the same order of magnitude than to those assessed in full-scale GAC filters ($PS_{\text{pilot}}: 2 \text{ mg g}^{-1}$ vs $PS_{\text{full scale}}: 5 \text{ mg g}^{-1}$ and $P_{\text{pilot}}: 3 \text{ } \mu\text{g g}^{-1}$ vs $P_{\text{full-scale}}: 8 \text{ } \mu\text{g g}^{-1}$). In addition, biofilm development did not induce variations in filter hydraulics as no significant head loss increase or modifications to the tracer breakthrough curves were observed (results not shown). This shows that the chosen media aging conditions proved to be realistic and conservative in terms of biofilm development. Finally, all new media differed in terms of shape (Figure 3.6) but the impact of biofilm development on the shape of collectors was only noticeable on GAC grains where the structure of macropores was covered by the biomass (Figure 3.7).

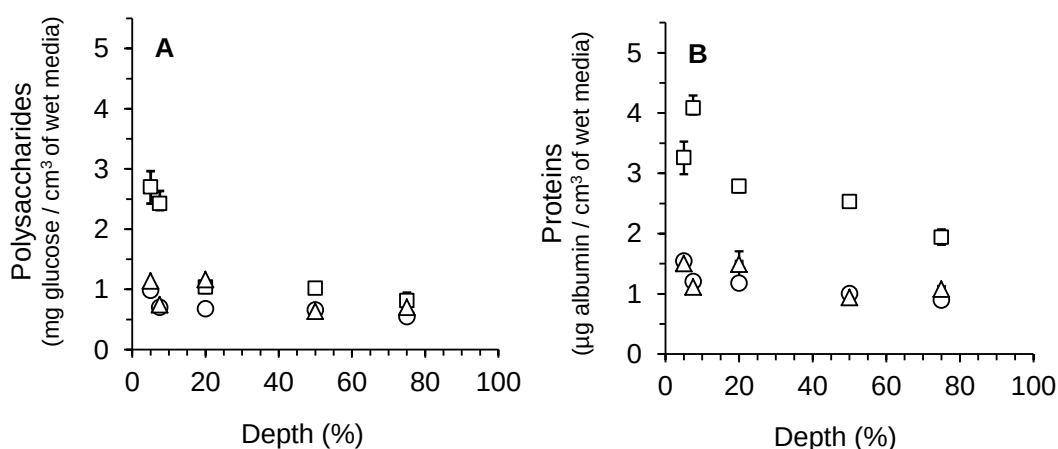


Figure 3.5: Measured polysaccharides (A) and proteins (B) on aged sand (circles), aged anthracite (triangles) and aged GAC (squares). Analyses were conducted in triplicate. Error bars represent the minimum and maximum values.

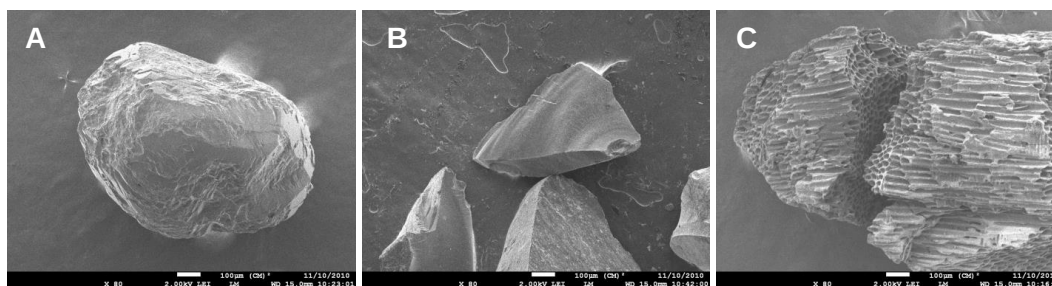


Figure 3.6: Representative images of tested granular media. Comparison of SEM images of new sand (A), new anthracite (B) and new GAC (C).

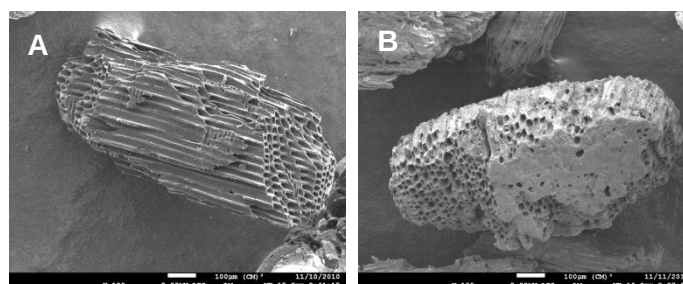


Figure 3.7: Impact of media aging on the shape of GAC grains. Comparison of SEM images of new GAC (A) and aged GAC (B).

3.4 Discussion

3.4.1 Oocyst removal by new media: Impact of media type

3.4.1.1 Seasonal variations of performance

Water quality proved to significantly differ in terms of TOC concentration between summer and fall. We hypothesize that the small but significant increase in TOC concentration led to the observed decrease in *Cryptosporidium* removal. These results are concurrent with previous studies that demonstrated that dissolved organic carbon hindered oocyst removal by granular filtration (Abudalo *et al.* 2010, Dai & Hozalski 2002, Metge *et al.* 2010). For example, influent water amended with 5 mg L⁻¹ of Suwannee River NOM (SRNOM) caused a 37 % decrease in *Cryptosporidium* removal in columns packed with glass beads (Dai & Hozalski 2002). Similarly, the addition of 2.2 mg L⁻¹ of DOC to influent water caused a 36 % decrease in oocyst removal (Metge *et al.* 2010). This reduction in performance can be explained by the adsorption of NOM onto collector surfaces. The attachment of negatively charged humic acids onto grains increases

the electrostatic and steric repulsion between particles and collectors (Franchi & O'Melia 2003). Moreover, the adsorption of DOC onto metal oxides may result in charge reversal of these favorable patches on collector grain surfaces. For instance, low concentrations of fulvic acids ($< 1.9 \text{ mg L}^{-1}$) caused a charge reversal of ferric oxyhydroxide coated sand and resulted in an increased breakthrough of oocysts (Abudalo *et al.* 2010). The impact of NOM on *Cryptosporidium* transport can also be associated with the adsorption of NOM onto oocysts (Tufenkji *et al.* 2006). It has been documented that oocysts treated with SRNOM (5 mg L^{-1} , 30 min.) were more negatively charged and possessed a higher hydrophobicity than untreated oocysts. The authors suggested that these changes in surface properties led to the observed decreased *Cryptosporidium* attachment (Dai & Hozalski 2002). However, no significant seasonal differences in zeta potential were observed in the current study. Similarly, no differences in zeta potential were observed for oocysts treated with fulvic acids up to a concentration of 20 mg L^{-1} (Abudalo *et al.* 2010). However, the decreased deposition due to the adsorption of NOM onto oocysts is not only attributable to an increase in the absolute value of the zeta potential, steric interactions also play an important role in the deposition of oocysts onto collector surfaces (Kuznar & Elimelech 2006, Tufenkji *et al.* 2006). Namely, adsorption of DOC onto both oocyst and collector surfaces can contribute to the overall extent of electrosteric interactions as oocysts approach a media grain. In summary, data from this study suggest that the increase in TOC concentration during fall did impair oocyst removal by new media. Of the tested media, GAC was the most sensitive to TOC variations, likely due to its higher affinity for TOC. Based on these seasonal variations of performance due to TOC concentrations, our results suggest that TOC alters the surface properties of collectors and oocysts and consequently decreases the deposition of *Cryptosporidium* onto new media.

3.4.1.2 Impact of porosity and shape of collectors

All tested granular media possessed the same size distribution and median diameter but differed in terms of porosity and shape/roughness. Sand columns possessed the smallest porosity and offered the lowest removal efficiency. In contrast, significantly higher oocyst removals were measured using anthracite and GAC filters. It is interesting to note that both media possessed a greater porosity, roughness and angularity than sand (Figure 3.6). These results agree with previous observations that demonstrated that grain shape impacts the removal of oocysts as

physical removal is of greater importance when angular media are used (Tufenkji *et al.* 2004). Physical exclusion by straining/wedging has been reported to take place when the particle:collector ratio (d_p/d_c) is greater than 0.005 (Bradford *et al.* 2003, 2006, Johnson *et al.* 2007). In this investigation, the oocyst-to-collector size ratio proved to be equivalent to this reported threshold value ($d_p/d_c = 0.005$). Hence, straining/wedging should not be a dominant removal mechanism under these experimental conditions. However, results obtained by sieving experiments confirmed that the oocyst-to-collector size ratio (d_p/d_c) in the upper layer (0-20 % deep; 15 cm) of the filter bed was slightly superior to 0.005 (sand: 0.006, anthracite: 0.006 and GAC: 0.008) (Table A-1.1, Supplemental Data). Therefore, straining/wedging might account for some of the removal as finer grains tend to accumulate in the top layer of the filter bed subsequent to the backwashing procedure. Yet, as revealed by the seasonal variations of performance of new media due to changes in TOC concentration, removal by physical exclusion by straining/wedging cannot solely explain the observed difference in performance amongst new media. Chemical properties of the collectors also play an important role with regards to oocyst transport and removal.

3.4.1.3 Metal content

An increase in metal content of granular media improved oocyst removal by new media. Consequently, the significantly higher aluminum and iron content of anthracite led to an increased performance of anthracite over sand. This observation corroborates previous studies which have documented that *Cryptosporidium* removal is a function of aluminum and iron oxides on the surface of collectors (Abudalo *et al.* 2005, Metge *et al.* 2010). Accordingly, GAC, which possessed the highest metal concentration, offered the best performance in summer. This trend was not observed during fall. GAC likely has a higher adsorption capacity for TOC, which may mask metal oxide patches on grain surfaces (as discussed above). In conclusion, results of this study suggest that metals present on the surface of collectors play a key role in oocyst deposition onto new media.

3.4.2 Oocyst retention profiles

The oocyst retention profiles of both new and aged media proved to be non-log-linear as opposed to the exponential profiles predicted by colloid filtration theory. This disagreement between

retained microorganism profiles and data predicted by classical CFT has been reported by other authors (Liu *et al.* 2007, Tufenkji & Elimelech 2005b). These discrepancies were expected as experiments were conducted under unfavorable conditions for oocyst deposition (high pH and low ionic strength). Although data obtained from sieving experiments were used to correct the retention profiles according to the classical CFT using the median size of each layer, this correction had no significant influence on the predicted retention profiles (Figure A-2.2, Supplemental data). In addition, the oocyst-to-collector size ratio (d_p/d_c) in the upper layer of the filter bed was slightly superior to 0.005. Therefore, straining/wedging may account for some of the discrepancies between the observed and predicted retention profiles (Bradford *et al.* 2003, Johnson *et al.* 2007) of new and aged media. Finally, variations in the extent of biomass development on the surface of collector grains as a function of filter depth will also account for the observed deviation from classical CFT. These results demonstrate that more research is needed to integrate filter bed heterogeneity as a function of depth in colloid filtration models to better predict oocyst retention behavior in engineered systems.

The performance of extraction protocols used to assess oocyst retention profiles was not always optimal. Special attention should be paid to GAC and aged media as lower recoveries were observed for these conditions in the current study. The energy used on GAC grains was not sufficient to extract oocysts but was enough to produce GAC fines. These particles created some interference during microscopic examination as they adsorbed FITC during oocyst staining. This caused background fluorescence which made the detection of oocysts less efficient. Moreover, low intensity sonication of sand grains may have damaged oocysts and produced artifacts (oocyst debris) that resulted in an overestimation of oocysts on this material. As the observed values of retained oocysts within filter beds was either underestimated (for aged GAC) or overestimated (for sand), no statistical analysis was performed to correlate $S(x)$ with biofilm density. Our results highlight the importance of conducting mass balance calculations when comparing the retention profiles of different media type. In summary, the use of accurate data is of importance to understand *Cryptosporidium* retention in industrial systems and special attention should be paid to recoveries of extraction protocols on filter media.

3.4.3 Impact of media aging

The results of the current study confirm that media aging significantly improved *Cryptosporidium* removal. These findings are of importance as other studies have demonstrated that biofilm development on the surface of granular media hinders the removal of oocysts (Dai & Hozalski 2002, Hijnen *et al.* 2010). Firstly, it should be noted that this investigation assessed *Cryptosporidium* removal with wood based GAC and did not inject any other microorganism in influent water contrarily to the study by Hijnen *et al.* 2010 which assessed *Cryptosporidium* removal not only with coal-based GAC but also simultaneously injected *Cryptosporidium* oocysts, MS2 phages, *E.coli*, endospores of *C. bifermentans* and *Giardia* cysts. Moreover, the GAC (coal-based) used in the earlier study was aged under less favorable conditions for biomass development than in the current study. Therefore, the opposite performance trends observed in this study may be explained by differences in the surface properties of wood and coal-based GAC and/or by greater biofilm abundance in this study due to more favorable aging conditions (nutrient amendment in feed water). Secondly, contrary to lab scale experiments conducted in columns packed with glass beads coated with *Pseudomonas aeruginosa* biofilm (Dai & Hozalski 2002), the chosen experimental conditions promoted the development of biofilm formed by autochthonous bacteria. This may have had an impact on oocyst removal as it has been demonstrated that EPS production is not only influenced by environmental stress (Morales *et al.* 2010) but also varies from one bacterial strain to another (Flemming & Wingender 2001, Liu *et al.* 2008). As a result, the nature of the EPS constituents and biofilm thickness on granular media may improve or impair microbial deposition (Liu & Li 2008, Liu *et al.* 2008). Data from the present study demonstrate that biofilm development which occurs during filter operation increases oocyst removal by granular filters. This increased *Cryptosporidium* retention is also indirectly supported by the lower filter bed oocyst recovery of aged media (as discussed above). These observations are also concurrent with previously reported data where biofilm development proved to decrease the zeta potential of sand and as a result increased latex particle and quantum dots retention (Tripathi *et al.* 2012). Amongst the tested media, biofilm development on GAC grains was the most remarkable. Moreover, the distribution of EPS constituents as a function of depth of GAC filters was typical of vertical profiles of bacterial biomass reported in the literature (Moll & Summers 1999, Servais *et al.* 1991). Indeed, several other researchers have documented that macroporous GAC generally supports a higher biomass than sand and anthracite (Prévost *et*

al. 2005, Wang *et al.* 1995). This can be explained by the surface area of GAC grains (Prévost *et al.* 2005), by its irregular shape which protects biomass from shear stress (Rittmann 1982) and by backwashing procedures. Due to the density of GAC, lower energy backwash is needed to ensure proper bed expansion. Consequently, less detachment of the fixed biomass occurs during backwash as GAC grains are exposed to lower shear forces (Rittmann 1982) than sand or anthracite. For the reasons listed above, in the current study, GAC supported the greatest amount of biomass and also offered the best oocyst removal.

Interestingly, media aging improved the performance of sand but had no impact on the performance of anthracite despite the fact that both granular media supported the same amount of biomass. Therefore, biomass does not seem to impact the performance of anthracite and another removal mechanism seems to be driving *Cryptosporidium* deposition onto this material. Thus, more research is needed to gain more knowledge with regards to oocyst deposition on anthracite. As a final comment, the impact of biofilm development on oocyst retention and release during extended periods was not assessed by this experimental design. An improved understanding of the impact of biofilm development on oocyst detachment could lead to recommendations on granular filter operation to minimize oocyst breakthrough.

3.5 Summary and conclusions

This study is the first to present the impact of media aging on *Cryptosporidium* retention using three different media types tested under identical experimental conditions. Our results demonstrate that the removal of oocysts by new media is sensitive to seasonal variations of TOC concentration. Media aging improved the performance of sand and GAC filters. The best performance was observed with aged GAC filters which harbored the greatest amount of biomass according to EPS measurements. Considering the high interest of the water treatment industry for GAC treatment, further studies are needed to validate if these results are dependent on GAC composition, grain angularity and/or roughness.

Acknowledgements: The authors acknowledge the Industrial NSERC Chair in Drinking Water and its industrial partners, namely the City of Montreal, John Meunier Inc. and the City of Laval. The authors wish to thank the Chair's personnel for their support and technical assistance in the laboratory work. In addition, they thank Prof. G. A. Vázquez-Rodríguez (Universidad Autónoma del Estado de Hidalgo) for the biomass measurements in full-scale GAC filters. The authors would also like to acknowledge the financial support of the Canadian Water Network and the Canada Research Chairs program.

CHAPITRE 4 PUBLICATION # 2: IMPACT OF KAOLINITE CLAY PARTICLES ON THE FILTRATION OF *CRYPTOSPORIDIUM*-SIZED MICROSPHERES

Ce chapitre présente les résultats d'essais de filtration visant à évaluer l'impact de la concentration de particules d'argile (kaolinite) sur l'enlèvement de microsphères, utilisées à titre de substitut pour les oocystes de *Cryptosporidium*, par filtration sur sable. Les résultats de ces essais expérimentaux ont permis une meilleure compréhension du co-transport de particules de kaolinite et de microsphères. Ils ont aussi permis d'identifier les mécanismes d'enlèvement impliqués lorsqu'un procédé de filtration directe non assisté chimiquement est exposé à des pointes de concentrations de protozoaires accompagnées ou non de pointes de turbidité à l'eau brute. Cet article a été accepté pour publication à *Water Science and Technology: Water Supply* le 6 juin, 2013.

IMPACT OF KAOLINITE CLAY PARTICLES ON THE FILTRATION OF *CRYPTOSPORIDIUM*-SIZED MICROSPHERES

Isabelle Papineau^{1,*}, Nathalie Tufenkji² and Benoit Barbeau¹

¹Industrial NSERC Chair on Drinking Water, Department of Civil, Geological and Mining Engineering, Ecole Polytechnique de Montreal, P.O. Box 6079, Downtown Station, Montreal, Quebec, Canada, H3C 3A7.

²Department of Chemical Engineering, McGill University, 3610 University Street, Montreal, Quebec, Canada, H3A 2B2.

*Corresponding author:

Tel.: 1.514.340.4711x3727; Fax: 1.514.340.5918; e-mail: isabelle.papineau@polymtl.ca

Abstract: Granular filtration remains a key barrier for *Cryptosporidium* removal in water treatment plants without UV irradiation. To assess the impact of clay particles in source water on *Cryptosporidium* removal efficiency by granular filtration, this study investigated the co-transport of *Cryptosporidium*-sized microspheres and kaolinite particles in sand columns. To investigate the influence of clay load on microsphere transport and deposition, varying influent kaolinite concentrations (0 to 10^6 particles mL^{-1}) and microsphere concentrations (10^2 to 10^6 microspheres mL^{-1}) were tested. The spatial distribution of retained microspheres was examined subsequent to experiments via filter coring. Results demonstrate that increasing the influent microsphere concentration impaired filter performance due to a blocking mechanism whereby previously retained particles repel incoming particles. In contrast, when the particulate load was dominated by kaolinite (for an equivalent particulate load), filter performance improved as a result of filter ripening whereby previously deposited particles act as additional collectors. Thus, microsphere-kaolinite interactions proved to be favorable although both particles possessed negative zeta potentials in the tested conditions. This study demonstrates that granular filter performance is vulnerable to peak events of microbial contamination. Conversely, *Cryptosporidium*-sized microsphere removal by granular filtration is enhanced in the presence of kaolinite in source water.

4.1 Introduction

The seasonal variations of *Cryptosporidium* occurrence in surface waters is proven to be watershed specific, with peak concentrations associated to rainfall or snowmelt events which lead to increased river flow, combined sewer overflow, and/or agricultural runoff (World Health Organization (WHO) 2006). These extreme events are of sanitary concern as the seasonality of cryptosporidiosis cases is related to seasonal variables such as temperature, precipitation and river flow (Lake *et al.* 2005). Peak concentrations of naturally occurring clay particles in surface waters may also result from sediment resuspension due to increased river flow and surface runoff subsequent to rainfall or snowmelt (Gaskin *et al.* 2003, Gauthier *et al.* 2003). Interestingly, *Cryptosporidium* oocysts have been shown to attach to kaolinite (clay) particles when suspended in the water column which enhances the oocyst settling velocity and favors oocyst deposition in stream beds (Searcy *et al.* 2005). Such a phenomenon may also impact performance of granular media filters used for the production of drinking water. This research question is of significance

as water treatment plants (WTPs) without UV irradiation or membrane filtration will typically rely on granular media filtration as the principal barrier for *Cryptosporidium* removal.

Microbial transport in granular media is influenced by (i) particle-particle interactions and (ii) influent microbe/surrogate concentrations as they both will result in time-dependent removal mechanisms such as blocking, straining (Bradford & Bettahar 2006) and ripening (Camesano & Logan 1998). Blocking occurs in the presence of unfavorable particle-particle interactions where the previously deposited particles shield a portion of the grain and repulsion is experienced between the deposited and suspended particles of the same nature (Ryan & Elimelech 1996). Consequently, this mechanism impairs filter performance and occurs to greater extent at higher influent particle concentrations (Bradford & Bettahar 2006, Camesano & Logan 1998). In contrast, filter performance may be improved by straining when larger particles are retained by physical exclusion at pore throats (Bradford & Bettahar 2006, Bradford *et al.* 2006). Moreover, filter performance may be improved by ripening when particle-particle interactions are favorable (Camesano & Logan 1998) as the previously deposited particles behave as additional collectors and favor particle deposition (Yao *et al.* 1971). Media ripening has also been attributed to inorganic particles such as clay which are naturally present in surface waters (Gitis *et al.* 2002).

Suspended clay minerals can influence microbial transport in porous media. In fact, previous studies have provided evidence that the attachment of viruses (Chrysikopoulos & Syngouna 2012, bacteria (Vasiliadou & Chrysikopoulos 2011) and protozoa (Park *et al.* 2012) onto collector grains was facilitated by the co-transport of clay minerals and biocolloids. Specifically, increased deposition of *Cryptosporidium* onto quartz sand was observed when co-injected with illite clay (Park *et al.* 2012). Similar observations were made in batch reactors where minimal *Cryptosporidium* attachment occurred onto sand grains in the absence of clay particles but deposition improved in the presence of kaolinite due to oocyst attachment to the previously deposited clay particles (Gitis *et al.* 2002). Nonetheless, it is unclear to what extent the kaolinite-oocyst interaction leads to improved oocyst removal by granular media filters in engineered systems such as rapid granular media filters. The impact of oocyst-kaolinite co-transport on treatment performance in engineered filters may differ considerably from reported observations made in well-controlled bench-scale packed columns because engineered filters use coarser and more heterogeneous media and are operated at higher flow rates. In this context, it is also

unknown how granular filtration performance may vary with a change in suspended clay concentration, and particularly, when exposed to typical natural clay loads in surface waters.

The objective of this investigation is to characterize *Cryptosporidium*-sized microsphere transport and deposition in rapid sand filters under varying influent microsphere and clay (kaolinite) concentrations. Polystyrene microspheres have been reported to be a conservative surrogate for *Cryptosporidium* in column and in pilot scale experiments (Emelko *et al.* 2005). Lab-scale rapid sand filtration experiments were conducted in the absence of a coagulant, to assess the co-transport behavior of microspheres and kaolinite particles independently of coagulation/flocculation. These conditions were selected to mimic the direct filtration (without coagulation) WTPs currently operated in Montreal (Canada) to provide drinking water to 1.6 million people. Microsphere breakthrough curves and retention profiles were evaluated to assess the mechanisms that influence microsphere deposition for various loads of influent microspheres and kaolinite.

4.2 Materials and methods

4.2.1 *Cryptosporidium*-sized Microspheres

Fluoresbrite® yellow green carboxylated polystyrene microspheres (Polysciences Inc., USA) of a diameter of 4.358 μm (± 0.113) and a density of 1.05 g mL^{-1} were selected as a surrogate for *Cryptosporidium*. Although microspheres were proven to be conservative surrogates for *Cryptosporidium* (Emelko *et al.* 2005), they lack surface proteins that have been shown to drive the electrosteric repulsion between oocysts and collector grains (Tufenkji *et al.* 2006). Therefore, in some conditions, microsphere and *Cryptosporidium* retention behavior might differ according to oocyst physiological conditions (e.g. age, viability, exposure to environmental stresses, etc.) which influence surface protein structure and consequently the extent of electrosteric repulsion between *Cryptosporidium* and collectors (Tufenkji *et al.* 2006). Prior to filtration experiments, the microsphere suspension was vortexed, diluted in synthetic water and agitated with a stir bar. The synthetic water used to carry out experiments was created to mimic the mineral composition of the St. Lawrence River ($\text{pH} = 8.2 \pm 0.07$, ionic strength = 4.37 mM). The chemical composition and the measured physico-chemical properties of this synthetic water are listed in Supplementary Information (Tables A-2.1 and A-2.2). For microsphere enumeration, suspensions

were filtered on 2.0 μm porosity filters and then enumerated by laser scanning cytometry (ScanRDI, AES Chemunex) and confirmed by epifluorescence microscopy at a magnification of 600 $\times$ (BX-60, Olympus) using an Olympus U-MWIBA filter.

4.2.2 Kaolinite clay suspension

A clay suspension was chosen to represent the total suspended solids of the St. Lawrence River which are mostly of a mineral nature (~73 % to 81 %) (Gauthier *et al.* 2003). Kaolinite (specific gravity of 2.6) was selected as representative clay in this investigation. Kaolinite was hydrated in Milli-Q water, agitated (24 h) and sonicated in a low intensity bath (30 min.) to obtain a particle size distribution representative of the St. Lawrence River (95 % of particles < 5 μm) (Caron *et al.* 2007) which was validated by a Dynamic Particle Analyzer (Brightwell Technologies). The suspension was then diluted using synthetic water to obtain the desired kaolinite particulate load prior to the addition of microspheres.

4.2.3 Electrokinetic properties of *Cryptosporidium*-sized microspheres and of kaolinite

The electrophoretic mobilities of microspheres and kaolinite particles were measured in synthetic water (20°C, pH = 8.2) using a Zetasizer Nano (Malvern) and were converted to zeta potentials using the Smoluchowski approximation. The calculated zeta potentials were determined to be -41.4 ± 0.7 mV for microspheres and -22.6 ± 1.0 mV for kaolinite.

4.2.4 Filtration experiments and column set-up

The design/operational conditions (e.g., filtration rate) of the experimental set-up were chosen to reproduce the Atwater and Charles-J. Des Baillets WTPs (Montreal, Canada) which are fed by the St. Lawrence River. Filtration experiments were conducted with duplicate sand filters (depth of 74 cm) in PVC columns (inner diameter of 32 mm) operated at a filtration rate of 5 m hr⁻¹. The chosen silica sand (Temisca Inc., Canada) possessed an effective size (d_{10}) of 650 μm , a median size (d_{50}) of 860 μm and a uniformity coefficient (UC) of 1.4. Moreover, its density and porosity were 2.53 g cm⁻³ and 0.35, respectively.

Prior to an experiment, a column filled with new media was backwashed at a target of 40 % bed expansion, and flushed (1 h) with a microsphere-free synthetic water to allow media pre-

conditioning. During filtration experiments, the microsphere and kaolinite injection was conducted over 20 pore volumes (PVs) after which the column was eluted for 12 PVs with a microsphere and particle-free synthetic water. Influent samples were collected at 3, 7, 11, and 15 PVs and column effluent samples at every PV throughout the filtration experiment.

To assess the impact of surface water clay concentration on *Cryptosporidium* removal by filtration, the microsphere and kaolinite content of the influent water were adjusted according to the experimental design summarized in Table 1. The range of total particulate loads tested was selected to be representative of typical particle concentrations of the St. Lawrence River (Caron *et al.* 2007) and of US surface waters which range from 10^2 to 10^6 particles mL^{-1} (McTigue *et al.* 1998). To allow a direct comparison of the microsphere removal in presence and in absence of clay particles, the range of microsphere concentrations tested in absence of kaolinite was adjusted to correspond to the total particles injected in experiments conducted with kaolinite. In this study, the lowest tested microsphere concentration (10^2 mL^{-1}) was selected to allow precise filter effluent microsphere measurements and to minimize the uncertainty in removal calculations, albeit it is higher than the naturally occurring *Cryptosporidium* concentrations at the Atwater and Charles-J. Des Bailleurs water intakes (~ 0.01 to 10 oocysts L^{-1}). Thus, the experimental design allows the assessment of the co-transport behavior of microspheres (MS) and kaolinite particles (K) and its impact on filter performance as a function of the dominant particle nature (MS versus K).

Table 4.1. Experimental design.

Experiment	Influent concentration (mL^{-1})		
	Microspheres (MS)	Kaolinite particles (K)	Total particles (TP)
M1	10^2	0	10^2
M2	10^4	0	10^4
M3	10^6	0	10^6
K1	10^2	10^4	10^4
K2	10^2	10^6	10^6

4.2.5 Tracer experiments

Tracer experiments were carried out prior and subsequent to a filtration experiment conducted with the highest kaolinite load (10^6 K mL^{-1}) to assess the impact of particle deposition on the filter bed porosity. Influent and effluent bromide tracer concentrations were measured according

to the Phenol Red Colorimetric Method 4500Br⁻B (American Public Health Association (APHA) *et al.* 2005).

4.2.6 Spatial distribution of retained microspheres

Subsequent to column elution (deloading; 32 PVs), the filter bed of the first column replicate was sampled by filter coring at 6 fractional depths of 5 %, 7.5 %, 20 %, 40 %, 60 %, 75 % (starting from the column inlet) to assess the spatial distribution of retained microspheres. Samples were placed in synthetic water and rocked end-to-end (Rocker II, Biokel Scientific) for 15 minutes. The supernatant was immediately removed for microsphere enumeration as described previously.

4.2.7 Mass balance

To assess the recovery of filter coring experiments, a mass balance was calculated subsequent to each experiment as described below:

$$N_{influent} = tC_0Q \text{ or } N_{effluent} + N_{filter\ bed} \quad (\text{Equation 4.1})$$

$$N_{effluent} = \sum_{i=1}^{32} V_{PV} \left(\frac{C_i + C_{i+1}}{2} \right) \quad (\text{Equation 4.2})$$

$$N_{filter\ bed} = \left(0.05 S_{0.05} + 0.025 \left(\frac{S_{0.05} + S_{0.075}}{2} \right) + 0.125 \left(\frac{S_{0.075} + S_{0.2}}{2} \right) + 0.2 \left(\frac{S_{0.2} + S_{0.4}}{2} \right) + \right. \\ \left. 0.2 \left(\frac{S_{0.4} + S_{0.6}}{2} \right) + 0.15 \left(\frac{S_{0.6} + S_{0.75}}{2} \right) + 0.25 S_{0.75} \right) \times M_t \quad (\text{Equation 4.3})$$

where t is the duration of continuous microsphere injection, C_0 the mean influent concentration of suspended microspheres, Q the flow rate, V_{PV} the volume of water per PV, C_i the effluent concentration of suspended microspheres at pore volume i , S the number of microspheres per gram of dry sand at a given fractional depth, and M_t the total mass of dry sand contained in the column. The recovery of the microsphere extraction (%) was calculated as described below:

$$Recovery_{filter\ bed} = \frac{N_{filter\ bed}}{(N_{influent} - N_{effluent})} \times 100 \quad (\text{Equation 4.4})$$

4.2.8 Calculation of particle deposition rates

To quantitatively compare results obtained from filtration experiments, the microsphere deposition rate coefficient (k_d) was calculated for each filtration experiment as described below (Tufenkji & Elimelech 2004a, Yao *et al.* 1971).

$$k_d = -\frac{v}{L} \ln\left(\frac{C}{C_0}\right) \quad (\text{Equation 4.5})$$

where L is the total filter bed length, v is the porewater velocity, C/C_0 the normalized microsphere effluent concentration determined by numerically integrating the breakthrough curves (BTCs). The number of retained microspheres at a given depth, $S(x)$, is described by the classical colloid filtration theory (CFT) as follows:

$$S(x) = \frac{t\theta k_d C_0}{\rho_b} \exp\left(\frac{k_d}{v} x\right) \quad (\text{Equation 4.6})$$

where θ the bed porosity, ρ_b the media bulk density, and x the column depth.

4.3 Results and Discussion

4.3.1 Tracer experiments

Tracer BTCs remained unchanged subsequent to a filtration experiment conducted with 10^6 K mL⁻¹ (results not shown), indicating that addition of kaolinite did not significantly change the apparent porosity of the filter bed. In addition, head loss remained low and stable throughout all tested conditions (results not shown). Thus, the observed microsphere BTCs were assessed during stable filter operation.

4.3.2 Impact of influent kaolinite and *Cryptosporidium*-sized microsphere concentration on filter performance

Influent microsphere (MS) and kaolinite particle (K) concentrations largely impacted the removal of microspheres. The results of filtration experiments are presented in terms of normalized microsphere effluent concentrations (C/C_0) to take into account the various tested microsphere concentrations as defined by the experimental design and to allow a comparison of the resulting BTCs (Figure 1). Firstly, the BTCs of experiments conducted with 10^2 or 10^4 total particles mL⁻¹ (Figure 1A, 1B) demonstrate that experiments were conducted at steady state as the effluent microsphere concentration reached a plateau before sharply decreasing during the elution phase. Secondly, filter performance decreased as the influent microsphere concentration increased from 10^2 to 10^6 per mL without kaolinite. The BTCs of experiments conducted with 10^6 MS mL⁻¹ clearly illustrate this decreased performance with time as the normalized effluent microsphere concentration increased throughout the microsphere injection period (Figure 1C). It can also be

noted that dosing 10^4 K mL^{-1} + 10^2 MS mL^{-1} had a minor impact on microsphere removal. However, dosing 10^6 K + 10^2 MS mL^{-1} improved MS removal compared to the reference condition (10^2 MS mL^{-1} without kaolinite). In fact, the normalized effluent microsphere concentration decreased throughout the duration of particle injection (Figure 1C). Finally, for comparative purposes, we evaluated the deposition rate coefficient (k_d) for every tested condition (Table 2). Here, k_d serves as an indicator of the initial filtration performance of the system but does not take into account the time-dependent mechanisms involved. This is of importance as k_d does not fully highlight the increased filtration performance with time in the presence of 10^6 K mL^{-1} nor does it reveal the extent of the significant decrease of performance at the high concentration of microspheres (10^6 MS mL^{-1}) without kaolinite.

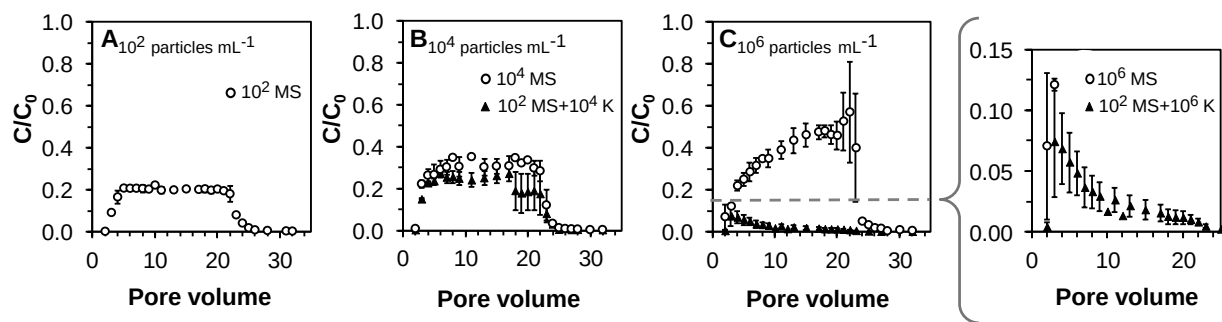


Figure 4.1: Comparison of microsphere (MS) breakthrough curves of filtration experiments conducted with a total particulate load of (A) 10^2 particles mL^{-1} , (B) 10^4 particles mL^{-1} , and (C) 10^6 particles mL^{-1} in absence (open circles) or presence (solid triangles) of kaolinite particles (K). Error bars represent minimum and maximum values of duplicate experiments.

The interactions between particles are key to understanding the microsphere-kaolinite co-transport behavior. Due to the negative charge of microspheres, microsphere-microsphere interactions are unfavorable and thus the experimental design of the current study is favorable to blocking. In fact, the observed decreased microsphere removal with increasing influent microsphere concentrations can be attributed to blocking. This is clearly depicted by the BTCs of experiments conducted with 10^6 MS mL^{-1} where the normalized microsphere effluent concentration (C/C_0) increased throughout the microsphere injection. This observation corroborates previous studies that have associated this behavior to blocking of favorable attachment sites (Bradford & Bettahar 2006, Camesano & Logan 1998). In contrast, the addition of kaolinite in the influent water increased microsphere removal in a time-dependent manner.

Consequently, kaolinite-microsphere interactions were favorable despite the fact that both particles possessed a negative zeta potential. This is in agreement with previously reported observations made in glass bead columns where the presence of kaolinite increased *Pseudomonas putida* retention (Vasiliadou & Chrysikopoulos 2011). In the current study, the increased filter performance in presence of kaolinite particles is attributable to (i) media ripening and (ii) microsphere-kaolinite heteroaggregation in influent water. Firstly, media ripening is clearly illustrated by the BTCs of experiment K2 (Figure 1C) whereby the normalized microsphere effluent concentration (C/C_0) decreased with time. This observation is in agreement with previous reports where this type of BTC profile has been attributed to media ripening due to favorable particle-particle interactions (Camesano & Logan 1998). This also corroborates with previously reported observations made in batch reactors where the addition of kaolinite in influent water increased oocyst removal (Gitis *et al.* 2002). Moreover, it is in agreement with an earlier study where the predeposition of bentonite clay particles onto collectors decreased the zeta potential of sand grains which increased the retention of incoming bacteria (Yang *et al.* 2012). Secondly, the increased retention may also be a result of heteroaggregation of suspended microspheres and suspended kaolinite leading to physical straining of these aggregates. This is likely because at higher kaolinite concentrations, a greater proportion of influent particles have a size resulting in particle-to-collector size ratios above the threshold value for straining ($d_p/d_c > 0.005$) (Bradford *et al.* 2006) in comparison to the kaolinite suspensions in synthetic water without microspheres (10^6 K mL⁻¹; 5 %, 10^2 MS + 10^4 K mL⁻¹; 10 % and 10^2 MS + 10^6 MS mL⁻¹; 29 %) (Figure 2). Moreover, because kaolinite particles are denser than microspheres, heteroaggregation may also lead to increased microsphere transport by sedimentation (Searcy *et al.* 2005) to the vicinity of collector (sand) grains resulting in greater removal. This assumption corroborates the observed increased *P. putida* deposition on glass beads in presence of kaolinite (Vasiliadou & Chrysikopoulos 2011), enhanced *Cryptosporidium* retention on quartz sand in presence of illite clay (Park *et al.* 2012) and increased removal due to the codeposition of bacteria and bentonite clay (Yang *et al.* 2012). Lastly, the reported greater microsphere retention as a function of kaolinite load in this investigation corroborates previous observations made with regards to the co-transport of bacteria and clay (Vasiliadou & Chrysikopoulos 2011, Yang *et al.* 2012).

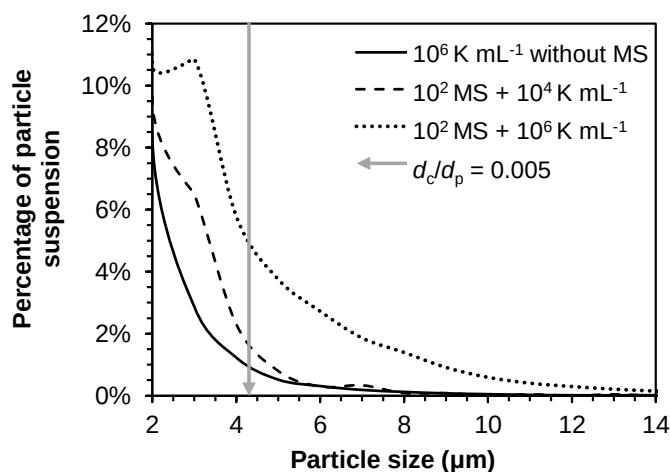


Figure 4.2: Influent particle size distribution of microsphere (MS) and kaolinite particle (K) suspensions of 10^6 K mL⁻¹ without MS (bold line), 10^2 MS + 10^4 K mL⁻¹ (dashed line) and 10^2 MS + 10^6 K mL⁻¹ (dotted line). The arrow indicates the critical particle-to-collector size ratio (d_p/d_c) of 0.005 (Bradford *et al.* 2006).

Kaolinite is a two layer mineral clay composed of silica and alumina layers where the hydroxyl-terminated edges possess amphoteric sites (Tombácz & Szekeres 2006). The basal plane represents most of the surface area of these particles whereas edges represent only 7 % to 14 % of the total surface (Zhou & Gunter 1992). In the tested conditions (pH = 8.2), the basal plane should be negatively charged whereas the edges should be positively charged which may, in turn, adsorb to the negatively charged carboxylate groups (Jiang *et al.* 2010) located on the surface of microspheres. Consequently, we hypothesize that the presence of these amphoteric sites may explain the favorable interactions between microspheres and kaolinite. Thus, as observed in packed columns with scanning electron microscopy images (Vasiliadou & Chrysikopoulos 2011) and suggested in batch reactors (Gitis *et al.* 2002), we propose that the kaolinite particles attach onto the sand grains and subsequently, microspheres are retained by the deposited kaolinite particles. This hypothesis also explains the observed BTC profiles and the enhanced microsphere removal due to kaolinite addition. Thus, results of the current investigation demonstrate that the reported increased microbial retention in packed columns in presence of clay particles could also occur in engineered systems even if rapid granular filters are operated at higher flow rates and use heterogeneous granular media. Although the microsphere concentrations tested in this investigation exceed typical *Cryptosporidium* concentrations in source waters, the enhanced performance due to the clay induced media ripening observed in this study is most likely still

applicable to lower microbial concentrations as it is driven by the influent kaolinite concentration.

4.3.3 Mass balance of filter coring

Filter coring was used to assess the number of retained microspheres in the filter bed following the filtration experiments. The experimental protocol was proven to be appropriate by the high recoveries (mean = 85% $\pm$ 14%) of filter coring experiments (Table 2). These reported recoveries were used to correct the measured retained microsphere profiles of each tested condition (Figure 3). Nonetheless, some uncertainty in mass balance calculations may have been induced by the evaluation of the fraction of retained microspheres within the filter bed. This inaccuracy is most probably attributable to the small mass per sample (mean $\pm$ SD = 0.22% $\pm$ 0.05%) extracted by filter coring in comparison to the total mass of the filter bed.

Table 4.2. Deposition rate coefficient (k_d) of filtration experiments and mass balance of filter coring experiments.

Condition	k_d (s ⁻¹)	Mass balance		
		Effluent	Filter bed	Total†
10 ² MS* mL ⁻¹	0.0087	19 %	44 %	63 %
10 ⁴ MS mL ⁻¹	0.0065	35 %	68 %	103 %
10 ⁶ MS mL ⁻¹	0.0046	52 %	35 %	87 %
10 ² MS mL ⁻¹ + 10 ⁴ K [§] mL ⁻¹	0.0079	19 %	69 %	88 %
10 ² MS mL ⁻¹ + 10 ⁶ K mL ⁻¹	0.0193	4 %	80 %	84 %

*MS- Microspheres

§K- Kaolinite particles

†Total- Sum of recovery (effluent and filter bed)

4.3.4 Microsphere retention profiles

The microsphere retention profiles (Figure 3) corrected for the specific recovery of microspheres according to the mass balance calculations (63 % to 103 %) differed from one tested condition to another and particularly so in the top layer of the filter bed (0-20 % deep, 15 cm from the inlet). As the influent microsphere concentration increased, the fraction of total retained microspheres within the top layer of the filter bed decreased (10² MS mL⁻¹; 41.3 $\pm$ 1.1 %, 10⁴ MS mL⁻¹; 28.4 $\pm$ 0.4 % and 10⁶ MS mL⁻¹; 22.2 $\pm$ 0.9 %). When the influent kaolinite load increased to 10⁴ K mL⁻¹, the fraction of total retained microspheres in the top layer of the filter bed somewhat increased (44.2 $\pm$ 0.2 %) in relation to the reference condition (10² MS mL⁻¹

without kaolinite). In contrast, when the clay load was increased to 10^6 K mL⁻¹, the fraction of total retained microspheres in the same layer decreased (32.4 ± 0.3 %) in relation to the reference condition (10^2 MS mL⁻¹ without kaolinite).

Observed microsphere retention profiles were not always well described by predictions based on the classical CFT which considers the “clean-bed” removal of particles characterized by first-order deposition kinetics resulting in an exponential decay of suspended and retained particles with distance. Some discrepancies between observed and predicted retention profiles were expected as all experiments were conducted under unfavorable conditions for microsphere deposition (low ionic strength and high pH) (Li *et al.* 2004, Tufenkji & Elimelech 2005a). In addition, classical CFT does not take into account dynamic removal mechanisms such as blocking and ripening (Ryan & Elimelech 1996). Although the collected data point to time-dependent and depth-dependent mechanisms such as filter ripening and blocking, the limited data set does not provide sufficient information to comprehensively model these complex processes; namely, only one experimental condition led to blocking (Figure 1C, MS without K), and only one experimental condition led to ripening (Figure 1C, MS + K). Despite this limitation, the predicted retention profiles based on classical CFT were included here for comparative purposes as it is interesting to compare observed and predicted retention profiles as a function of the dominant particle nature (MS versus K). In fact, k_d should provide only an accurate description of clean-bed performance and thus, in this study, would theoretically better describe filtration experiments that do not exhibit second-order deposition kinetics (Figure 1A and 1B). Because the calculated deposition rate coefficient (k_d) impacts $S(x)$ calculations, predicted retention profiles should theoretically be less accurate for filtration experiments conducted with a particulate load of 10^6 particles mL⁻¹ where ripening and blocking are noticeably prevailing. However, the observed retention profiles exceeded predictions of the classical CFT at the lower particulate loads and did so more importantly in the top layer of the filter bed (Figure 3A and 3B). It is interesting to note that the fraction of total retained microspheres in the top layer of the filter bed decreased with increasing influent microsphere concentration. This is of particular interest as it illustrates that the favorable attachment sites were saturated in the top layer and that blocking occurred to a greater extent with increasing microsphere concentration. Contrary to expectation, the retention profile of the filtration experiment conducted with a particulate load of 10^6 K mL⁻¹ was better described by the classical CFT despite the fact that k_d calculations were biased by the

time-dependent removal of microspheres. We hypothesize that this unexpected observation is an outcome of media ripening for which the deposited kaolinite particles created new attachment sites which in turn resulted in more favorable conditions for microsphere deposition. Finally, the spatial distribution of kaolinite was not assessed in the current study, but should be considered in future research. Moreover, ongoing research should also investigate whether kaolinite particle accumulation on collector grains increases media roughness and induces greater microsphere retention.

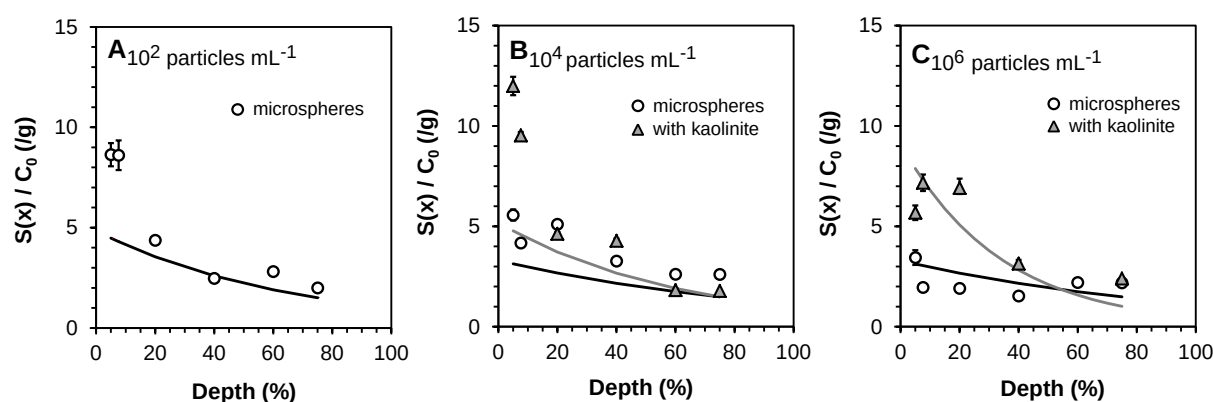


Figure 4.3: Measured retained microsphere concentration profiles of filtration experiments conducted with a total influent particulate load of (A) 10^2 particles mL^{-1} , (B) 10^4 particles mL^{-1} and (C) 10^6 particles mL^{-1} in absence (open circles) or presence (solid grey triangles) of kaolinite. The presented data were adjusted according to the recovery rate of the extraction protocol of every tested condition. Bold lines represent predicted values according to the classical CFT of experiments conducted with kaolinite (grey) and without kaolinite (black). Error bars represent minimum and maximum values.

4.3.5 Implications for the water industry

Results obtained in this study clearly demonstrate that excessive dosage of microspheres in absence of coagulation and other particles may not be representative of reality as different removal mechanisms can come into play. Experiments conducted with excessive influent oocyst or surrogate concentrations may overestimate filter performance in presence of coagulation (Assavasilavasukul *et al.* 2008a) or underestimate filter performance in absence of coagulation (this study). Therefore, results of such experiments should be interpreted with caution. Taking into account the limitations of this study (i.e., the appropriateness of microspheres as

Cryptosporidium surrogate), the trends observed suggest that WTPs without coagulation and fed with low turbidity water might suffer from lower *Cryptosporidium* removal by filtration. More research is needed to integrate the impact of source water quality on sedimentation and filtration performances in order to identify conditions where *Cryptosporidium* and *Giardia* removal credits attributed to filtration processes differ from the true performances. Monitoring of surrogate organisms such as bacterial endospores might be an appropriate solution to evaluate treatment performance as their removal has been found to be correlated with *Cryptosporidium* removal (Jaidi *et al.* 2009).

4.4 Conclusions

In conclusion, the results of this investigation reveal that microsphere removal is impaired at high influent concentrations due to blocking, whereas filter performance improves when the influent suspension is dominated by kaolinite as it results in media ripening. We suggest that this enhanced performance is attributable to favorable microsphere-kaolinite interactions. This research demonstrates that, in absence of coagulation, when a high dose of microorganisms or surrogates is spiked in source water to maximize recovery in filter effluent, the resulting treatment performance evaluation might underestimate the actual performance due to “artificial” blocking caused by microsphere interference. Moreover, this investigation suggests that granular media filters fed by low turbidity uncoagulated waters will suffer from lower removal of *Cryptosporidium*. Future work should evaluate whether the latter conclusion can be extended to engineered systems using coagulation

Acknowledgements: This research was supported by the Industrial-NSERC Chair in Drinking Water Treatment whose industrial partners include the City of Montreal, John Meunier Inc., and the City of Laval. The authors wish to thank the Chair’s personnel for their technical assistance in the laboratory work and I.R. Quevedo (McGill) for assistance with electrophoretic mobility measurements. The authors also acknowledge the financial support of the Canadian Water Network and the Canada Research Chairs program.

CHAPITRE 5 PUBLICATION #3: ASSESSING THE USE OF AEROBIC ENDOSPORES TO DESCRIBE CONVENTIONAL TREATMENT PERFORMANCE IN QMRA

Ce chapitre présente les résultats d'analyse de données historiques provenant de sept usines québécoises de traitement des eaux potables. Les résultats ont permis de démontrer l'importance de la performance propre au site du traitement conventionnel et de déterminer les conditions où l'enlèvement d'indicateurs de traitement (BSA) est moindre. Ainsi, les résultats confirment que la performance du traitement conventionnel n'est pas bien décrite par les crédits d'enlèvement octroyés par la réglementation. Par ailleurs, les résultats de cette analyse démontrent qu'il est pertinent de faire l'usage de BSA à titre d'indicateur de traitement en milieu tempéré. Cet article a été soumis pour publication à *Water Research* le 12 avril, 2013.

ASSESSING THE USE OF AEROBIC ENDOSPORES TO DESCRIBE CONVENTIONAL TREATMENT PERFORMANCE IN QMRA

**Isabelle Papineau^{1*}, Patrick W.M.H. Smeets², Wim A.M. Hijnen²,
Michèle Prévost¹, Pierre Payment³, Benoit Barbeau¹**

¹NSERC Industrial Chair in Drinking Water Treatment, Department of Civil, Geological and Mining Engineering, Ecole Polytechnique de Montreal, P.O. Box 6079, Downtown Station, Montreal, Quebec, Canada, H3C 3A7

²KWR Watercycle Research Institute, P.O. Box 1072, 3470 BB, Nieuwegein, The Netherlands

³INRS-Institut Armand-Frappier, Laval, Quebec, Canada, H7V 1B7

* Corresponding author: Tel.: 1.514.340.4711 x 3727; Fax: 1.514.340.5918;

e-mail: isabelle.papineau@polymtl.ca

Abstract : Aerobic endospore concentrations were monitored within a time span of up to twelve years in seven Canadian drinking water treatment plants. The compiled historical data set was used to evaluate treatment performance in the perspective to identify the key parameters controlling aerobic endospore removal through conventional treatment. The available data was studied by the means of a point estimate analysis, a probability density function (PDF) tails analysis and a forward stepwise regression model. To assess the impact of temperature on aerobic spore-forming bacteria growth within utilities, results obtained in cold water ($\leq 5^{\circ}\text{C}$) were compared to results obtained in warm water ($> 5^{\circ}\text{C}$). Overall, treatment performance was shown to be site specific. Aerobic endospore removal efficiency was mainly related to source water aerobic endospore concentrations. According to the developed regression models, aerobic endospore removal efficiency by conventional treatment may range over 1.7 logs when exposed to minimum and maximum observed sources water aerobic endospore concentrations. No evidence of significant aerobic spore-forming bacteria regrowth was observed within facilities. Results of this investigation demonstrate that conventional treatment performance is not accurately described by constant removal credits as regulated by USEPA. Consequently, they support the use of a site specific description of conventional treatment performance in quantitative microbial risk assessment models determined with removal data of process indicators such as aerobic endospores.

5.1 Introduction

The use of quantitative microbial risk assessment (QMRA) is progressively gaining a wide acceptance in the drinking water industry as a useful methodology to manage microbial risks. QMRA describes the performances of unit processes (e.g. conventional treatment) through probabilistic distribution functions (Regli *et al.* 1991, Teunis & Havelaar 2002). Although the World Health Organization's approach to QMRA is stochastic (World Health Organization (WHO) 2006), in North America the reduction of pathogens achieved through conventional treatment is typically described by the use of set values of removal credits which are granted by the regulatory agencies. To take into account site specific variability due to water treatment plant (WTP) design and operation, additional removal credits can be granted according to filter effluent turbidity (United States Environmental Protection Agency (USEPA) 2006). This strategy does not take into account the impact of source water quality on conventional treatment performance.

Yet, both the analysis of statutory *Cryptosporidium* monitoring data in the U.K. (Smeets *et al.* 2007) and pilot scale experiments (Assavasilavasukul *et al.* 2008b) have shown that source water protozoan pathogen concentrations may influence conventional treatment performance as greater removals were observed at higher source water (oo)cyst concentrations in both studies. These observations clearly highlight the site-specific nature of conventional treatment performance and therefore the challenges of using the USEPA's methodology while conducting a QMRA.

In the Netherlands, a different methodology is used to characterize conventional treatment performance. Site specific monitoring data are generated by assessing fecal pathogens in source water (enterovirus, *Campylobacter*, *Giardia* and *Cryptosporidium*) as well as full scale removal of pathogen-specific process indicators. In the case of *Cryptosporidium* and *Giardia*, spores of sulphite-reducing clostridia (SSRC) were chosen as process indicator to evaluate treatment efficiency (Schijven *et al.* 2011). This approach offers the advantage of accounting for treatment variability due to process design, daily operations but it also yields information with regards to process failure (Hijnen *et al.* 2004, Teunis *et al.* 1997). Direct monitoring of pathogen removal at full-scale is impractical because source water *Cryptosporidium* and *Giardia* concentrations are low and are usually below the detection limit of analytical methods subsequent to a multi-stage treatment (Hashimoto *et al.* 2001, LeChevallier & Norton 1992, Nieminski *et al.* 2000) especially when the annual infection risk of the drinking water should be as low as 10^{-4} per person (Regli *et al.* 1991). Consequently, the low prevalence of positive counts in filter effluent results in an inaccurate evaluation of process efficiency (Emelko *et al.* 2008).

In contrast to protozoan parasites, SSRC and aerobic endospores (AE) are more abundant in source water and thus it is possible to assess their concentration in filtered water even for optimized treatment plants (Hijnen *et al.* 2000a, Mazoua & Chauveheid 2005, Nieminski *et al.* 2000). *Clostridium perfringens* and SSRC have been shown to be potential conservative process indicators for *Cryptosporidium* and *Giardia* removal through conventional treatment (Hijnen & Medema 2010, Hijnen *et al.* 2000a, Payment & Franco 1993). *C. perfringens* concentrations in most source waters are low, but SSRC concentrations are normally high enough to monitor removal through a multiple barrier treatment using high volume sampling in the last stage (Hijnen *et al.* 2000a, Payment *et al.* 2002). AE concentrations are generally present in surface waters in higher concentrations (Mazoua & Chauveheid 2005, Nieminski *et al.* 2000) than SSRC. They have also been shown to be a conservative process indicator for *Cryptosporidium* removal

by conventional treatment (Dugan *et al.* 2001, Huck *et al.* 2002b, Jaidi *et al.* 2009, Nieminski *et al.* 2000, Swertfeger *et al.* 1999). Thus, the use of AE removal data was suggested by the USEPA as a mean to demonstrate greater *Cryptosporidium* removal than what is normally granted by the regulation (United States Environmental Protection Agency (USEPA) 2006). However, the drawback of using AEs as process indicator is that they have the potential to grow within some unit processes which would bias log removal estimations. For example, AE concentrations have been reported to increase subsequent to second stage filtration operated in warm water (Galofré *et al.* 2004, Mazoua & Chauveheid 2005). Some authors hypothesized that this increase was due to bacterial regrowth within the filter bed (Galofré *et al.* 2004); whereas others suggested that it was a result of early breakthrough as these trends were only observed late in the filtration cycle (Mazoua & Chauveheid 2005). Consequently, additional knowledge is needed to weigh the impact of water temperature, influent aerobic endospore concentration and turbidity on the accuracy of process performance evaluation through the use of AEs. Additionally, little information has been reported in the literature either with regards to the seasonal and site-specific variability of AE removal achieved by various full-scale conventional treatment plants. Such variability is of significance as it has proven to range on a log scale (Nieminski & Bellamy 2000).

The general objective of this study is to assess the use of indigenous AEs to describe the performance of conventional treatment for water utilities wishing to conduct a QMRA on their system. Process performance variability may result from process design, operation or source water quality. Thus, the site-specific nature of full-scale process performance with regards to AE removal was investigated through a comparison of similar WTPs in terms of design and operation but fed with different source water quality. Secondly, the variability in AE removal by conventional treatment was assessed to evaluate the significance of fluctuating source water turbidity and AE concentration on process performance. This was done in order to further understand the significance of the relation between source water (oo)cyst concentration and removal by conventional treatment previously reported in the literature. Thirdly, this study discusses the rationale behind the use of AEs as process performance indicator for physico-chemical processes despite the fact that these microorganisms may regrow within a water facility. These objectives were achieved by conducting an in-depth evaluation of a unique database of routine AE monitoring performed over several years at seven water utilities located in southern Quebec (Canada).

5.2 Methods

5.2.1 Description of evaluated treatment plants and data

This study used full-scale monitoring data which were provided by seven Canadian conventional WTPs supplied by river waters. All of these WTPs have been conducting routine non-regulatory aerobic endospore (AE) monitoring. Table 5.1 summarizes information with regards to the treatment regime and the sampling period selected for each WTP. All seven WTPs use a very similar treatment strategy including sludge blanket clarifiers followed by rapid granular media filters (4 anthracite/sand, 2 GAC/sand and 1 monomedia sand). Six of the chosen utilities are members of the AWWA Partnership for Safe Water program whose mission is to improve drinking water quality through operational optimization. This allowed a comparison of site specific treatment performance among six WTPs which are, in our opinion, operated under optimized condition for particle and natural organic matter (NOM) removal. The remaining utility was kept as a reference to highlight performance under sub-optimal operation.

All surveyed WTPs monitored AE concentrations in source water and in filtered effluent. Most utilities also monitored clarifier effluent AE concentrations (all but WTP E and G). A total of 2,036 AE measurements were compiled and the number of samples per WTP is listed in Table 5.2. The available data set also consists of source water temperature data expressed in Celsius as well as paired source water, clarifier effluent and filtered effluent turbidity data expressed in nephelometric turbidity units (NTU).

AEs were quantified according to the method described in Barbeau *et al.* (1997). The sample volume analyzed varied per treatment step but was roughly in the order of 1 to 5 mL for source water, 50 to 100 mL for settled water and equivalent or greater than 1 L for filtered water. The fraction of positive counts decreased with increased level of treatment. All source water data were positive. Clarifier effluent data were greater than 94% positive while filter effluent data were generally greater than 93% positive to the exception of WTP G (59%) and WTP D (67%). For the needs of this study, no extrapolation below the detection limit was done due to the high incidence of positive counts and the data below detection limit were simply excluded from the analyses.

Table 5.1. Source, treatment regime and sampling period per water treatment plant.

WTP ¹	Source (river)	Coagulant	Clarifier	Filter	Period
A	Chaudière	Alum ²	Sludge blanket	Sand	2000-2001
B*	Des Prairies	Alum	Sludge blanket	ANT ³ /Sand	2000-2012
C*	Des Prairies	Alum	Sludge blanket	ANT /Sand	2000-2012
D*	L'Assomption	Alum	Sludge blanket	ANT /Sand	2000-2006
E*	Des Mille-Iles	Alum	Sludge blanket	GAC ⁴ /Sand	2009-2011
F*	Des Mille-Iles	Alum	Sludge blanket	ANT /Sand	2000-2012
G*	Bulstrode	Alum	Sludge blanket	GAC /Sand	2008-2009

¹WTP - Water treatment plant² Alum - Aluminum sulphate³ ANT - Anthracite⁴ GAC - Granular Activated Carbon

*Member of the Partnership for Safe Water program.

Table 5.2. Available aerobic endospore data (log CFU L⁻¹).

WTP ¹	Source water			Clarifier effluent			Filtered effluent		
	N	Mean	SD	N	Mean	SD	N	Mean	SD
A	35	4.60	0.30	35	2.75	0.39	34	1.73	0.77
B	83	4.36	0.43	83	2.53	0.50	82	0.92	0.52
C	98	4.28	0.45	98	2.57	0.52	92	0.97	0.57
D	338	4.38	0.67	319	2.24	0.56	227	1.26	0.63
E	47	4.39	0.55	-	-	-	47	0.50	0.60
F	121	4.40	0.45	120	2.73	0.47	115	0.88	0.52
G	39	4.99	0.47	-	-	-	23	1.27	0.34

¹WTP - Water treatment plant

5.2.2 Data Analysis

The general objective of these analyses were to assess (i) the site specificity of process performance, (ii) the relation between AE process efficiency and fluctuations of both source water turbidity and influent AE concentrations, and (iii) the impact of bacterial regrowth on treatment performance evaluation through the use of AEs. To reach these objectives, four different data treatment approaches were used to analyze the available data set: a complementary cumulative distribution function (CCDF), a point estimate analysis, a probability density function (PDF) tails analysis and a forward stepwise regression model. CCDFs were used to allow a graphical analysis of the site specificity of AE monitoring data for each treatment step. The point estimate analysis was used to summarize the available data but also to assess the overall influence of source water turbidity and source water AE concentrations on conventional treatment performance. The PDF tails analysis, was used to assess if treatment performance of individual WTPs was related to influent AE concentrations but also to determine if similar trends were observed among all studied WTPs. The regression model was used to simultaneously evaluate all three objectives but also to better understand the relative influence on treatment efficiency of turbidity and of AE concentration fluctuations in source waters. This approach was also used to gain knowledge on the possible bias in removal estimates due to bacterial regrowth.

Complementary cumulative density functions (CCDF), also called survival curves, show on a log scale the probability of exceedance of a given concentration. This technique was used to visualize available AE monitoring data.

Point estimate analysis consists in evaluating the relation between the point estimate of AE removal of each WTP in warm ($> 5^{\circ}\text{C}$) as well as in cold ($\leq 5^{\circ}\text{C}$) water as a function of the arithmetic mean source water turbidity or source water AE concentration (excluding data below detection limit). The point estimate of AE removal was calculated as described below.

$$\text{Point estimate of AE removal} = -\text{Log} \left(\frac{\bar{X}_{\text{influent AE concentration}}}{\bar{X}_{\text{effluent AE concentration}}} \right) \quad (\text{Equation 5.1})$$

This approach was adopted for illustrative purposes in order to identify the general trends and to allow comparisons with published literature.

PDF tails analysis was adopted to compare the AE removal efficiency of a given utility when fed with low ($\leq 25^{\text{th}}$ percentile) versus high ($\geq 75^{\text{th}}$ percentile) influent AE concentrations. This approach was used to assess treatment performance when exposed to high as opposed to low source water AE concentrations. The influence of source water AE concentration fluctuations on sedimentation as well as granular filtration performance was evaluated and the interdependency of these processes was assessed. To test if the observed differences of treatment efficiency under low and high influent AE concentrations were of statistical significance, a non-parametric Mann-Whitney test was conducted with Statistica 10 (Statsoft, OK, USA). WTPs with 3 or less positive data in either group (AE removal under either low or high influent AE concentration) were not included in this analysis (WTP G in cold water and WTP A in warm water). Consequently, a minimum of 6 measurements per group (low or high) was available for each WTP included in this analysis.

Forward stepwise regression modeling was used to understand the variability in AE effluent concentrations using influent AE concentrations, turbidity and water temperature as predictors. Regression models were developed in Statistica 10 by predicting log transformed AE concentrations in clarifier or filter effluents. A log transformation was selected as both influent and effluent concentrations were found to be distributed on a log-scale. A forward stepwise regression was chosen to solve the potential issue of collinear variables. Potential independent variables at the start of the step-forward process included one categorical variable (WTP site) and four continuous variables (log-transformed influent AE concentration, water temperature, effluent and influent turbidities). The ANOVA resulting from these regression models were assessed to conclude on the significance of each candidate variable using a significance level of $\alpha = 0.05$.

To verify if regrowth of AE forming bacteria within a treatment plant could bias the evaluation of treatment performance, process data were sorted in two periods of water temperature. Because AE regrowth is expected to be negligible below 5°C , the data set was divided in two groups: cold $\leq 5^{\circ}\text{C}$ and warm $> 5^{\circ}\text{C}$. Each group roughly represents six months of operation.

5.3 Results

5.3.1 Description of available data

Overall, source water turbidity data ranged from 0.7 to 328 NTU. Mean source water turbidities were not statistically different for 6 of the 7 WTPs ($p > 0.05$), the outlier WTP D, experienced significantly higher source water turbidity ($p < 0.05$) than all other WTPs but WTP G ($p > 0.05$). Most recorded turbidity peaks in source water were associated with seasonal events, especially spring snowmelt. Moreover, no significant differences ($p > 0.05$) were observed among the arithmetic mean of log transformed source water AE concentrations of most WTP (6 / 7) to the exception of WTP G where the mean concentration proved to be significantly higher ($p < 0.05$). Reported source water AE concentrations ranged from 3.8×10^2 to 9.3×10^5 CFU 100 mL⁻¹ and were similarly distributed for each WTP. Minimum and maximum source water AE concentrations were also explained by seasonal variations due to the ice cover, spring melt and/or runoff. These seasonal trends proved to be watershed specific but nonetheless most utilities (6 / 7) experienced maximum source water AE concentrations during spring (results not shown). Figure 5.1 summarizes source water monitoring data (turbidity and AE concentrations) per WTP.

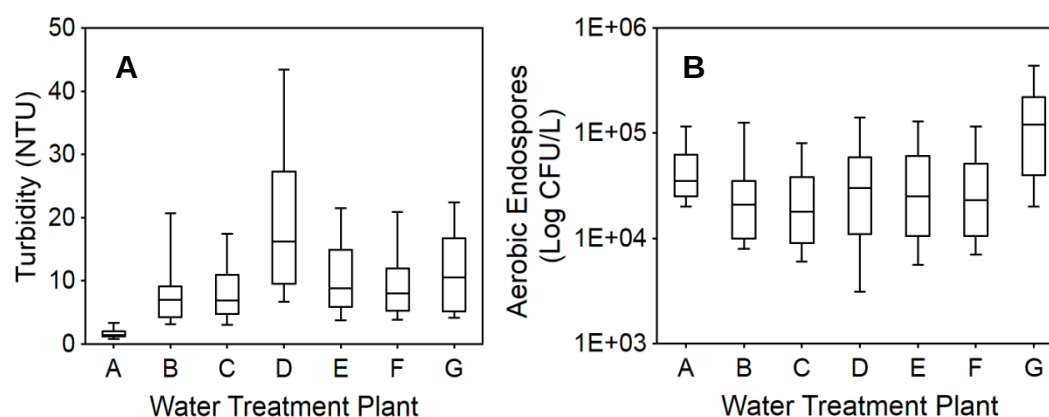


Figure 5.1: Median (A) source water turbidity and (B) median source water aerobic endospore concentration of surveyed water treatment plants. Boxes represent the 25th and 75th percentile while whiskers represent the 10th and 90th percentile.

5.3.2 Influence of source water turbidity and aerobic endospore influent concentration on treatment performance

5.3.2.1 Approach 1: CCDF

Figure 5.2 reveals that the data is accurately described by the mean concentration per WTP since it is not dominated by rare events of very high concentration or too many data being below detection limit (Smeets *et al.* 2010). To the exception of WTP G, all utilities exhibit a similar distribution of occurrence of AE concentrations in their source water whereas greater variability is observed after each treatment step. Thus, the greatest discrepancies among AE distributions for the different treatments were observed in filtered water. This observation is of particular interest as it confirms the site specificity of process performance. Specifically, WTP A yielded the highest filtered effluent AE concentrations. WTP D generated the broadest distribution of filtered effluent AE concentrations where higher concentrations than observed for all other WTPs (to the exception of WTP A) occurred at a low frequency. Finally, WTP E exhibited the lowest filtered effluent concentrations.

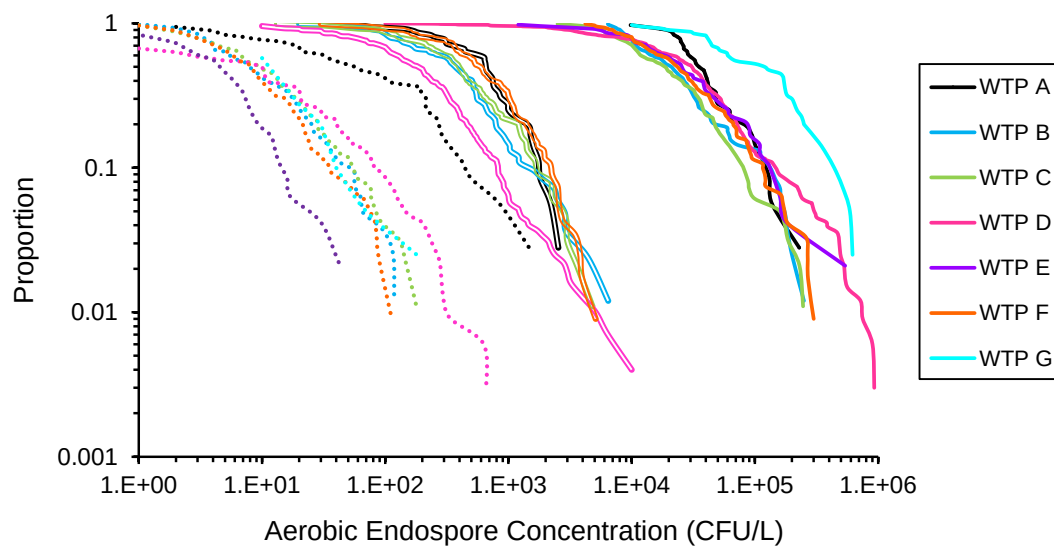


Figure 5.2: Complementary cumulative density function of aerobic endospore concentration per water treatment plant (WTP) in source water (bold lines), clarifier effluent (empty lines) and filter effluent (dotted lines).

5.3.2.2 Approach 2: Point estimate analysis

No trends were observed between mean source water turbidity and the point estimate of AE removal of each WTP (Figure 5.3A). This was expected as for most WTPs source water turbidity and AE concentrations did not prove to be statistically correlated (data not shown). Such result suggests that the mean source water turbidity has little to no impact on AE removal by conventional treatment in warm waters, cold waters or combined data. Interestingly, the behavior of WTP A was significantly different from the other six WTPs as portrayed by the CCDFs in Figure 5.2. This water facility was the utility non-member of the Partnership for Safe Water program and was known to be operating under suboptimal coagulation throughout the sampling period (the 95th percentile of filtered effluent turbidity data was 0.29 NTU). Thus, sub-optimal coagulation in WTP A clearly yielded the lowest process performance for turbidity and AE removal in cold water. This was expected as the role of coagulation is of paramount importance to explain conventional treatment performance (Cleasby *et al.* 1989, Patania *et al.* 1995). For the other 6 WTPs, the relation between influent AE removals and treatment performance were observed to be temperature dependent (Figure 5.3B). In cold water, the mean source water AE concentrations seem positively related to the point estimate of AE removal. This trend was also observed when pooling all available data. However, no similar trend was observed in warm water. It is important to note that the highest influent AE concentrations were observed during spring melt when the water temperature was less than 5°C. This probably explains why the observed relation among source water AE concentrations and AE removal is temperature-dependent.

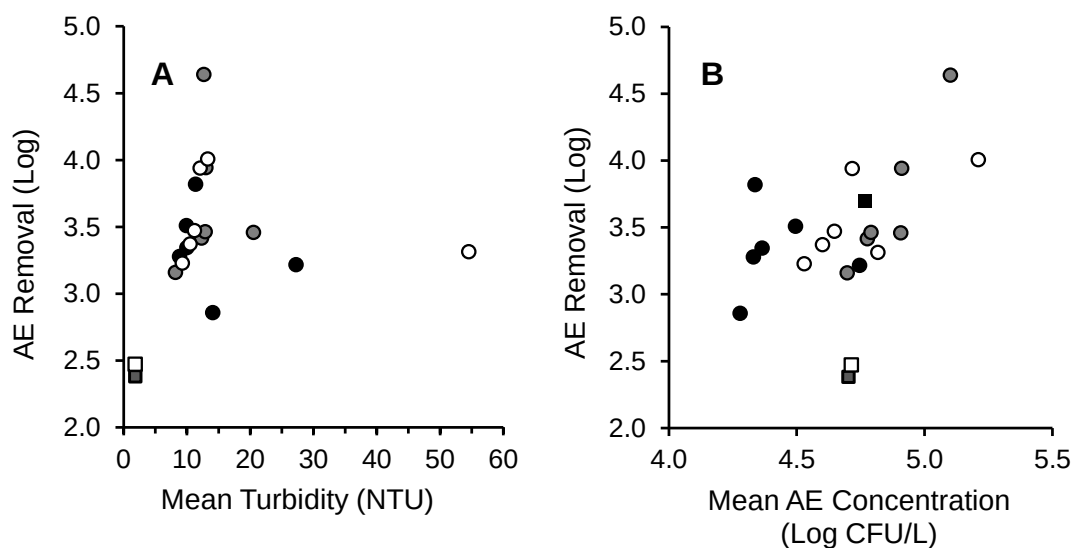


Figure 5.3: Point estimate of aerobic endospore (AE) removal of conventional treatment as a function of (A) mean source water turbidity and (B) mean source water AE concentration per water treatment plant (WTP). Bold symbols represent data obtained in warm water ($> 5^{\circ}\text{C}$), grey symbols data in cold water ($\leq 5^{\circ}\text{C}$) and empty symbols all data. Circles represent WTPs operated under optimal coagulation and squares represent the WTP operated under suboptimal coagulation.

5.3.2.3 Approach 3: PDF tails analysis

Figure 5.4 presents AE removals calculated for each WTP under low ($\leq 25^{\text{th}}$ centile) and high ($\geq 75^{\text{th}}$ centile) influent AE concentrations. This investigation supports the hypothesis that higher influent AE concentrations leads to greater AE removals. Under high influent AE concentrations ($\geq 75^{\text{th}}$ percentile), all WTPs to the exception of sub-optimally coagulated WTP A improved their median performance in cold waters (which improvement ranged from 0.3 to 1.4 logs) (Figure 5.4 C1). The higher AE removals in cold water can be attributed to an increased performance of sedimentation rather than granular filtration as illustrated in Figure 5.4 A1 and 5.4 B1. It is interesting to note that water temperature during spring melt is generally below 5°C and that the spring melt season (March and April) represent 33 % of the available cold water ($\leq 5^{\circ}\text{C}$) dataset. Therefore, it includes most of the high turbidity events associated with spring melt which is frequently concomitant with elevated AE concentrations. This is concurrent with previously reported observations where higher source water turbidities resulted in greater *Cryptosporidium* removal by conventional treatment (Dugan *et al.* 2001).

Under warm water conditions, higher influent AE concentrations also led to an increase in median performance of most WTP (all but WTP B). However, this trend only proved to be statistically significant for WTP D and G (1.0 log and 1.4 logs increase respectively) (Figure 5.4 C2). This observation is concurrent with the significantly ($p < 0.05$) improved performance of sedimentation for AE removal by WTP D (no data were available for WTP G) (Figure 5.4 A2). However, a greater influence of high influent AE concentrations was observed for granular filtration (Figure 5.4 B2). AE removal by granular filtration significantly increased at higher influent AE concentrations and so, at three out of the four WTPs for which the analysis could be conducted. As for the increased performance of the fourth WTP (WTP C), it did not prove to be of statistical significance. Yet, the calculated p-value ($p = 0.07$) was close to the significance level. The forward stepwise regression model was developed to better understand these trends.

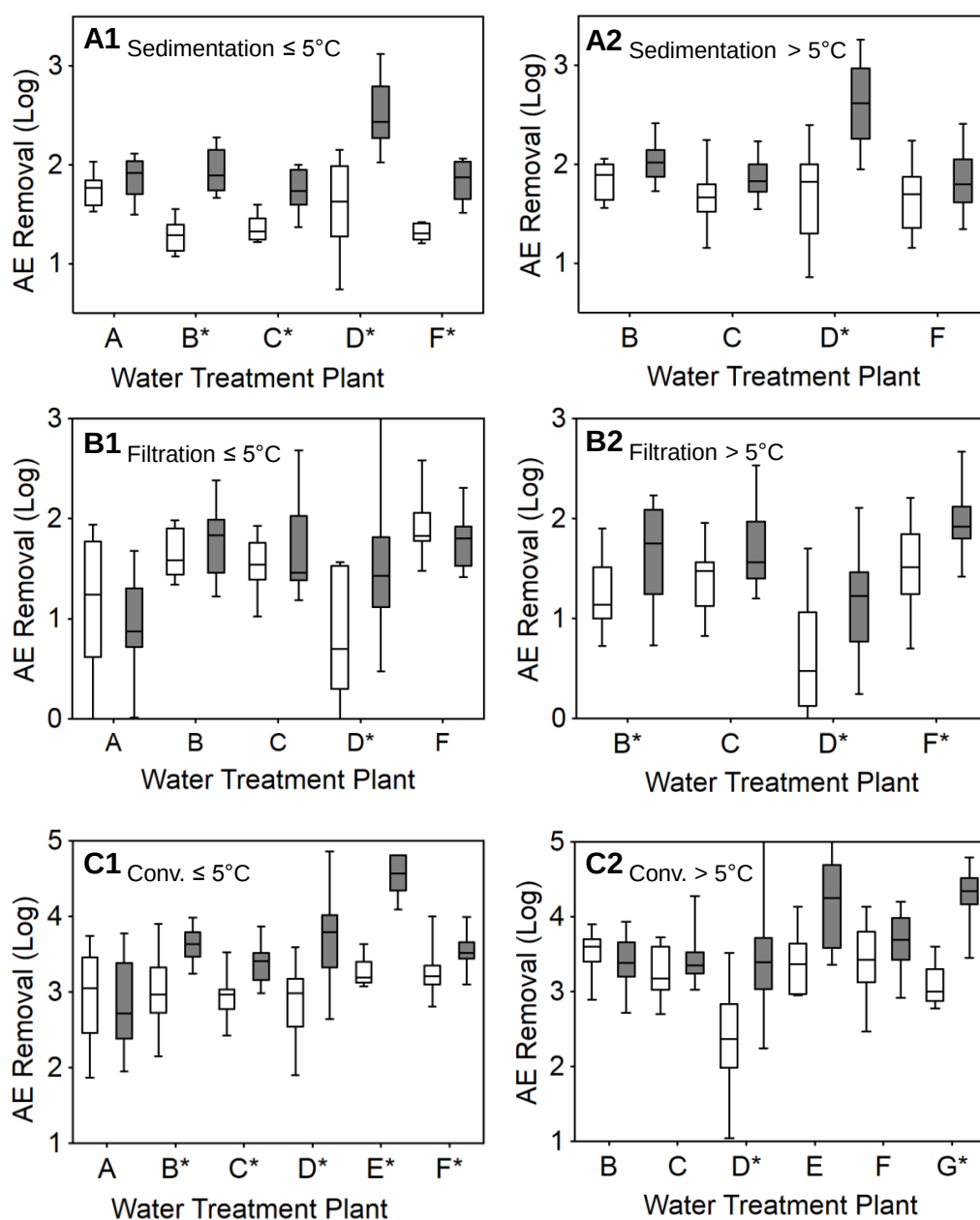


Figure 5.4: Median aerobic endospore (AE) removal by (A) sedimentation, (B) granular filtration and (C) conventional treatment (Conv.) in (1) cold ($\leq 5^{\circ}\text{C}$) and (2) warm ($> 5^{\circ}\text{C}$) water per water treatment plant (WTP). Boxes represent the 25th and 75th percentile while whiskers represent minimum and maximum values. Empty boxes represent removal under low influent AE concentrations ($\leq 25^{\text{th}}$ percentile) and grey boxes removal under high influent AE concentrations ($\geq 75^{\text{th}}$ percentile). Statistical differences determined by a Mann-Whitney test are distinguished by a star next to the WTP annotation ($p < 0.05$).

5.3.3 Approach 4: Step Forward Regression Model

For the purpose of this analysis, WTP A was excluded from the data set used to develop the regression models as it was operated under suboptimal coagulation and proved to significantly differ from other utilities according to the results obtained with approaches 1, 2 and 3. WTP G was also excluded from the regression model developed in cold water due to the low prevalence of AE positive counts in filtered effluent during that period of the year. The contributions of each variable to the forward stepwise regression models are summarized in Table 5.3. Results demonstrate that influent AE concentration is the most important independent variable to predict effluent AE concentrations through sedimentation, granular filtration as well as through conventional treatment, and so, independently of water temperature. This was expected as effluent AE concentrations is related to influent AE concentrations even if the log removal is constant across a process. The categorical variable WTP was listed as the parameter of second importance in all models with the exception of granular filtration in cold water. This site specificity reveals the important role of local conditions on the performance of physico-chemical processes. Effluent turbidity was also found to be a significant factor affecting effluent AE concentrations and was included in all models, with the exception of granular filtration in warm water. This significant contribution supports process effluent turbidity monitoring as an online indication of treatment performance. Nonetheless, the fact that filtered effluent turbidity was less of a predictor of effluent AE concentrations within the regression model than the WTP variable suggests that identical effluent turbidities at two WTPs may not yield equivalent AE log removals. Water temperature proved to be a parameter of fourth importance in warm water (sedimentation, filtration and conventional treatment), but was of no significance in cold water and was therefore excluded from the model. This was expected as temperature varied within a narrow range in cold water (1-5°C). According to the models developed for warm water (> 5°C), a temperature increase will improve AE removal by sedimentation, but will decrease AE removal by filtration and by conventional treatment (as shown in Table 5.3). Source water turbidity was only included in the regression models developed for sedimentation in warm water (> 5°C) and for conventional treatment in cold water ($\leq 5^{\circ}\text{C}$). However, it proved to be the parameter of least importance in both models and, removing it, had very little impact on model predictions (data not shown). Finally, none of the tested variables used to develop the regression models were shown to be collinear.

To assess if AE removal was independent of influent AE concentration (as is assumed when granting constant log removal credits), a t-test was conducted to confirm that the slopes of each regression model were significantly different than unity (as described by constant removal credits). Under conditions where higher influent AE concentrations lead to higher AE removals, slopes of regression models would be lower than unity (and conversely). Results of this analysis revealed that the slope of all regression models were significantly lower ($p < 0.05$) than unity. Thus, all models predict that higher influent AE concentration will lead to higher AE removal for sedimentation, granular filtration and conventional treatment. In other words, AE removals are not accurately described by fixed log removal credits.

Table 5.3. Analysis of variance (%) of the regression model (forward stepwise) developed to predict effluent aerobic endospore concentrations.

Variable	Cold Water ($\leq 5^{\circ}\text{C}$)			Warm Water ($> 5^{\circ}\text{C}$)			All Data
	Sed. ¹	Filtration	Conv. Treat. ²	Sed.	Filtration	Conv. Treat.	Conv. Treat.
AE _{inf} ³	18 %	13 %	19 %	14 %	29 %	15 %	17 %
WTP ⁴	10 %	Pooled	7 %	6 %	19 %	15 %	8 %
TURB _{eff} ⁵	2 %*	6 %*	3 %*	2 %*	Pooled	1 %*	1 %*
TEMP ⁶	Pooled	Pooled	Pooled	2 %	2 %*	1 %*	Pooled
TURB _{inf} ⁷	Pooled	Pooled	1 %	1 %	Pooled	Pooled	1 %
INT ⁸	6 %	3 %	8 %	0 %	6 %	7 %	7 %
Adjusted R ²	0.48	0.23	0.37	0.37	0.46	0.44	0.37

¹ Sed. - Sedimentation² Conv. Treat. – Conventional Treatment³ AE_{inf} - Influent aerobic endospore concentration (log CFU L⁻¹)⁴ WTP - Water treatment plant⁵ TURB_{eff} - Effluent turbidity (NTU)⁶ TEMP - Temperature (°C)⁷ TURB_{inf} - Influent turbidity (NTU)⁸ INT - Intercept

* Negative impact on removal: a higher value results in a higher effluent aerobic endospore concentration.

5.4 Discussion

5.4.1 Limitation of using fixed removal credits

The current investigation demonstrates that source water turbidity, source water AE concentrations as well as other site-specific factors (design and operation) influence conventional treatment performance. Although AE treatment efficiency was marginally influenced by source water turbidity, it proved to be significantly related to source water AE concentrations. As the maximum surveyed AE concentrations were observed during spring melt (in 6 of 7 WTPs) which is concurrent with high turbidity events, we hypothesize that the relation between influent AE concentrations and AE removal may conceal the impact of source water turbidity. Specifically, at least 50% of indigenous AEs in source waters in the same geographical area have been reported to be aggregated to particulate matter. The proportion of aggregation has also been shown to be more important under high particulate loads (Caron *et al.* 2007). Consequently, the relation between source water AE concentration and AE removal may partially reflect the increased source water particulate load observed during spring melt which not only results in higher coagulant dosages and increased flocculation kinetics but also in a higher proportion of AEs associated to particulate matter which could translate in increased settling velocity. This was particularly discernible in the PDF tails analysis as it portrays events such as peak influent AE concentration observed during spring melt. However a more global analysis of the available data set such as the point estimate analysis and regression models were less sensitive to discriminate this phenomenon. The lack of correlation between AE removal and source water turbidity in the current study appears to contradict previously reported data indicating that source water turbidity and SSRC removal were correlated (Hijnen 2009). These observed discrepancies may be explained by the coagulation regime. In fact, to the exception of WTP A, all facilities surveyed in this investigation practiced enhanced coagulation to remove NOM. Consequently, their performances were probably more impacted by fluctuations in NOM than by variations of the particulate load. Thus, the impact of source water turbidity on process indicator removal might be dependent on the coagulation strategy. Furthermore, the use of enhanced coagulation may also explain why the observed AE removal achieved by conventional treatment in the current study (average of 1.8 – 2.5 logs; Figure 5.3) is higher than the removal of bacterial spores (SSRC and

AE combined) by coagulation-flocculation compiled in a literature review (1.4 ± 0.6 logs; 10 studies, 92 data points; Hijnen & Medema 2010).

AE removals were strongly related to AE influent concentrations. Firstly, results obtained with the point estimate analysis in cold water corroborate previously published data with regards to the correlation between *Cryptosporidium* influent concentration and its removal (Smeets *et al.* 2007). Even under optimized treatment conditions, AE removal proved to be largely site-specific. For example, point estimates of AE removals of optimized WTPs ranged from 3.2 logs to 4.6 logs under cold water conditions. As shown by the regression models, some of this variability among paired data per WTPs is attributable to the influent microbial concentration. According to the conventional treatment regression model, if the influent AE concentration increases from the minimum ($3.80 \text{ CFU} \times 10^2 \text{ } 100\text{mL}^{-1}$) to the maximum reported concentrations ($9.3 \times 10^5 \text{ CFU } 100\text{mL}^{-1}$) and all other parameters within the model equation remain constant, differences in predicted effluent AE concentrations translate in a 1.7 log increase in AE removal. This corroborates the observed variation among reported AE removal by conventional treatment (assessed with paired data) which ranges over 1.5 logs when exposed to minimum and maximum reported source water AE concentrations. Clearly, this constitutes a significant fluctuation in performance. Consequently, the use of constant removal credits is misleading as they are granted independently of source water quality (e.g. microbial concentration) and of site specific performance.

More importantly, it is of interest to understand whether such performance variability may lead to an insufficient treatment in some WTPs. To put this in perspective, the daily paired AE removal data reported in this study were transformed into log equivalent *Cryptosporidium* reduction using the correlation proposed by Jaidi *et al.* (2009) ($\text{Log } \textit{Cryptosporidium} = \text{Log AE} / 0.57$). Results indicate that the range of observed AE removals correspond to equivalent *Cryptosporidium* removals of 1.8 to > 5.6 logs. Overall, the treatment objective of 3 logs *Cryptosporidium* removal was met in all WTPs to the exception of WTP A and WTP D where it was respectively met 97 % and 98 % of the time. Although this 2 to 3 percent of time where the treatment objective for *Cryptosporidium* removal is not met might appear negligible, it is of public health significance. Consequently, bacterial endospore data may not only be used in the framework of QMRA to describe conventional treatment performance but could also be used to validate if a given utility meets regulatory treatment requirements.

The importance of site specific performance of conventional treatment was also confirmed by the regression models which indicate that performance variability among WTPs can mostly be attributed to variations in sedimentation performance. This conclusion was reinforced by results obtained through the AE PDF tails analysis where an increased performance according to influent AE concentrations was particularly attributed to enhanced sedimentation performance. Sedimentation is exposed to a broader range of influent water quality as well as to a wider range of AE concentrations than filtration. Thus, the available data demonstrate that microbial removal is not only related to influent microbial concentrations but also a function of the WTP. This conclusion supports the recommendation that water utilities should derive their own specific treatment performance data rather than rely on fixed removal credits. Although performance evaluation was done separately for sedimentation and granular filtration in this study, when conducting QMRA, one should target the combined performance of both processes as their individual performance is interdependent.

5.4.2 Impact of water temperature

Under warm water conditions, decreased AE removals were observed for granular filtration and conventional treatment. According to the developed regression models a utility exposed to the same conditions (influent AE concentration, influent and effluent turbidity) but experiencing a temperature increase equivalent to the range of monitored temperatures (5°C to 28°C for the warm water models) would undergo an average decrease in performance of only 0.3 log. Although it could be hypothesized that this lower performance is due to bacterial regrowth within the filter bed, it could also result from the increased filter loading rates in warm waters (roughly 50 % higher for the WTPs investigated). Among other potential confounding factors, the procedure of data pairing may have skewed some removal estimations as samples were not paired hydraulically but rather paired by date. In addition, the time at which samples were collected during the filtration cycle may have impacted our data analysis. For example, microbial breakthrough may precede particle and turbidity breakthrough which dictate the filtration cycle (Emelko *et al.* 2003). Lastly, high loads of persistent endospores that accumulate and survive within the filter bed may result in a constant release and delayed breakthrough of detached endospores or release of peak spore concentrations in the filter effluent (Hijnen *et al.* 2000a, Mazoua & Chauveheid 2005). For the reasons listed above, more research is needed in control

settings to evaluate the impact of source water temperature on the ability to accurately describe filtration performance with AE data. However, results from the current investigation demonstrate that this impact is most likely marginal and, consequently, that AE monitoring in temperate climates should not be excluded on the premises of a regrowth issue within granular media filters.

5.4.3 Limitations to the use of aerobic endospore data

The analysis of this historical data set highlights that process performance is site-specific even for optimized water utilities with similar treatment trains and geographical location. As a consequence, routine bacterial endospore data should be used to describe the site specific performance of conventional treatment as it takes into account variations of source water quality, operation and typical treatment failures (Hijnen *et al.* 2004). Similarly, other treatment indicator data may be used in the scope of water safety plans as they provide feedback to utilities with regards to process vulnerability (Medema & Smeets 2009, Smeets *et al.* 2010). Nevertheless, water utilities located in areas where water temperature is high throughout the year should be cautious as the marginal impact of water temperature observed in this study may not be transposable to largely different water conditions. As most AE forming bacteria are members of the *Bacillus* genus (Rice *et al.* 1996), of which many species' optimal growth temperature is greater than 25°C but more importantly greater than 30°C (Warth 1978), growth of aerobic spore-forming bacteria within a given process unit may be more important in warmer waters (e.g. tropical climates). If present in sufficient numbers in source water, the use of SSRC represents a potential alternative to AEs. The use of SSRC would yield a less disputable evaluation of process performance as these anaerobic endospores should be less prone to grow in granular media filters. However, for many source waters the concentrations of SSRC are largely inferior to AEs (Galofré *et al.* 2004, Mazoua & Chauveheid 2005, Nieminski *et al.* 2000). For example, concentrations of *C. perfringens* spores (the larger fraction of SSRC according to Sartory *et al.* (1993)) have been reported to be 1 log to 4 logs lower than AE concentrations for the source waters investigated in this study (Payment *et al.* 2000). Large volume filtration has been proposed by Hijnen *et al.* (2000b) as a mean to improve the detection limit of SSRC measurements to allow full-scale treatment performance evaluation (Hijnen *et al.* 2004). For some systems, increasing recovery through large volume filtration may still be insufficient to provide a good estimate of performance indicator removal as the particulate matter accumulating

on the membrane filter may cause an underestimation of bacterial endospore concentration (Cartier *et al.* 2007). Consequently, such high volume sampling should always be validated. In summary, water utilities wishing to implement routine bacterial endospore analysis should first evaluate the abundance of both SSRC and AEs in raw water but also consider the potential AE regrowth issue in their aquatic environment.

5.5 Conclusions

This investigation demonstrates that site-specific microbial data should be favored over the use of fixed removal credits while performing a QMRA as they account for site specific process performance due to design and operation as well as seasonal effects of water characteristics. Furthermore, results show that conventional treatment AE removal efficiency is related to influent AE concentrations. This proved to be significant in all six WTPs operated under an optimal coagulation regime and appears to be driven by sedimentation performance (as shown by the PDF tails analysis). Consequently, the attribution of removal credits according solely to filtered water turbidity may be insufficient to capture the impact of source water quality. The use of aerobic endospores as performance indicators of conventional treatment in the current study proved to be appropriate as they were prevalent in sufficient numbers in filtered waters to accurately assess treatment performance and were not seen to be largely dependent on water temperature (which would have suggested a regrowth issue). In the meanwhile, historical data offers a more accurate description of conventional treatment performance than removal credits and consequently ought to improve the accuracy of risk calculations. In summary, a thorough analysis of historical process indicator data on a routine basis would inform water utilities of the vulnerabilities of their system particularly with regards to conditions where regulatory treatment requirements are not met.

Acknowledgements: The authors acknowledge the Industrial NSERC Chair in Drinking Water Treatment and its industrial partners, namely the City of Montreal, John Meunier Inc. and the City of Laval. They would also like to express their gratitude to Prof. C.N. Haas (Drexel University) for his advice and guidance on statistical analyses. We also wish to thank the participation of Annie Carrière, Annie Locas, Antoine Laporte, Daniel Duchesne, Denis Allard, Erika Deziel, Josée Coallier, Nathalie Bélanger and Roger Valiquette. Finally, the authors would like to acknowledge the financial support of the Canadian Water Network.

CHAPITRE 6 DISCUSSION GÉNÉRALE

Au cours des dernières décennies, plusieurs auteurs ont étudié la conception et l'opération des procédés de filtration afin d'informer les instances réglementaires des pratiques qui favorisent l'enlèvement de *Giardia* et *Cryptosporidium*. À titre d'exemple, plusieurs auteurs ont étudié le cycle de filtration (Emelko *et al.* 2003, Huck *et al.* 2002a, Huck *et al.* 2002b, Logsdon *et al.* 1981, Patania *et al.* 1995), la perte de coagulation ou coagulation sous optimale (Dugan *et al.* 2001, Logsdon *et al.* 1981, Ongerth *et al.* 1995), l'usage d'indicateurs de performance indirecte comme la turbidité et les comptes de particules (LeChevallier & Norton 1992, McTigue *et al.* 1998, Patania *et al.* 1995, Xagorarakis *et al.* 2004), mais peu se sont intéressés à l'influence de la concentration initiale de kystes et d'oocystes sur la performance de ces procédés (Assavasilavasukul *et al.* 2008a, Assavasilavasukul *et al.* 2008b, Hendricks *et al.* 2005, Smeets *et al.* 2007). Dans le même ordre d'idée, peu d'auteurs se sont intéressés à l'impact de la colonisation bactérienne de matériaux filtrants sur la rétention de kystes ou d'oocystes. D'ailleurs, les comparaisons directes de performance relevées dans la littérature scientifique se sont limitées à un seul type de matériau filtrant. Plus précisément, ils ont étudié les variations de performance de colonnes de billes de verre (Dai & Hozalski 2002) et de CAG à base minérale (Hijnen *et al.* 2010). Conséquemment, cette discussion générale met en perspective les résultats obtenus dans le cadre de cette thèse qui avait pour objectif de quantifier l'enlèvement de protozoaires parasites dans des filtres granulaires en fonction de (i) leur concentration initiale ainsi que celles de particules et (ii) des caractéristiques du filtre.

L'ensemble des travaux menés a permis d'évaluer une série de paramètres qui influencent l'enlèvement de protozoaires parasites par les procédés de filtration granulaire. Les données cumulées ont permis, dans un premier temps, d'approfondir les connaissances par rapport à l'impact du développement de biofilm en surface des matériaux filtrants sur la rétention de *Cryptosporidium*, et ce, en fonction du type de matériau filtrant utilisé. Dans un deuxième temps, elles ont permis d'évaluer l'impact de variations de qualité d'eau brute (concentration de microorganismes et de particules d'argile) sur la performance de procédés de filtration. Dans un troisième temps, les résultats ont permis d'aborder une discussion quant à l'usage d'endospores de BSA à titre d'indicateur de traitement pour décrire la performance du traitement conventionnel propre au site dans un contexte québécois. Ainsi, cette discussion générale traitera de chacun des

thèmes précédemment énumérés en qui concerne l'originalité, la contribution scientifique et les limites des résultats obtenus.

6.1 Influence des propriétés des matériaux filtrants

Les matériaux filtrants communément utilisés en usine (sable, anthracite et CAG) diffèrent en fonction de leur forme, de leur teneur en métaux et de leur capacité d'adsorption. Ainsi, il est d'intérêt de comprendre les paramètres et les propriétés de surface qui gouvernent la rétention de protozoaires parasites au sein du lit filtrant, mais aussi de déterminer si ceux-ci sont toujours d'importance après vieillissement (colonisation bactérienne). Les résultats obtenus dans le cadre de ce projet d'études doctorales se distinguent par la robustesse du plan expérimental utilisé. Ceux-ci ont permis une comparaison directe de l'enlèvement de *Cryptosporidium parvum* par des filtres identiques en matière d'opération, de dimensionnement, de granulométrie, de qualité d'eau et de vieillissement. Aucune étude du genre n'a été relevée dans le cadre de la revue de la littérature.

6.1.1 Influence du type de matériaux

La forme et la teneur en métaux des matériaux filtrants expliquent certaines des différences de rétention de *Cryptosporidium parvum* observées entre les colonnes de matériaux neufs (sable, d'anthracite et de CAG). Comme discuté au chapitre 3, l'efficacité d'enlèvement supérieure de l'anthracite et du CAG par rapport au sable s'explique, en partie, par l'angularité/rugosité de ces matériaux (Figure 3.6). En général, le sable offre une performance plus faible que l'anthracite et le CAG. Cette constatation corrobore les résultats d'une étude précédente qui a démontré que l'enlèvement physique était plus important lorsque des matériaux plus angulaires étaient utilisés (Tufenkji *et al.* 2004). D'autre part, les différences de performances observées entre les colonnes de sable, d'anthracite et de CAG s'expliquent aussi par la teneur en métaux des matériaux neufs (Tableau 3.4). La performance supérieure de l'anthracite par rapport au sable s'explique par une concentration plus importante d'aluminium et de fer en surface des grains d'anthracite. Cette observation corrobore les résultats d'études antérieures qui démontrent que l'enlèvement d'oocystes est fonction de la teneur en oxydes d'aluminium et de fer des matériaux (Abudalo *et al.* 2005, Metge *et al.* 2010). De la même façon, la performance supérieure du CAG par rapport à l'anthracite s'explique par une concentration totale de métaux plus élevée par unité de surface.

Comme la concentration totale en métaux du CAG est dominée par le calcium, les résultats démontrent que l'impact de la teneur en calcium des matériaux sur la rétention de protozoaires parasites est significatif. Cependant, la forme et la teneur en métaux des matériaux neufs n'expliquent que partiellement les différences de performances observées entre les différents types de matériaux filtrants étudiés. L'influence de la qualité de l'eau brute sur la rétention d'oocystes par filtration granulaire non assistée chimiquement semble plus importante puisqu'une variation saisonnière de performance significative associée à des variations de qualité d'eau a été observée.

La faible hausse, mais tout de même remarquable, de COT à l'eau brute (Tableau 3.2) répertoriée en automne explique la baisse de performance des matériaux neufs observée par rapport aux résultats obtenus en été (Figure 3.1). Comme discuté au chapitre 3, l'efficacité d'attachement de *Cryptosporidium* est moindre lorsque la concentration de COT est plus élevée puisque l'adsorption de MON en surface des oocystes et des matériaux filtrants cause une hausse des répulsions électro-stériques entre ceux-ci (Dai & Hozalski 2002, Franchi & O'Melia 2003). De surcroît, l'adsorption de MON aux oxydes de métaux en surface des grains peut causer une inversion des charges de ces régions normalement favorables à l'attachement (Abudalo *et al.* 2010). Toutefois, même si aucune différence saisonnière de potentiel zêta des oocystes de *Cryptosporidium* n'a pu être détectée par nos mesures, les variations de COT expliquent tout de même les variations saisonnières de performance observées. Étant donné que le CAG se distingue par sa capacité d'adsorption, celui-ci s'est avéré plus sensible à ces variations de qualité d'eau. En conséquence, ces travaux démontrent que la concentration de COT des eaux de surface prime sur la forme et la teneur en métaux des matériaux, pour ce qui est de l'enlèvement de *Cryptosporidium* par des filtres granulaires non assistés chimiquement, identiques en matière de dimensionnement, d'opération et de granulométrie.

6.1.2 Influence de l'âge des matériaux

Cette thèse répertorie l'impact du vieillissement, caractérisé comme le développement de biofilm autochtone en surface de matériaux filtrants, sur la rétention d'oocystes de *Cryptosporidium* par filtration granulaire non assistée chimiquement. Comme discuté au chapitre 3, les résultats obtenus démontrent que la présence de biofilm en surface des matériaux filtrants améliore la rétention de *Cryptosporidium*. Spécifiquement, le vieillissement de matériaux améliore

significativement ($p < 0.05$) la performance du sable et du CAG et a un impact négligeable sur la performance de l'anthracite (Figure 3.2). De tous les types de matériaux étudiés, la biomasse décrite par les concentrations de protéines et polysaccharides, était plus importante en surface des grains de CAG. Ceci explique la performance accrue des colonnes de CAG après vieillissement par rapport aux colonnes de sable et d'anthracite. Néanmoins, des recherches supplémentaires sont nécessaires afin d'éclaircir les raisons pour lesquelles, dans le cadre de cette étude, le développement de biomasse en surface des grains d'anthracite a eu un impact négligeable sur l'enlèvement d'oocystes. De plus, afin de mieux comprendre l'impact du biofilm en fonction de la profondeur des lits filtrants, il serait de mise de s'intéresser à l'optimisation des méthodes d'extraction et de quantification utilisées afin d'évaluer les concentrations d'oocystes retenus dans le lit filtrant. De cette façon, il serait possible de mieux comprendre et de corrélérer la présence de biofilm caractérisé par des paramètres biochimiques (c.-à-d. protéines et polysaccharides) et la concentration d'oocystes retenus en fonction de la profondeur du lit filtrant.

Les résultats répertoriés dans le cadre de cette thèse démontrent que la présence de biofilm en surface de CAG à base de bois améliore la rétention d'oocystes contrairement aux résultats répertoriés dans la littérature scientifique par rapport au CAG à base minérale (Hijnen *et al.* 2010). Conséquemment, il serait d'intérêt de comparer les performances de différents types de CAG dans des conditions expérimentales similaires afin de pouvoir conclure si l'augmentation significative de performance des colonnes de CAG usagé (à base végétale) répertorié dans le cadre de ce projet s'applique à tous les types de charbons. De surcroît, afin d'améliorer l'état des connaissances en ce qui concerne l'impact du vieillissement de matériaux sur la rétention de *Cryptosporidium* et de *Giardia*, il serait intéressant (i) de quantifier si une hausse de COT à l'eau brute cause une baisse de rétention équivalente à celle observée lors des essais menés avec des matériaux neufs, (ii) de déterminer si l'augmentation de rétention par les matériaux usagés n'est que transitoire et si elle cause une percée anticipée¹⁷ de kystes et d'oocystes avant la fin du cycle de filtration et (iii) si une différence de performance entre les matériaux neufs et usagés est toujours observée en eaux froides (i.e. pour des conditions défavorables à l'activité biologique).

¹⁷ Traduction personnelle de « early breakthrough ».

Bien que les conclusions et observations faites dans le cadre de cette étude suscitent plusieurs questions de recherche, ces travaux contribuent à l'état des connaissances de la communauté scientifique et ils informent le milieu du traitement de l'eau potable de certains des avantages et des inconvénients de l'utilisation de chacun des matériaux étudiés. Spécifiquement, les résultats démontrent qu'une usine peut mettre à profit l'opération d'une galerie de filtres en mode biologique dans l'objectif de favoriser la stabilité d'une eau, de permettre l'enlèvement de précurseurs de sous-produits d'oxydation et de diminuer la demande en chlore (Prévost *et al.* 2005), mais aussi d'améliorer la rétention de protozoaires parasites (cette étude). Pour terminer, les résultats indiquent que la performance de la filtration granulaire à la suite de renouvellement de matériaux filtrants ou lors de la mise en route de nouvelles installations est moindre puisqu'elle est plus vulnérable au transport de kystes et d'oocystes lorsque le lit filtrant est faiblement colonisé.

6.2 Influence de la qualité de l'eau brute

Cette thèse s'intéresse à l'impact de la qualité de l'eau brute sur la performance de procédés de filtration granulaire. Cette question de recherche a été étudiée dans une perspective de mieux comprendre l'influence de la qualité d'eau sur la performance propre au site. Spécifiquement, la relation entre l'efficacité d'enlèvement et (i) la concentration initiale de microorganismes ou (ii) la nature des pointes de turbidité à l'eau brute a été étudiée afin de déterminer la limite d'utilisation de crédits d'enlèvements octroyés par la réglementation pour décrire la performance de procédés de filtration granulaire.

6.2.1 Impact des pointes de concentration de protozoaires parasites

Tel que discuté dans le cadre de la revue de littérature, les pointes de concentration de kystes et d'oocystes à l'eau brute sont fonction de l'occupation du territoire en amont d'une installation de traitement. Il est donc d'intérêt de comprendre quel est l'impact de ces variations de concentrations sur la performance de procédés de filtration. Ceci est d'autant plus important puisque ces procédés sont souvent utilisés à titre de barrière pour *Cryptosporidium* (Betancourt & Rose 2004), et ce, particulièrement en eaux froides puisque l'atteinte des objectifs de traitement par la désinfection chimique n'est alors pas possible (Korich *et al.* 1990, Oppenheimer *et al.* 2000). Dans un contexte de protection de la santé publique, il est pertinent de déterminer si le

risque d'infection à *Cryptosporidium* et à *Giardia* est accru lors de pointes de concentration à l'eau brute.

Dans un premier temps, les résultats obtenus en laboratoire, dans le cadre de ce projet de recherche, démontrent qu'une hausse de concentration de microsphères, utilisées à titre de substitut d'oocystes de *Cryptosporidium*, cause une diminution de performance de la filtration directe sur sable non assistée chimiquement. Comme discuté au chapitre 4, les interactions entre microsphères sont non favorables. Dans ces conditions, une hausse de concentration initiale de microsphères cause un blocage des sites d'attachement ce qui a pour effet de hausser la répulsion entre le grain et les microorganismes en suspension et de diminuer la performance du lit filtrant (Figure 4.1C). Ces observations se limitent tout de même à un temps d'injection et d'élution restreint. Par contre, il est possible d'inférer que pour une charge de microsphères équivalente, une baisse de rétention similaire causée par le blocage des sites d'attachement aurait lieu à la suite de l'injection d'une concentration plus faible de microsphères sur une plus longue période. Conséquemment, les résultats obtenus révèlent que contrairement à ce qui a été répertorié lors d'essais pilotes de traitement conventionnel, le dosage excessif de kystes, d'oocystes ou de microsphères typiquement utilisé afin de permettre une quantification plus précise des concentrations à l'eau filtrée entraîne une sous-estimation de l'efficacité d'enlèvement de filtres granulaires non assistés chimiquement. Dans de telles circonstances, les évaluations de performance devraient donc être interprétées avec prudence, et ce, particulièrement lorsque des concentrations qui excèdent les concentrations typiques de kystes et d'oocystes dans les eaux de surface sont utilisées à cette fin.

Dans un deuxième temps, la même question de recherche a été étudiée à l'aide de données historiques d'indicateurs de traitement (BSA) provenant de sept usines québécoises de traitement conventionnel similaires en matière de conception et d'opération. Les résultats obtenus démontrent que l'efficacité d'enlèvement n'est pas constante contrairement aux crédits fixes d'enlèvement octroyés par la réglementation. Ces observations corroborent les résultats d'études pilotes qui ont démontré que l'enlèvement de protozoaires parasites par traitement conventionnel est plus important lorsque les concentrations à l'eau brute sont plus élevées (Assavasilavasukul *et al.* 2008b). Or, les conclusions issues de cette analyse de données historiques peuvent avoir été faussées par d'autres paramètres de qualité d'eau par exemple la turbidité à l'eau brute. Il est à noter que les pointes de concentrations d'endospores de BSA à l'eau brute sont étroitement

reliées aux événements de ruissellement et de fonte des neiges puisqu'il s'agit de microorganismes saprophytes que l'on retrouve dans les sols. Par ailleurs, il a été répertorié que dans les eaux de rivière du Québec, plus de 50 % des endospores de BSA sont agrégées à de la matière en suspension (MES) (Caron *et al.* 2007). Conséquemment, il est difficile de dissocier l'impact de la concentration de particules à l'eau brute de l'influence de la concentration initiale de BSA sur la performance du traitement conventionnel. En dépit des limites de ces conclusions, les analyses statistiques de données historiques d'indicateurs de traitement démontrent que la variabilité temporelle de performance du traitement conventionnel d'une même installation est fonction de la concentration de microorganismes à l'eau brute. Conséquemment, les crédits octroyés par la réglementation ne peuvent décrire la performance du traitement conventionnel avec exactitude puisque ceux-ci sont attribués indépendamment de la qualité de l'eau brute qui alimente le procédé.

6.2.2 Impact de pointes de turbidité minérale sur l'enlèvement de protozoaires parasites

Les concentrations de MES dans les eaux de surface sont fonction du ruissellement et de la remise en suspension des sédiments. Les installations sont donc constamment exposées à des pointes de turbidité dont la nature des MES varie dans le temps. À l'heure actuelle, peu d'études ont été relevées dans la littérature scientifique traitent du transport et du devenir de biocolloïdes et de particules d'argile en milieu poreux. D'ailleurs, cette question a seulement été étudiée en milieu contrôlé en laboratoire, dans l'objectif de comprendre le transport de contaminants microbiens en eaux souterraines (Chrysikopoulos & Syngouna 2012, Park *et al.* 2012, Syngouna & Chrysikopoulos 2013, Vasiliadou & Chrysikopoulos 2011, Yang *et al.* 2012). Dans ce contexte, les résultats obtenus dans le cadre de cette thèse contribuent à l'état des connaissances (i) du co-transport de particules de kaolinite et de substituts de *Cryptosporidium* et (ii) de l'identification des mécanismes qui gouvernent la rétention de kystes ou d'oocystes dans des filtres granulaires non assistés chimiquement. Ces notions sont d'intérêt puisqu'il a été répertorié que les MES responsables des pointes de turbidité du lac Saint-Louis (fleuve Saint-Laurent) lors de la fonte des neiges sont majoritairement de nature minérale (Gauthier *et al.* 2001, Gauthier *et al.* 2003).

Les résultats obtenus démontrent qu'en absence de coagulation, la présence de particules d'argile à l'eau brute améliore la rétention de substituts de *Cryptosporidium* (microsphères). Cette amélioration de performance est attribuée à deux phénomènes. D'une part, la maturation des matériaux filtrants améliore la rétention de microsphères. Bien que les microsphères et particules d'argile (kaolinite) soient chargées négativement, les interactions microsphères-kaolinite sont favorables. Les formes de courbes de percées obtenues confirment qu'en présence de kaolinite, la rétention de microsphères est accrue à la suite d'une maturation des matériaux filtrants (Figure 4.1C). Les particules d'argile semblent donc adhérer aux matériaux filtrants pour ensuite créer des sites favorables à l'attachement de microsphères. D'autre part, l'hétéro-agrégation de particules de kaolinite et de microsphères modifie le transport des microsphères au sein du lit filtrant. Plus particulièrement, il a été répertorié que les oocystes de *Cryptosporidium* et particules de kaolinite en suspension dans la colonne d'eau peuvent s'agréger. La densité des particules de kaolinite étant plus élevée, la formation d'agrégats provoque une accélération de la vitesse de décantation des oocystes (Searcy *et al.* 2005). Ainsi, lors de pointes de concentration d'argile dans les eaux de surface, une amélioration de la performance de filtres à sable peut aussi s'expliquer par une augmentation du transport par décantation de kystes ou d'oocystes à proximité du grain, ce qui cause une hausse du taux de rétention de *Cryptosporidium* ou *Giardia* (k_d) au sein du lit filtrant (Park *et al.* 2012). Conséquemment, les résultats obtenus indiquent que la filtration directe non assistée chimiquement est moins vulnérable au transport de kystes ou d'oocystes lors de pointes de turbidité minérale à l'eau brute. Même si les essais menés dans le cadre de cette étude ont fait l'usage d'une seule concentration de microsphères (10^2 microsphères mL^{-1}) qui excède les concentrations typiques de protozoaires à l'eau brute (Messner & Wolpert 2002), il est tout de même possible d'inférer que les conclusions issues de cette étude sur l'impact de particules de kaolinite peuvent être transposées à de plus faibles concentrations de microsphères puisque les tendances observées sont fonction des concentrations initiales de particules de kaolinite.

Les conclusions issues de cette étude en matière de l'influence de particules d'argile sur la rétention de protozoaires par filtration non assistée chimiquement se limitent à une eau exempte de MON. En raison de la baisse de rétention d'oocystes qui a été répertoriée à la suite d'une faible hausse de COT à l'eau brute lors de la comparaison de performance de matériaux neufs dans le cadre de cette thèse, il serait d'intérêt de comprendre l'ampleur de l'augmentation de la

rétenction de microsphères causée par la cooccurrence de particules de kaolinite en présence de MON. Plus particulièrement, il serait intéressant dans une perspective d'opération, de déterminer s'il existe un seuil auquel la concentration de MON à l'eau brute dissimule l'amélioration de performance causée par la présence de particules d'argile. Pour terminer, il serait aussi d'intérêt de comparer les améliorations de performance lors de l'injection de différents types d'argiles (e.g. montmorillonite, illite) afin de conclure sur l'effet général de l'impact des argiles sur la rétenction de protozoaires parasites dans des filtres granulaires non assistés chimiquement.

6.3 Utilisation d'indicateurs de traitement pour décrire la performance de procédés physico-chimiques

6.3.1 Limite d'utilisation des BSA à titre d'indicateur de traitement

Les travaux menés dans le cadre de cette thèse se sont intéressés au biais méthodologique potentiel associé à l'évaluation de performance du traitement conventionnel par l'entremise de la quantification d'endospores de BSA. Certains auteurs ont exprimé une réticence quant à l'usage d'endospores de BSA pour caractériser la performance de filtration granulaire en eaux chaudes après avoir observé une hausse de concentration à l'effluent de filtres en deuxième étage (Galofré *et al.* 2004, Mazoua & Chauveheid 2005). Les BSA sont des bactéries hétérotrophes aérobies. Voilà pourquoi Galofré *et al.* (2004) ont posé comme hypothèse que les hausses de concentrations observées à l'eau filtrée étaient le résultat de croissance bactérienne dans le lit filtrant. Cependant, comme discuté au chapitre 5, plusieurs autres paramètres d'opération, tout comme la stratégie d'échantillonnage utilisée, peuvent expliquer une hausse d'endospores à l'eau filtrée. Ceci étant dit, les données historiques d'endospores de BSA analysées dans le cadre de ce projet ne permettent pas une quantification exacte du biais méthodologique causé par la croissance de BSA au sein de procédés physico-chimiques. Ces données historiques ont plutôt permis dans un premier temps l'identification de paramètres d'opération qui agissent à titre de variables confondantes (e.g. hausse de débit) pour ensuite déterminer si la recroissance de BSA à la suite d'une hausse de température est responsable d'un biais méthodologique important. Les résultats obtenus indiquent que pour des variations de température représentatives des eaux de surface québécoises, le biais méthodologique associé à la recroissance de ces bactéries dans les installations de production d'eau potable est négligeable. Dans ce contexte, l'usage d'endospores

de BSA à titre d'indicateur de traitement est pertinent. Par contre, des recherches supplémentaires sont nécessaires afin de valider les résultats issus de cette analyse de données historiques. Notamment, il serait intéressant de quantifier de façon plus détaillée le potentiel de recroissance de ces bactéries dans des filtres non assistés chimiquement (e.g. filtres biologiques en deuxième étage) opérés en eaux chaudes par l'entremise d'essais en laboratoire. Pour terminer, comme discuté au chapitre 5, la croissance d'endospores anaérobies (SSRC) est moins probable dans les filtres granulaires que celle de BSA. Dans les circonstances où une installation est vulnérable à la croissance bactérienne puisqu'elle est principalement alimentée en eaux chaudes et que les concentrations de SSRC dans les eaux de surface sont suffisantes pour permettre une quantification à l'eau filtrée, il serait préférable de favoriser l'utilisation SSRC par rapport à l'usage de BSA à titre d'indicateur de traitement.

6.3.2 Description de la performance propre au site du traitement conventionnel

Cette thèse propose, à titre d'option alternative à l'usage de crédits d'enlèvement octroyés par la réglementation, l'usage de fonction de densité de probabilité (PDF) générée à l'aide de données historiques d'indicateurs de traitement (e.g. endospores de BSA) afin de décrire la performance du traitement conventionnel dans le cadre d'analyse de risque de type QMRA. Comme démontré à l'aide de données historiques provenant de sept usines québécoises, les concentrations d'endospores de BSA sont suffisantes à l'eau brute pour permettre une évaluation de l'efficacité de traitement puisqu'elles peuvent être quantifiées à l'eau filtrée. Par conséquent, les analyses de performance du traitement conventionnel générées par des données historiques d'endospores de BSA permettent une description de performance propre au site puisque celles-ci intègrent notamment la variabilité associée à la conception et l'opération (e.g. stratégie de coagulation) des installations (Hijnen *et al.* 2004, Teunis *et al.* 1997), mais aussi l'impact des variations saisonnières de la qualité de l'eau brute (e.g. concentration de microorganismes à l'eau brute). De ce fait, elles permettent une description plus exacte de la réalité.

Les résultats obtenus dans le cadre de ce projet ont permis de mettre en évidence la variabilité d'efficacité du traitement conventionnel. Les modèles de régression présentés au chapitre 5 démontrent que les différences de performance sont significatives pour des usines pourtant similaires en matière de conception et d'opération et situées dans une même région. Ceci est

d'autant plus important que les usines ayant participé à cette étude sont des installations optimisées participant au Programme d'Excellence en eau potable de l'American Water Works Association (AWWA). Il est donc possible d'inférer qu'une plus grande variabilité de performance entre les sites serait observée si toutes les usines de la même région étaient recensées. De plus, le modèle de régression démontre que les variations de performance d'une même usine sont non négligeables puisque l'enlèvement est étroitement relié à la concentration de microorganismes à l'eau brute. Conséquemment, l'usage de la turbidité à l'eau filtrée afin d'apporter un ajustement aux crédits d'enlèvement n'est pas suffisant afin de décrire la variabilité de performance associée à la conception, à l'opération et aux variations de qualité d'eau brute. Il est à noter que les modèles de régression élaborés indiquent tout de même qu'il soit une bonne pratique de faire un suivi de la turbidité à l'eau filtrée tel qu'exigé par la réglementation. Bref, les crédits d'enlèvement octroyés par la réglementation s'avèrent inadéquats pour décrire les performances réelles des installations.

Selon l'analyse des queues de distribution présentée au chapitre 5, les variations de performance d'un même système semblent être plutôt associées à des variations de performance de la décantation plutôt que de la filtration. D'ordre général, les décanteurs sont exposés à un affluent beaucoup plus variable que les filtres granulaires. Voilà pourquoi une plus grande variation de performance a été observée pour la décantation et la filtration. Même si la décantation semble responsable de la majeure partie de la variabilité de performance d'une usine, une seule PDF qui décrit la performance globale du traitement conventionnel devrait être utilisée dans le cadre de modèles d'analyse de risque de type QMRA, car la performance des deux procédés (décantation et filtration granulaire) est interdépendante.

Les modèles d'analyses de risque de type QMRA agissent à titre d'outil d'aide à la décision que ce soit pour déterminer des critères d'opération, définir la mise à niveau d'installations, ou pour permettre aux instances réglementaires de définir des critères de traitement (Hunter *et al.* 2003). Lorsque générée de façon propre au site, l'analyse de risque permet d'identifier les circonstances ou paramètres qui dominent le risque d'infection d'un système donné permettant ainsi d'y remédier (Hijnen *et al.* 2004). Un calcul de risque peut donc avoir une répercussion sur le choix d'options rentables en matière de mise à niveau d'une filière de traitement ou de modifications de pratiques d'opération. Dans cette optique, l'utilisation d'indicateurs de performance devrait être favorisée par rapport à l'usage de crédits fixes d'enlèvement pour décrire la performance de

procédés de filtration granulaire lors d'élaboration de modèles de type QMRA. De cette manière, les résultats des calculs du risque permettront une meilleure estimation du risque réel puisqu'ils incorporent les événements rares comme les défaillances de traitement (Hijnen *et al.* 2004) où le risque d'infection est accru (Haas *et al.* 1996, Teunis *et al.* 1997) dans l'analyse du risque. Ceci est pertinent afin de protéger la santé publique, mais aussi pour assurer de bons investissements.

Mise à part la description de performance de procédés physico-chimiques dans le cadre d'analyses de risque de type QMRA, la description de performance propre au site du traitement conventionnel à l'aide de mesures routinières d'indicateurs de performance peut s'avérer avantageuse dans d'autres circonstances. Premièrement, les données historiques d'indicateurs de performance peuvent permettre de déterminer les vulnérabilités d'un système. Pour cette raison, ces données devraient être utilisées dans le cadre de plan de sécurité de la salubrité de l'eau¹⁸ (Medema & Smeets 2009, Smeets *et al.* 2010). Deuxièmement, l'usage d'endospores de BSA à titre d'indicateur de performance permet de tirer profit de corrélations préalablement publiées entre l'enlèvement de celles-ci et d'oocystes de *Cryptosporidium* (Jaidi *et al.* 2009) pour déterminer les circonstances où les critères minimums de traitement ne sont pas satisfaits. Troisièmement, une analyse routinière de ces données permettrait un suivi de l'état des installations ainsi qu'une optimisation continue de l'opération de procédés physico-chimiques dans une perspective de protéger la santé publique, mais aussi de rentabiliser la production. En conclusion, dans un contexte québécois, le programme d'excellence devrait prôner l'usage d'endospores de BSA. D'une part, leur quantification est simple, peu coûteuse et contrairement aux SSRC, les concentrations d'endospores de BSA dans les eaux de surface québécoises sont suffisantes pour permettre une évaluation de performance de procédés physico-chimiques. D'autre part, le biais méthodologique associé à la recroissance de ces bactéries au sein d'installations semble négligeable en milieu tempéré. Afin de favoriser leur utilisation et de rentabiliser le retour sur l'investissement, un outil d'analyse de données devrait être élaboré afin de guider les responsables d'usines dans l'interprétation des résultats.

¹⁸ Traduction personnelle de «water safety plan»

CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

La réalisation de ce projet d'études doctorales a permis de contribuer à l'état des connaissances au sujet de l'impact des caractéristiques des matériaux filtrants et des variations de qualité d'eau brute sur la performance propre au site de procédés de filtration granulaire. Ceci fut réalisé à l'aide de montages pilotes en laboratoire pour ensuite évaluer l'ampleur des variations de performance entre des usines similaires en matière de conception et d'opération situées dans une même région. L'ensemble de ce projet a permis de traiter de l'objectif général de celui-ci, soit de quantifier l'enlèvement de protozoaires parasites dans des filtres granulaires en fonction de la concentration et de la nature de particules à l'eau brute, mais aussi en fonction du niveau de colonisation bactérienne du lit filtrant. En conséquence, ces travaux ont permis de tirer les conclusions suivantes :

Matériaux filtrants et qualité d'eau brute

- En absence de coagulation, les pointes de concentration de matière organique naturelle (MON) à l'eau brute provoquent une diminution de l'enlèvement de *Cryptosporidium parvum* par filtration granulaire. Qui plus est, les filtres composés de matériaux filtrants ayant une plus grande capacité d'adsorption sont plus vulnérables à ces fluctuations de qualité d'eau.
- La teneur en métaux et la forme des matériaux filtrants neufs favorisent l'attachement de *Cryptosporidium parvum* et conséquemment une meilleure efficacité d'enlèvement par filtration directe non assistée chimiquement. Or, l'impact de la teneur en métaux et de la forme des matériaux sur la performance de filtres granulaires est moins important que l'impact de la concentration de MON de l'eau brute.
- La formation de biofilm par des bactéries autochtones en surface des matériaux filtrants a généralement un effet favorable sur la rétention de *Cryptosporidium parvum*.
- La nature des particules à l'eau brute influence la performance de la filtration directe non assistée chimiquement.
- Les argiles (particules de kaolinite) favorisent la rétention de substituts de protozoaires parasites (microsphères) par filtration directe non assistée chimiquement. Cette

amélioration de performance est attribuée à la maturation des matériaux, mais aussi à une hausse de transport de microorganismes par décantation à proximité des grains.

- Une hausse de concentration de substituts de protozoaires parasites (microsphères) cause une diminution de l'abattement par filtration directe non assistée chimiquement. Cette baisse de performance est attribuée au blocage des sites d'attachement.

Variations de performance

- Les variations performance du traitement conventionnel sont reliées aux variations de concentration de microorganismes (BSA) à l'eau brute. Ainsi, les crédits d'enlèvement n'offrent pas une description représentative de l'abattement réel de BSA puisqu'ils sont attribués indépendamment des concentrations de microorganismes à l'eau brute.
- Les variations de performance du traitement conventionnel d'usines similaires en matière de conception, d'opération et de qualité d'eau sont considérables. L'utilisation de crédits d'enlèvement octroyé par la réglementation ne permet pas une description exacte de la performance propre au site du traitement conventionnel.

Utilisation de BSA comme indicateur de traitement

- L'usage d'endospores de BSA en milieu tempéré à titre d'indicateur de performance de procédés physico-chimiques est pertinent. Le biais méthodologique de l'estimation de l'enlèvement à la suite de recroissance bactérienne au sein d'une usine semble être négligeable.

Par ailleurs, dans une perspective d'optimisation de la performance de procédés physico-chimiques afin de minimiser le risque pour la santé publique associé à la consommation d'eau potable, les résultats obtenus dans le cadre de cette thèse permettent de conclure que,

- l'usage d'indicateurs de traitement (e.g. endospores de BSA) permet de déterminer les circonstances où l'efficacité de traitement d'une installation est moindre et ainsi déterminer les vulnérabilités d'un système,
- les crédits d'enlèvement octroyés par la réglementation ne permettent pas une description exacte de la performance du traitement conventionnel puisqu'ils sont attribués indépendamment de la conception et de l'opération d'une usine, mais aussi de la qualité

de l'eau brute. Conséquemment, ils ne permettent pas une description de la performance propre au site.

Les conclusions issues du présent projet permettent de faire les recommandations suivantes pour instances municipales ou réglementaires responsables du traitement des eaux potables.

- Dans le contexte de plan de sécurité de la salubrité de l'eau potable¹⁹, des mesures routinières d'indicateurs de traitement devraient être utilisées afin de permettre une meilleure connaissance des circonstances où la performance de procédés de filtration est moindre que les critères minimums d'enlèvement dictés par la réglementation. De plus, la fréquence d'échantillonnage devrait être accrue à la suite de fluctuations substantielles de qualité d'eau brute (i.e. à la fonte des neiges, hausse de la concentration de MON, etc.) afin de déterminer les vulnérabilités d'un système. Les usines devraient aussi avoir recours à l'échantillonnage de grands volumes à l'eau filtrée afin de hausser la proportion d'échantillons au-dessus de la limite de détection et d'augmenter la précision de l'estimation de la performance. Par contre, cette stratégie d'échantillonnage doit être validée avant son utilisation puisqu'elle peut avoir l'effet contraire.
- Dans un contexte québécois, le programme d'excellence devrait prôner l'usage d'indicateurs de performance afin de doter les installations d'un outil additionnel pour évaluer la performance de leur système. Afin d'instaurer cette pratique, des lignes directrices en matière de l'analyse de données seraient nécessaires afin d'épauler les gestionnaires dans l'interprétation des résultats.
- L'usage de données historiques d'indicateurs de traitement devrait être favorisé contrairement à l'usage de crédits d'enlèvement octroyés par la réglementation pour décrire la performance de procédés de filtration granulaire lors d'analyses de type QMRA.

Compte tenu des limites des résultats obtenus dans le cadre de cette thèse, il serait souhaitable que d'autres recherches se poursuivent sur l'impact des variations de qualité d'eau brute sur l'efficacité d'enlèvement de *Cryptosporidium* et *Giardia* par procédés de filtration. Spécifiquement, les travaux futurs devraient porter une attention particulière à l'impact des

¹⁹ Traduction personnelle de « water safety plan ».

variations de concentration MON dans une perspective de déterminer les circonstances où l'abattement de *Giardia* ou *Cryptosporidium* est moindre. Ceci est d'intérêt dans un contexte de filtration directe non assistée chimiquement comme démontré dans le cadre de cette thèse, mais aussi pour les procédés munis d'un prétraitement chimique puisque les concentrations de MON à l'eau brute influencent les dosages de coagulant qui ont un effet direct sur l'abattement de kystes ou d'oocystes.

Des recherches supplémentaires doivent aussi être menées en laboratoire afin de permettre une quantification du potentiel de la recroissance de BSA au sein du lit filtrant tout en considérant l'impact de la température, du cycle de filtration et du rétrolavage. Pour se faire, il serait astucieux que la stratégie d'échantillonnage permette de compléter un bilan de masse. Il est nécessaire de combler ces lacunes afin de clore le débat en qui concerne l'usage de ces endospores bactériennes à titre d'indicateur de traitement. Cette quantification est d'intérêt sanitaire surtout si l'on considère qu'à l'heure actuelle, la réglementation américaine (LT2-ESWTR) encourage l'attribution de crédits d'enlèvement additionnels en matière de *Cryptosporidium* aux usines ayant fait une démonstration de performance à l'aide d'endospores de BSA. Ceci étant dit, la recroissance de BSA en milieu tempéré semble négligeable et cette thèse recommande tout de même de faire l'usage d'endospores bactériennes afin de décrire la performance de procédés de filtration granulaire. Somme toute, une meilleure compréhension des procédés de filtration est impérative afin d'optimiser et rentabiliser la production d'eau potable, mais surtout pour déterminer les circonstances qui gouvernent le risque associé à *Cryptosporidium* et *Giardia*.

Dans les circonstances où le taux d'infection de la population est sous le seuil de détection d'outils de surveillance des instances de santé publique, il est pertinent d'appliquer le principe de précaution et de munir les producteurs d'eau potable d'outils novateurs pour déterminer les vulnérabilités de leurs installations. De plus, il est de mise d'utiliser à bon escient les outils disponibles qui permettent d'évaluer le risque d'infection associé à la consommation d'eau potable afin de pouvoir faire la juste part des besoins en santé publique pour ensuite prioriser les investissements nécessaires. Dans cette optique, d'autres recherches doivent être poursuivies afin de parfaire l'état des connaissances quant à la performance de procédés physico-chimiques utilisés pour la production d'eau potable.

RÉFÉRENCES

- Aboytes, R., Di Giovanni, G.D., Abrams, F.A., Rheinecker, C., Mcelroy, W., Shaw, N. & LeChevallier, M.W. 2004 Detection of infectious *Cryptosporidium* in filtered drinking water. *Journal of the American Water Works Association* 96(9), 88-98.
- Abudalo, R.A., Ryan, J.N., Harvey, R.W., Metge, D.W. & Landkamer, L. 2010 Influence of organic matter on the transport of *Cryptosporidium parvum* oocysts in a ferric oxyhydroxide-coated quartz sand saturated porous medium. *Water Research* 44(4), 1104-1113.
- 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 and Technology* 39(17), 6412-6419.
- Akiba, M., Kunikane, S., Kim, H.-S. & Kitazawa, H. 2002 Algae as surrogate indices for the removal of *Cryptosporidium* oocysts by direct filtration. *Water Science and Technology: Water Supply* 2(3), 73-80.
- Amburgey, J.E., Amirtharajah, A., York, M.T., Brouckaert, B.M., Spivey, N.C. & Arrowood, M.J. 2005 Comparison of conventional and biological filter performance for *Cryptosporidium* and microsphere removal. *Journal of the American Water Works Association* 97(12), 77-91.
- American Public Health Association (APHA), American Water Works Association (AWWA) & Water Environment Federation (WEF) 2005 Standard methods for the examination of water and wastewater (21th Edition), Washington, DC, USA.
- Amirtharajah, A. 1988 Some theoretical and conceptual views of filtration. *Journal of American Water Works Association* 80(12), 36-46.
- Antenucci, J.P., Brookes, J.D. & Hipsey, M.R. 2005 A simple model for quantifying *Cryptosporidium* transport, dilution, and potential risk in reservoirs. *Journal of the American Water Works Association* 97(1), 86-93.
- Appelbee, A.J., Frederick, L.M., Heitman, T.L. & Olson, M.E. 2003 Prevalence and genotyping of *Giardia duodenalis* from beef calves in Alberta, Canada. *Veterinary Parasitology* 112(4), 289-294.
- Assavasilavasukul, P., Harrington, G.W., Lau, B.L.T., Hoffman, R.M. & Borchardt, M.A. 2008a Effect of pathogen load on pathogen removal by conventional treatment, p. 152, American Water Works Association Research Foundation, Denver, Colorado, USA.
- Assavasilavasukul, P., Lau, B.L.T., Harrington, G.W., Hoffman, R.M. & Borchardt, M.A. 2008b Effect of pathogen concentrations on removal of *Cryptosporidium* and *Giardia* by conventional drinking water treatment. *Water Research* 42(10-11), 2678-2690.
- Atherholt, T.B., LeChevallier, M.W., Norton, W.D. & Rosen, J.S. 1998 Effect of rainfall of *Giardia* and *Crypto*. *Journal of the American Water Works Association* 90(9), 66-80.
- Baldursson, S. & Karanis, P. 2011 Waterborne transmission of protozoan parasites: review of worldwide outbreaks – An update 2004–2010. *Water Research* 45(20), 6603-6614.

- Barbeau, B., Boulos, L., Desjardins, R., Coallier, J., Prévost, M. & Duchesne, D. 1997 A modified method for the enumeration of aerobic spore-forming bacteria. *Canadian Journal of Microbiology* 43(10), 976-980.
- Baudin, I. & Laîné, J.M. (1998) *Assessment and optimization of clarification process for Cryptosporidium removal*. (American Water Works Association-Water Quality Technology Conference San Diego, California, USA, November 1-5), 8.
- Betancourt, W.Q. & Rose, J.B. 2004 Drinking water treatment processes for removal of *Cryptosporidium* and *Giardia*. *Veterinary Parasitology* 126(1-2), 219-234.
- Bradford, S.A. & Bettahar, M. 2006 Concentration dependent transport of colloids in saturated porous media. *Journal of Contaminant Hydrology* 82(1-2), 99-117.
- Bradford, S.A., Simunek, J., Bettahar, M., van Genuchten, M.T. & Yates, S.R. 2003 Modeling colloid attachment, straining, and exclusion in saturated porous media. *Environmental Science and Technology* 37(10), 2242-2250.
- Bradford, S.A., Simunek, J., Bettahar, M., van Genuchten, M.T. & Yates, S.R. 2006 Significance of straining in colloid deposition: evidence and implications. *Water Resources Research* 42(12), 12-15.
- Brookes, J.D., Antenucci, J., Hipsey, M., Burch, M.D., Ashbolt, N.J. & Ferguson, C. 2004 Fate and transport of pathogens in lakes and reservoirs. *Environmental International* 30(5), 741-759.
- Bukhari, Z., Hargy, T.M., Bolton, J.R., Dussert, B. & Clancy, J.L. 1999 Medium-pressure UV for oocyst inactivation. *Journal of the American Water Works Association* 91(3), 86-94.
- Camesano, T.A. & Logan, B.E. 1998 Influence of fluid velocity and cell concentration on the transport of motile and nonmotile bacteria in porous media. *Environmental Science and Technology* 32(11), 1699-1708.
- Camesano, T.A., Unice, K.M. & Logan, B.E. 1999 Blocking and ripening of colloids in porous media and their implications for bacterial transport. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 160(3), 291-307.
- Caron, É., Chevrefils Jr., G., Barbeau, B., Payment, P. & Prévost, M. 2007 Impact of microparticles on UV disinfection of indigenous aerobic spores. *Water Research* 41(19), 4546-4556.
- Cartier, C., Barbeau, B., Besner, M.C., Payment, P. & Prévost, M. 2007 Optimization of the detection of the spores of aerobic spore-forming bacteria (ASFB) in environmental conditions. *Journal of Water Supply: Research and Technology-AQUA* 56(3), 191-202.
- Chappell, C.L., Okhuysen, P.C., Sterling, C.R. & DuPont, H.L. 1996 *Cryptosporidium parvum*: intensity of infection and oocyst excretion patterns in healthy volunteers. *The Journal of Infectious Diseases* 173(1), 232-236.
- Chappell, C.L., Okhuysen, P.C., Langer-Curry, R., Widmer, G., Akiyoshi, D.E., Tanriverdi, S. & Tzipori, S. 2006 *Cryptosporidium hominis*: experimental challenge of healthy adults. *American Journal of Tropical Medicine and Hygiene* 75(5), 851-857.
- Charles, G., Morgan, J.M., MacPhee, M., Kim, M. & Fredericksen, D. (1995) *Bench-scale parasite spiking. An alternative to pilot-scale Giardia and Cryptosporidium spiking*

investigations. (American Water Works Association-Water Quality Technology Conference, New Orleans, Louisiana, USA, November 12-16), 37-47.

Chrysikopoulos, C.V. & Syngouna, V.I. 2012 Attachment of bacteriophages MS2 and PhiX174 onto kaolinite and montmorillonite: extended-DLVO interactions. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces* 92, 74-83.

Clancy, J.L., Marshall, M.M., Hargy, T.M. & Korich, D.G. 2004 Susceptibility of five strains of *Cryptosporidium parvum* oocysts to UV light. *Journal of the American Water Works Association* 96(3), 84-93.

Cleasby, J.L., Dharmarajah, A.H., Sindt, G.L. & Baumann, E.R. 1989 Design on operation guidelines for optimization of the high-rate filtration process: plant survey results, p. 332, American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association, Denver, Colorado, USA.

Collins, M.R., Eighmy, T.T. & Malley Jr., J.D. 1991 Evaluating modifications to slow sand filters. *Journal of the American Water Works Association* 83(9), 62-70.

Considine, R.F., Dixon, D.R. & Drummond, C.J. 2002 Oocysts of *Cryptosporidium parvum* and model sand surfaces in aqueous solutions: an atomic force microscope (AFM) study. *Water Research* 36(14), 3421-3428.

Craik, S.A., Weldon, D., Finch, G.R., Bolton, J.R. & Belosevic, M. 2001 Inactivation of *Cryptosporidium parvum* oocysts using medium- and low-pressure ultraviolet radiation. *Water Research* 35(6), 1387-1398.

Craun, G.F., Brunkard, J.M., Yoder, J.S., Roberts, V.A., Carpenter, J., Wade, T., Calderon, R.L., Roberts, J.M., Beach, M.J. & Roy, S.L. 2010 Causes of outbreaks associated with drinking water in the United States from 1971 to 2006. *Clinical Microbiology Reviews* 23(3), 507-528.

Curriero, F.C., Patz, J.A., Rose, J.B. & Lele, S. 2001 The association between extreme precipitation and waterborne disease outbreaks in the United States, 1948-1994. *American Journal of Public Health* 91(8), 1194-1199.

Dai, X. & Hozalski, R.M. 2002 Effect of NOM and biofilm on the removal of *Cryptosporidium parvum* oocysts in rapid filters. *Water Research* 36(14), 3523-3532.

Dai, X. & Hozalski, R.M. 2003 Evaluation of microspheres as surrogates for *Cryptosporidium parvum* oocysts in filtration experiments. *Environmental Science and Technology* 37(5), 1037-1042.

Dai, X. & Boll, J. 2003 Evaluation of attachment of *Cryptosporidium parvum* and *Giardia lamblia* to soil particles. *Journal of Environmental Quality* 32(1), 296-304.

deRegnier, D.P., Cole, L., Schupp, D.G. & Erlandsen, S.L. 1989 Viability of *Giardia* cysts suspended in lake, river, and tap water. *Applied and Environmental Microbiology* 55(5), 1223-1229.

Derjaguin, B.V. & Landau, L.D. 1941 Theory of the stability of strongly charged lyophobic sols and of the adhesion of charged particles in solutions of electrolytes. *Acta Physicochim URSS* 14(633).

- Dorner, S.M., Anderson, W.B., Slawson, R.M., Kouwen, N. & Huck, P.M. 2006 Hydrologic modeling of pathogen fate and transport. *Environmental Science and Technology* 40(15), 4746-4753.
- Dorner, S.M., Anderson, W.B., Gaulin, T., Candon, H.L., Slawson, R.M., Payment, P. & Huck, P.M. 2007 Pathogen and indicator variability in a heavily impacted watershed. *Journal of Water and Health* 5(2), 241-257.
- Droppo, I.G. 2001 Rethinking what constitutes suspended sediment. *Hydrological Processes* 15(9), 1551-1564.
- Droppo, I.G. 2003 A new definition of suspended sediment: implications for the measurement and prediction of sediment transport. *IAHS-AISH Publication* (283), 3-12.
- Droppo, I.G. 2004 Structural controls on floc strength and transport. *Canadian Journal of Civil Engineering* 31(4), 569-578.
- Droppo, I.G., Liss, S.N., Williams, D., Nelson, T., Jaskot, C. & Trapp, B. 2009 Dynamic existence of waterborne pathogens within river sediment compartments. Implications for water quality regulatory affairs. *Environmental Science and Technology* 43(6), 1737-1743.
- Drozd, C. & Schwartzbrod, J. 1996 Hydrophobic and electrostatic cell surface properties of *Cryptosporidium parvum*. *Applied and Environmental Microbiology* 62(4), 1227-1232.
- DuBois, M., Gilles, K.A., Hamilton, J.K., Rebers, P.A. & Smith, F. 1956 Colorimetric method for determination of sugars and related substances. *Analytical Chemistry* 28(3), 350-356.
- Dugan, N.R. & Williams, D.J. 2004 Removal of *Cryptosporidium* by in-line filtration: effects of coagulant type, filter loading rate and temperature. *Water Supply: Research and Technology-Aqua* 53(1), 1-15.
- Dugan, N.R., Fox, K.R., Owens, J.H. & Miltner, R.J. 2001 Controlling *Cryptosporidium* oocysts using conventional treatment. *Journal of the American Water Works Association* 93(12), 64-76.
- DuPont, H.L., Chappell, C.L., Sterling, C.R., Okhuysen, P.C., Rose, J.B. & Jakubowski, W. 1995 The infectivity of *Cryptosporidium parvum* in healthy volunteers. *The New England Journal of Medicine* 332(13), 855-859.
- Edzwald, J.K. & Kelley, M.B. 1998 Control of *Cryptosporidium*: from reservoirs to clarifiers to filters. *Water Science and Technology* 37(2), 1-8.
- Edzwald, J.K., Tobiasson, J.E., Parento, L.M., Kelley, M.B., Kaminski, G.S., Dunn, H.J. & Galant, P.B. 2000 *Giardia* and *Cryptosporidium* removals by clarification and filtration under challenge conditions. *Journal of the American Water Works Association* 92(12), 70-84.
- Elimelech, M., Gregory, J., Jia, X. & Williams, R.A. 1995 Particle deposition and aggregation measurement, Betterworth-Heinemann, Ltd, Oxford, United Kingdom.
- Elimelech, M., Nagai, M., Ko, C.-H. & Ryan, J.N. 2000 Relative insignificance of mineral grain zeta potential to colloid transport in geochemically heterogeneous porous media. *Environmental Science and Technology* 34(11), 2143-2148.
- Emelko, M.B. 2003 Removal of viable and inactivated *Cryptosporidium* by dual- and tri-media filtration. *Water Research* 37(12), 2998-3008.

- Emelko, M.B. & Huck, P.M. 2004 Microspheres as surrogates for *Cryptosporidium* filtration. *Journal of the American Water Works Association* 96(3), 94-105.
- Emelko, M.B., Huck, P.M. & Douglas, I.P. 2003 *Cryptosporidium* and microsphere removal during late in-cycle filtration. *Journal of the American Water Works Association* 95(5), 173-182.
- Emelko, M.B., Huck, P.M. & Coffey, B.M. 2005 A review of *Cryptosporidium* removal by granular media filtration. *Journal of the American Water Works Association* 97(12), 101-115.
- Emelko, M.B., Schmidt, P.J. & Roberson, J.A. 2008 Quantification of uncertainty in microbial data - Reporting and regulatory implications. *Journal of the American Water Works Association* 100(3), 94-104.
- Fayer, R. & Nerad, T. 1996 Effects of low temperatures on viability of *Cryptosporidium parvum* oocysts. *Applied and Environmental Microbiology* 62(4), 1431-1433.
- Fayer, R., Trout, J.M., Graczyk, T.K. & Lewis, E.J. 2000 Prevalence of *Cryptosporidium*, *Giardia* and *Eimeria* infections in post-weaned and adult cattle on three Maryland farms. *Veterinary Parasitology* 93(2), 103-112.
- Finch, G.R., Black, E.K., Györek, L. & Belosevic, M. 1993 Ozone inactivation of *Cryptosporidium parvum* in demand-free phosphate buffer determined by in vitro excystation and animal infectivity. *Applied and Environmental Microbiology* 59(12), 4203-4210.
- Flemming, H.C. & Wingender, J. 2001 Relevance of microbial extracellular polymeric substances (EPSs) - Part II: technical aspects. *Water Science and Technology* 43(6), 9-16.
- Franchi, A. & O'Melia, C.R. 2003 Effects of natural organic matter and solution chemistry on the deposition and reentrainment of colloids in porous media. *Environmental Science and Technology* 37(6), 1122-1129.
- Galofré, B., Israel, S., Dellunde, J. & Ribas, F. 2004 Aerobic bacterial spores as process indicators for protozoa cysts in water treatment plants. *Water Science and Technology* 50(1), 165-172.
- Gaskin, S.J., Pieterse, J., Shafie, A.A. & Lepage, S. 2003 Erosion of undisturbed clay samples from the banks of the St. Lawrence River. *Canadian Journal of Civil Engineering* 30(3), 585-595.
- Gauthier, V., Barbeau, B., Millette, R., Block, J.-C. & Prévost, M. 2001 Suspended particles in the drinking water of two distribution systems. *Water Science and Technology: Water Supply* 1(4), 237-245.
- Gauthier, V., Barbeau, B., Tremblay, G., Millette, R. & Bernier, A.-M. 2003 Impact of raw water turbidity fluctuations on drinking water quality in a distribution system. *Environmental Engineering and Science* 2(4), 281-291.
- Gennaccaro, A.L., McLaughlin, M.R., Quintero-Betancourt, W., Huffman, D.E. & Rose, J.B. 2003 Infectious *Cryptosporidium parvum* oocysts in final reclaimed effluent. *Applied and Environmental Microbiology* 69(8), 4983-4984.
- Gibson III, C.J., Stadterman, K.L., States, S. & Sykora, J. 1998 Combined sewer overflows: a source of *Cryptosporidium* and *Giardia*? *Water Science and Technology* 38(12), 67-72.

- Gitis, V., Hought, R.C., Clark, R.M. & Rothenberg, G. 2002 Assessing the removal of inorganic colloids and *Cryptosporidium parvum* from drinking water. *Journal of Environmental Monitoring* 4(2), 244-248.
- Haas, C.N., Crockett, C.S., Rose, J.B., Gerba, C.P. & Fazil, A.M. 1996 Assessing the risk posed by oocysts in drinking water. *Journal of the American Water Works Association* 88(9), 131-136.
- Hahn, M.W. & O'Melia, C.R. 2003 Deposition and reentrainment of brownian particles in porous media under unfavorable chemical conditions: some concepts and applications. *Environmental Science and Technology* 38(1), 210-220.
- Hall, T., Pressdee, J., Gregory, R. & Murray, K. 1995 *Cryptosporidium* removal during water treatment using dissolved air flotation. *Water Science and Technology* 31(3-4), 125-135.
- Hansen, J.S. & Ongerth, J.E. 1991 Effects of time and watershed characteristics on the concentration of *Cryptosporidium* oocysts in river water. *Applied and Environmental Microbiology* 57(10), 2790-2795.
- Harrington, G.W., Xagorarakis, I., Assavasilavasukul, P. & Standridge, J.H. 2003 Effect of filtration conditions on removal of emerging waterborne pathogens. *Journal of the American Water Works Association* 95(12), 95-104.
- Harwood, V.J., Levine, A.D., Scott, T.M., Chivukula, V., Lukasik, J., Farrah, S.R. & Rose, J.B. 2005 Validity of the indicator organism paradigm for pathogen reduction in reclaimed water and public health protection. *Applied and Environmental Microbiology* 71(6), 3163-3170.
- Hashimoto, A., Hirata, T. & Kunikane, S. 2001 Occurrence of *Cryptosporidium* oocysts and *Giardia* cysts in a conventional water purification plant. *Water Science and Technology* 43(12), 89-92.
- Helmi, K., Skrabber, S., Gantzer, C., Willame, R., Hoffmann, L. & Cauchie, H.-M. 2008 Interactions of *Cryptosporidium parvum*, *Giardia lamblia*, Vaccinal Poliovirus Type 1, and bacteriophages ϕ X174 and MS2 with a drinking water biofilm and a wastewater biofilm. *Applied and Environmental Microbiology* 74(7), 2079-2088.
- Hendricks, D., Barrett, J.M., Bryck, J., Collins, M.R., Janonis, B.A., Lodsdon, G.S., Beer, C.R., Bellamy, W.D., Biberstine, J., Blair, J.R., Saterdal, R., Shieh, C.Y. & Sklenar, J. 1991 Manual of design for slow sand filtration, p. 288, American Water Works Association Research Foundation, Denver, Colorado, USA.
- Hendricks, D.W., Clunie, W.F., Sturbaum, G.D., Klein, D.A., Champlin, T.L., Kugrens, P., Hirsch, J., McCourt, B., Nordby, G.R., Sobsey, M.D., Hunt, D.J. & Allen, M.J. 2005 Filtration removals of microorganisms and particles. *Journal of Environmental Engineering* 131(12), 1621-1632.
- Herzig, J.P., Leclerc, D.M. & Le Goff, P. 1970 Flow of suspensions through porous media-Application to deep bed filtration. *Industrial & Engineering Chemistry* 62(5), 8-35.
- Hijnen, W.A.M. 2009 Elimination of micro-organisms in water treatment, University of Utrecht, Utrecht, The Netherlands, The Netherlands.
- Hijnen, W.A.M. & Medema, G.J. 2010 Elimination of micro-organisms by drinking water treatment processes, IWA publishing London.

- Hijnen, W.A.M., Medema, G.J. & van der Kooij, D. 2004 Quantitative assessment of the removal of indicator bacteria in full-scale treatment plants. *Water Science and Technology: Water Supply* 4(2), 47-54.
- Hijnen, W.A.M., Beerendonk, E.F. & Medema, G.J. 2006 Inactivation credit of UV radiation for viruses, bacteria and protozoan (oo)cysts in water: a review. *Water Research* 40(1), 3-22.
- Hijnen, W.A.M., Brouwer-Hanzens, A.J., Charles, K.J. & Medema, G.J. 2005 Transport of MS2 phage, *Escherichia coli*, *Clostridium perfringens*, *Cryptosporidium parvum*, and *Giardia intestinalis* in a gravel and a sandy soil. *Environmental Science and Technology* 39(20), 7860-7868.
- Hijnen, W.A.M., Willemsen-Zwaagstra, J., Hiemstra, P., Medema, G.J. & van der Kooij, D. 2000a Removal of sulphite-reducing clostridia spores by full-scale water treatment processes as a surrogate for protozoan (oo)cysts removal. *Water Science and Technology* 41(7), 165-171.
- Hijnen, W.A.M., Suylen, G.M.H., Bahlman, J.A., Brouwer-Hanzens, A. & Medema, G.J. 2010 GAC adsorption filters as barriers for viruses, bacteria and protozoan (oo)cysts in water treatment. *Water Research* 44(4), 1224-1234.
- Hijnen, W.A.M., Van Veenendaal, D.A., Van Der Speld, W.M.H., Visser, A., Hoogenboezem, W. & van der Kooij, D. 2000b Enumeration of faecal indicator bacteria in large water volumes using on site membrane filtration to assess water treatment efficiency. *Water Research* 34(5), 1659-1665.
- Hijnen, W.A.M., Dullemont, Y.J., 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(10), 2151-2162.
- Hsu, B.-M. & Huang, C. 2002 Influence of ionic strength and pH on hydrophobicity and zeta potential of *Giardia* and *Cryptosporidium*. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 201(1-3), 201-206.
- Hsu, B.-M., Huang, C. & Pan, J.R. 2001 Filtration behaviors of *Giardia* and *Cryptosporidium*-ionic strength and pH effects. *Water Research* 35(16), 3777-3782.
- Huck, P.M., Emelko, M.B., Coffee, B.M., Maurizio, D.D. & O'Melia, C.R. 2001 Filter operation effects on pathogen passage, p. 285, American Water Works Association Research Foundation, American Water Works Association and United States Environmental Protection Agency, Denver, Colorado, USA.
- Huck, P.M., Coffey, B.M., Anderson, W.B., Emelko, M.B., Maurizio, D.D., Slawson, R.M., Douglas, I.P., Jasim, S.Y. & O'Melia, C.R. 2002a Using turbidity and particle counts to monitor *Cryptosporidium* removals by filters. *Water Science and Technology: Water Supply* 2(3), 65-71.
- Huck, P.M., Coffey, B.M., Emelko, M.B., Maurizio, D.D., Slawson, R.M., Anderson, W.B., Van Den Oever, J., Douglas, I.P. & O'Melia, C.R. 2002b Effects of filter operation on *Cryptosporidium* removal. *Journal of the American Water Works Association* 94(6), 97-111.
- Huffman, D.E., Gennaccaro, A.L., Berg, T.L., Batzer, G. & Widmer, G. 2006 Detection of infectious parasites in reclaimed water. *Water Environment Research* 78(12), 2297-2302.

- Hunter, P.R., Payment, P., Ashbolt, N. & Bartram, J. 2003 Assessing Microbial Safety of Drinking Water. Improving approaches and methods. A. Dufour, M.S., W. Koster, J. Bartram, E. Ronchi and L. Fewtrell (ed), pp. 79-109.
- Hunter, R.J. 2001 Foundations of colloid science (Second Edition), Oxford University Press, Oxford, Toronto, Canada.
- Isaac-Renton, J., Li, A., Shay, S., Ong, C.S., Fyfe, M., Khan, M., Ruecker, N. & Neumann, N. (2005) *Watershed management and drinking water quality: preliminary studies in two Canadian provinces*. (American Water Works Association-Annual Conference San Francisco, California, USA, June 12-16), 14.
- Jaidi, K., Barbeau, B., Carrière, A., Desjardins, R. & Prévost, M. 2009 Including operational data in QMRA model: development and impact of model inputs. *Journal of Water and Health* 7(1), 77-95.
- Jegatheesan, V. & Vigneswaran, S. 2005 Deep bed filtration: mathematical models and observations. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology* 35(6), 515-569.
- Jiang, T., Hirasaki, G.J. & Miller, C.A. 2010 Characterization of kaolinite ζ potential for interpretation of wettability alteration in diluted bitumen emulsion separation. *Energy and Fuels* 24(4), 2350-2360.
- Johnson, W.P., Li, X. & Yal, G. 2007 Colloid retention in porous media: mechanistic confirmation of wedging and retention in zones of flow stagnation. *Environmental Science and Technology* 41(4), 1279-1287.
- Karaman, M.E., Pashley, R.M., Bustamante, H. & Shanker, S.R. 1999 Microelectrophoresis of *Cryptosporidium parvum* oocysts in aqueous solutions of inorganic and surfactant cations. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 146(1-3), 217-225.
- Kaucner, C., Davies, C.M., Ferguson, C.M. & Ashbolt, N.J. 2005 Evidence for the existence of *Cryptosporidium* oocysts as single entities in surface runoff. *Water Science and Technology* 52(8), 199-204.
- Kelley, M., Warriar, P., Brokaw, J., Barrett, K. & Komisar, S. (1995) *A study of two U.S. army installation drinking water sources and treatment systems for the removal of Giardia and Cryptosporidium*. (American Water Works Association-Water Quality Technology Conference New Orleans, Louisiana, USA, November 12-16), 2197-2215.
- King, B.J., Keegan, A.R., Monis, P.T. & Saint, C.P. 2005 Environmental temperature controls *Cryptosporidium* oocyst metabolic rate and associated retention of infectivity. *Applied and Environmental Microbiology* 71(7), 3848-3857.
- Kistemann, T., Classen, T., Koch, C., Dangendorf, F., Fischeder, R., Gebel, J., Vacata, V. & Exner, M. 2002 Microbial load of drinking water reservoir tributaries during extreme rainfall and runoff. *Applied and Environmental Microbiology* 68(5), 2188-2197.
- Korich, D.G., Mead, J.R., Madore, M.S., Sinclair, N.A. & Sterling, C.R. 1990 Effects of ozone, chlorine dioxide, chlorine, and monochloramine on *Cryptosporidium parvum* oocyst viability. *Applied and Environmental Microbiology* 56(5), 1423-1428.
- Kuznar, Z.A. & Elimelech, M. 2004 Adhesion kinetics of viable *Cryptosporidium parvum* oocysts to quartz surfaces. *Environmental Science and Technology* 38(24), 6839-6845.

- Kuznar, Z.A. & Elimelech, M. 2005 Role of surface proteins in the deposition kinetics of *Cryptosporidium parvum* oocysts. *Langmuir* 21(2), 710-716.
- Kuznar, Z.A. & Elimelech, M. 2006 *Cryptosporidium* oocyst surface macromolecules significantly hinder oocyst attachment. *Environmental Science and Technology* 40(6), 1837-1842.
- Lake, I.R., Bentham, G., Kovats, R.S. & Nichols, G.L. 2005 Effects of weather and river flow on Cryptosporidiosis. *Journal of Water and Health* 3(4), 469-474.
- Lalancette, C., G  n  reux, M., Mailly, J., Servais, P., C  t  , C., Michaud, A., Di Giovanni, G.D. & Pr  vost, M. 2012 Total and infectious *Cryptosporidium* oocyst and total *Giardia* cyst concentrations from distinct agricultural and urban contamination sources in Eastern Canada *Journal of Water and Health* 10(1), 147-160.
- Lang, J.S., Giron, J.J., Hansen, A.T., Trussell, R.R. & Hodges Jr., W.E. 1993 Investigating filter performance as a function of the ratio of filter size to media size. *Journal of the American Water Works Association* 85(10), 122-130.
- Laupland, K.B. & Church, D.L. 2005 Population-based laboratory surveillance for *Giardia* sp. and *Cryptosporidium* sp. infections in a large Canadian health region. *BMC Infectious Diseases* 5, 1-9.
- LeChevallier, M.W. & Norton, W.D. 1992 Examining relationships between particle counts and *Giardia*, *Cryptosporidium*, and turbidity. *Journal of the American Water Works Association* 84(12), 54-60.
- LeChevallier, M.W., Norton, W.D. & Lee, R.G. 1991 *Giardia* and *Cryptosporidium* ssp. in filtered drinking water supplies. *Applied and Environmental Microbiology* 57(9), 2617-2621.
- LeChevallier, M.W., Di Giovanni, G.D., Clancy, J.L., Bukhari, Z., Bukhari, S., Rosen, J.S., Sobrinho, J. & Frey, M.M. 2003 Comparison of method 1623 and cell culture-PCR for detection of *Cryptosporidium* spp. in source waters. *Applied and Environmental Microbiology* 69(2), 971-979.
- Li, X., Scheibe, T.D. & Johnson, W.P. 2004 Apparent decreases in colloid deposition rate coefficients with distance of transport under unfavorable deposition conditions: a general phenomenon. *Environmental Science and Technology* 38(21), 5616-5625.
- Liu, D., Johnson, P.R. & Elimelech, M. 1995 Colloid deposition dynamics in flow through porous media: role of electrolyte concentration. *Environmental Science Technology* 29(12), 2963-3973.
- Liu, H. & Fang, H.H.P. 2002 Extraction of extracellular polymeric substances (EPS) of sludges. *Journal of Biotechnology* 95(3), 249-256.
- Liu, Y. & Li, J. 2008 Role of *Pseudomonas aeruginosa* biofilm in the initial adhesion, growth and detachment of *Escherichia coli* in porous media. *Environmental Science and Technology* 42(2), 443-449.
- Liu, Y., Yang, C.-H. & Li, J. 2007 Influence of extracellular polymeric substances on *Pseudomonas aeruginosa* transport and deposition profiles in porous media. *Environmental Science and Technology* 41(1), 198-205.

- Liu, Y., Yang, C.-H. & Li, J. 2008 Adhesion and retention of a bacterial phytopathogen *Erwinia chrysanthemi* in biofilm-coated porous media. *Environmental Science and Technology* 42(1), 159-165.
- Logsdon, G.S., Symons, J.M., Hoyer Jr, R.L. & Arozarena, M.M. 1981 Alternative filtration methods for removal of *Giardia* cysts and cyst models. *Journal of the American Water Works Association* 73(2), 111-118.
- Logsdon, G.S., Thurman, V.C., Frindt, E.S. & Stoecker, J.G. 1985 Evaluating sedimentation and various filter media for removal of *Giardia* cysts. *Journal of the American Water Works Association* 77, 61-66.
- Logsdon, G.S., Horsley, M.B., Freeman, S.D.N., Neemann, J.J. & Budd, G.C. 2006 Filtration processes : a distinguished history and a promising future. *Journal - American Water Works Association* 98(3).
- Lytle, D.A., Johnson, C.H. & Rice, E.W. 2002 A systematic comparison of the electrokinetic properties of environmentally important microorganisms in water. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces* 24(2), 91-101.
- Mac Kenzie, W.R., Hoxie, N.J., Proctor, M.E., Gradus, M.S., Blair, K.A., Peterson, D.E., Kazmierczak, J.J., Addiss, D.G., Fox, K.R., Rose, J.B. & Davis, J.P. 1994 A massive outbreak in Milwaukee of *Cryptosporidium* infection transmitted through the public water supply. *The New England Journal of Medicine* 331(3), 161-167.
- Maddox-Hyttel, C., Langkjaer, R.B., Enemark, H.L. & Vigre, H. 2006 *Cryptosporidium* and *Giardia* in different age groups of Danish cattle and pigs - Occurrence and management associated risk factors. *Veterinary Parasitology* 141(1-2), 48-59.
- Magic-Knezev, A. & van der Kooij, D. 2004 Optimisation and significance of ATP analysis for measuring active biomass in granular activated carbon filters used in water treatment. *Water Research* 38(18), 3971-3979.
- Mazoua, S. & Chauveheid, E. 2005 Aerobic spore-forming bacteria for assessing quality of drinking water produced from surface water. *Water Research* 39(20), 5186-5198.
- McCuin, R.M. & Clancy, J.L. 2006 Occurrence of *Cryptosporidium* oocysts in US wastewaters. *Journal of Water and Health* 4(4), 437-452.
- McDowell-Boyer, L.M. 1992 Chemical mobilization of micron-sized particles in saturated porous media under steady flow conditions. *Environmental Science and Technology* 26(3), 586-593.
- McDowell-Boyer, L.M., Hunt, J.R. & Sitar, N. 1986 Particle transport through porous media. *Water resources Research* 22(13), 1901-1921.
- McLauchlin, J., Amar, C., Pedraza-Diaz, S. & Nichols, G.L. 2000 Molecular epidemiological analysis of *Cryptosporidium* spp. in the United Kingdom: results of genotyping *Cryptosporidium* spp. in 1,705 fecal samples from humans and 105 fecal samples from livestock animals. *Journal of Clinical Microbiology* 38(11), 3984-3990.
- McTigue, N.E., LeChevallier, M., Arora, H. & Clancy, J. 1998 National assessment of particle removal by filtration, p. 262, American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association, Denver, Colorado, USA.

- Medema, G. & Ashbolt, N. 2006 QMRA: its value for risk management, p. 36, Microrisk.
- Medema, G. & Smeets, P. 2009 Quantitative risk assessment in the water safety plan: case studies from drinking water practice. *Water Science and Technology: Water Supply* 9(2), 127-132.
- Medema, G.J., Schets, F.M., Teunis, P.F.M. & Havelaar, A.H. 1998 Sedimentation of free and attached *Cryptosporidium* oocysts and *Giardia* cysts in water. *Applied and Environmental Microbiology* 64(11), 4460-4466.
- Messner, M.J. & Wolpert, R.L. 2002 *Cryptosporidium* and *Giardia* occurrence in ICR drinking sources - statistical analyses of ICR data (Chapter 19), pp. 463-486, American Water Works Association Research Foundation and United States Environmental Protection Agency, Washington, DC, USA.
- Metge, D.W., Harvey, R.W., Aiken, G.R., Anders, R., Lincoln, G. & Jasperse, J. 2010 Influence of organic carbon loading, sediment associated metal oxide content and sediment grain size distributions upon *Cryptosporidium parvum* removal during riverbank filtration operations, Sonoma County, CA. *Water Research* 44(4), 1126-1137.
- Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs du Québec (MDDEP) 2012a Guide de conception des installations de production d'eau potable, p. 554.
- Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs du Québec (MDDEP) 2012b Guide d'interprétation du règlement sur la qualité de l'eau potable, p. 146.
- Moll, D.M. & Summers, R.S. 1999 Assessment of drinking water filter microbial communities using taxonomic and metabolic profiles. *Water Science and Technology* 39(7), 83-90.
- Morales, V.L., Parlange, J.-Y. & Steenhuis, T.S. 2010 Are preferential flow paths perpetuated by microbial activity in the soil matrix? A review. *Journal of Hydrology* 393(1-2), 29-36.
- Nieminski, E.C. (1994) *Removing Giardia and Cryptosporidium cysts through direct filtration and conventional treatment*. (American Water Works Association-Annual Conference New York, NY, USA, June 19-23).
- Nieminski, E.C. & Ongerth, J.E. 1995 Removing *Giardia* and *Cryptosporidium* by conventional treatment and direct filtration. *Journal of the American Water Works Association* 87(9), 96-106.
- Nieminski, E.C. & Bellamy, W.D. 2000 Application of surrogate measures to improve treatment plant performance, p. 282, American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association, Denver, Colorado, USA.
- Nieminski, E.C., Bellamy, W.D. & Moss, L.R. 2000 Using surrogates to improve plant performance. *Journal of the American Water Works Association* 92(3), 67-78.
- O'Melia, C. & Stumm, W. 1967 Theory of water filtration. *Journal of American Water Works Association* 59(11), 1393-1412.
- Olson, M.E., O'Handley, R.M., Ralston, B.J., McAllister, T.A. & Thompson, R.C.A. 2004 Update on *Cryptosporidium* and *Giardia* infections in cattle. *Trends in Parasitology* 20(4), 185-191.

- Ong, C., Moorehead, W., Ross, A. & Isaac-Renton, J. 1996 Studies of *Giardia* spp. and *Cryptosporidium* spp. in two adjacent watersheds. *Applied and Environmental Microbiology* 62(8), 2798-2805.
- Ongerth, J.E. & Pecoraro, J.P. 1995 Removing *Cryptosporidium* using multimedia filters. *Journal of the American Water Works Association* 87(12), 83-89.
- Ongerth, J.E. & Pecoraro, J.P. 1996 Electrophoretic mobility of *Cryptosporidium* oocysts and *Giardia* cysts. *Journal of Environmental Engineering* 122(3), 228-231.
- Ongerth, J.E., Hunter, G.D. & DeWalle, F.B. 1995 Watershed use and *Giardia* cyst presence. *Water Research* 29(5), 1295-1299.
- Oppenheimer, J.A., Aieta, E.M., Rhodes Trussell, R., Jacangelo, J.G. & Najm, I.N. 2000 Evaluation of *Cryptosporidium* inactivation in natural waters, p. 197, American Water Works Association Research Foundation and American Water Works Association, Denver, Colorado, USA.
- Park, Y., Atwill, E.R., Hou, L., Packman, A.I. & Harter, T. 2012 Deposition of *Cryptosporidium parvum* oocysts in porous media: a synthesis of attachment efficiencies measured under varying environmental conditions. *Environmental Science & Technology* 46(17), 9491-9500.
- Patania, N.L., Jacangelo, J.G., Cummings, L., Wilczak, A., Riley, K. & Oppenheimer, J. 1995 Optimization of filtration for cyst removal, p. 158, American Water Works Association Research Foundation, Denver, Colorado, USA.
- Payment, P. & Franco, E. 1993 *Clostridium perfringens* and somatic coliphages as indicators of the efficiency of drinking water treatment for viruses and protozoan cysts. *Applied and Environmental Microbiology* 59(8), 2418-2424.
- Payment, P., Godfree, A. & Sartory, D. 2002 *Clostridium*. Bitton, G. (ed), John Wiley & Sons.
- Payment, P., Berte, A., Prévost, M., Ménard, B. & Barbeau, B. 2000 Occurrence of pathogenic microorganisms in the Saint Lawrence River (Canada) and comparison of health risks for populations using it as their source of drinking water. *Canadian Journal of Microbiology* 46(6), 565-576.
- Pelley, A.J. & Tufenkji, N. 2008 Effect of particle size and natural organic matter on the migration of nano- and microscale latex particles in saturated porous media. *Journal of Colloid and Interface Science* 321(1), 74-83.
- Percival, S., Chalmers, R., Embrey, M., Hunter, P., Sellwood, J. & Wyn-Jones, P. 2004 Microbiology of waterborne diseases, Elsevier Academic Press, San Diego, California, USA.
- Prévost, M., Laurent, P., Servais, P. & Joret, J.-C. 2005 Biodegradable organic matter in drinking water treatment and distribution (First Edition), American Water Works Association, Denver, Colorado, USA.
- Rajagopalan, R. & Tien, C. 1976 Trajectory analysis of deep-bed filtration with the sphere-in-cell porous media model. *AIChE Journal* 22(3), 523-533.
- Ranucci, L., Müller, H.-M., La Rosa, G., Reckmann, I., Gomez Morales, M.A., Spano, F., Pozio, E. & Crisanti, A. 1993 Characterization and immunolocalization of a *Cryptosporidium* protein containing repeated amino acid motifs. *Infection and Immunity* 61(6), 2347-2356.

- Rechenburg, A., Koch, C., Classen, T. & Kistemann, T. 2006 Impact of sewage treatment plants and combined sewer overflow basins on the microbiological quality of surface water. *Water Science and Technology* 54(3), 95-99.
- Regli, S., Rose, J.B., Haas, C.N. & Gerba, C.P. 1991 Modeling the risk from *Giardia* and viruses in drinking water. *Journal of the American Water Works Association* 83(11), 76-84.
- Rendtorff, R.C. 1954 The experimental transmission of human intestinal protozoan parasites. II. *Giardia lamblia* cysts given in capsules. *American Journal of Epidemiology* 59(2), 209-220.
- Rice, E.W., Fox, K.R., Miltner, R.J., Lytle, D.A. & Johnson, C.H. 1996 Evaluating plant performance with endospores. *Journal of the American Water Works Association* 88(9), 122-130.
- Rijnaarts, H.H.M., Norde, W., Bouwer, E.J., Lyklema, J. & Zehnder, A.J.B. 1996 Bacterial deposition in porous media related to the clean bed collision efficiency and to substratum blocking by attached cells. *Environmental Science and Technology* 30(10), 2869-2876.
- Rittmann, B.E. 1982 The effect of shear stress on biofilm loss rate. *Biotechnology and Bioengineering* 24(2), 501-506.
- Rittmann, B.E. & Snoeyink, V.L. 1984 Achieving biologically stable drinking water. *Journal of the American Water Works Association* 76(10), 106-114.
- Robertson, L.J., Hermansen, L. & Gjerde, B.K. 2006a Occurrence of *Cryptosporidium* oocysts and *Giardia* cysts in sewage in Norway. *Applied and Environmental Microbiology* 72(8), 5297-5303.
- Robertson, L.J., Hermansen, L., Gjerde, B.K., Strand, E., Alvsvag, J.O. & Langeland, N. 2006b Application of genotyping during an extensive outbreak of waterborne Giardiasis in Bergen, Norway, during autumn and winter 2004. *Applied and Environmental Microbiology* 72(3), 2212-2217.
- Rochelle, P. & Clancy, J. 2006 The evolution of microbiology in the drinking water industry. *Journal of the American Water Works Association* 98(3), 163-191.
- Rouquet, V., Homer, F., Brignon, J.M., Bonne, P. & Cavard, J. 2000 Source and occurrence of *Giardia* and *Cryptosporidium* in Paris rivers. *Water Science and Technology* 41(7), 79-86.
- Ruohola, A.-M.J., Considine, R.F., Dixon, D.R., Fong, C. & Drummond, C.J. 2012 Mapping the nano-scale interaction between bio-colloidal *Giardia lamblia* cysts and silica. *Soft Matter* 8(22), 6083-6091.
- Ryan, J.N. & Elimelech, M. 1996 Colloid mobilization and transport in groundwater. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 107, 1-56.
- Sartory, D. 2003 *Clostridium perfringens* as a drinking water quality parameter: a summary review prepared by David Sartory on behalf of the European Microbiology Advisory Group (EMAG) for the article 12, technical committee as a contribution to the rolling revision of the drinking water directive 1998, pp. 1-7, EMAG.
- Sartory, D.P., Pritchard, A.M. & Holmes, P. 1993 Enumeration of sulphite-reducing clostridia from potable water supplies. *Water Science & Technology* 27(3-4), 279-282.

- Schets, F.M., van Wijnen, J.H., Schijven, J.F., Schoon, H. & de Roda Husman, A.M. 2008 Monitoring of waterborne pathogens in surface waters in Amsterdam, the Netherlands, and the potential health risk associated with exposure to *Cryptosporidium* and *Giardia* in these waters. *Applied and Environmental Microbiology* 74(7), 2069-2078.
- Schijven, J.F. & de Roda Husman, A.M. 2005 Effect of climate changes on waterborne disease in The Netherlands. *Water Science and Technology* 51(5), 79-87.
- Schijven, J.F., Teunis, P.F.M., Rutjes, S.A., Bouwknegt, M. & de Roda Husman, A.M. 2011 QMRAspot: a tool for quantitative microbial risk assessment from surface water to potable water. *Water Research* 45(17), 5564-5576.
- Schuster, C.J., Ellis, A.G., Robertson, W.J., Charron, D.F., Aramini, J.J., Marshall, B.J. & Medeiros, D.T. 2005 Infectious disease outbreaks related to drinking water in Canada, 1974-2001. *Canadian Journal of Public Health* 96(4), 254-258.
- Scott, T.M., McLaughlin, M.R., Harwood, V.J., Chivukula, V., Levine, A., Gennaccaro, A., Lukasik, J., Farrah, S.R. & Rose, J.B. 2003 Reduction of pathogens, indicator bacteria, and alternative indicators by wastewater treatment and reclamation processes. *Water Science and Technology: Water Supply* 3(4), 247-252.
- Searcy, K.E., Packman, A.I., Atwill, E.R. & Harter, T. 2005 Association of *Cryptosporidium parvum* with suspended particles: impact on oocyst sedimentation. *Applied and Environmental Microbiology* 71(2), 1072-1078.
- Searcy, K.E., Packman, A.I., Atwill, E.R. & Harter, T. 2006a Deposition of *Cryptosporidium* oocysts in streambeds. *Applied and Environmental Microbiology* 72(3), 1810-1816.
- Searcy, K.E., Packman, A.I., Atwill, E.R. & Harter, T. 2006b Capture and retention of *Cryptosporidium parvum* oocysts by *Pseudomonas aeruginosa* biofilms. *Applied and Environmental Microbiology* 72(9), 6242-6247.
- Servais, P., Billen, G., Ventresque, C. & Bablon, G.P. 1991 Microbial activity in GAC filters at the Choisy-le-Roi treatment plant. *Journal of the American Water Works Association* 83(2), 62-68.
- Signor, R.S., Ashbolt, N.J. & Roser, D.J. 2007 Microbial risk implications of rainfall-induced runoff events entering a reservoir used as a drinking-water source. *Water Supply: Research and Technology-Aqua* 56(8), 515-531.
- Sischo, W.M., Atwill, E.R., Lanyon, L.E. & George, J. 2000 Cryptosporidia on dairy farms and the role these farms may have in contaminating surface water supplies in the northeastern United States. *Preventive Veterinary Medicine* 43(4), 253-267.
- Smeets, P.W.M.H., Rietveld, L.C., van Dijk, J.C. & Medema, G.J. 2010 Practical applications of quantitative microbial risk assessment (QMRA) for water safety plans. *Water Science and Technology* 61(6), 1561-1568.
- Smeets, P.W.M.H., van Dijk, J.C., Stanfield, G., Rietveld, L.C. & Medema, G.J. 2007 How can the UK statutory *Cryptosporidium* monitoring be used for quantitative risk assessment of *Cryptosporidium* in drinking water? *Journal of Water and Health* 5(Suppl. 1), 107-118.
- Smith, H.V., Nichols, R.A.B. & Grimason, A.M. 2005 *Cryptosporidium* excystation and invasion: getting to the guts of the matter. *Trends in Parasitology* 21(3), 133-142.

- Stanfield, G., Carrington, E., Albinet, F., Compagnon, B., Dumoutier, N., Hambsch, B., Lorthioy, A., Medema, G., Pezoldt, H., de Roubin, M.-R., de Lohman, A. & Whitmore, T. 2000 An optimised and standardised test to determine the presence of the protozoa *Cryptosporidium* and *Giardia* in water. *Water Science and Technology* 41(7), 103-110.
- Swertfeger, J., Metz, D.H., DeMarco, J., Braghetta, A. & Jacangelo, J.G. 1999 Effect of filter media on cyst and oocyst removal. *Journal of the American Water Works Association* 91(9), 90-100.
- Symons, G.E. 2006 Water treatment through the ages. *Journal of the American Water Works Association* 98(3), 87-97.
- Syngouna, V.I. & Chrysikopoulos, C.V. 2013 Cotransport of clay colloids and viruses in water saturated porous media. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 416, 56-65.
- Tenter, A.M., Barta, J.R., Beveridge, I., Duszynski, D.W., Mehlhorn, H., Morrison, D.A., Thompson, R.C.A. & Conrad, P.A. 2002 The conceptual basis for a new classification of the coccidia. *International Journal for Parasitology* 32(5), 595-616.
- Teunis, P.F.M. & Havelaar, A.H. 2002 Risk assessment for protozoan parasites. *International Biodeterioration and Biodegradation* 50(3-4), 185-193.
- Teunis, P.F.M., Medema, G.J., Kruidenier, L. & Havelaar, A.H. 1997 Assessment of the risk of infection by *Cryptosporidium* or *Giardia* in drinking water from a surface water source. *Water Research* 31(6), 1333-1346.
- Thomas, K.M., Charron, D.F., Waltner-Toews, D., Schuster, C., Maarouf, A.R. & Holt, J.D. 2006 A role of high impact weather events in waterborne disease outbreaks in Canada, 1975-2001. *International Journal of Environmental Health Research* 16(3), 167-180.
- Thompson, R.C.A. 2004 The zoonotic significance and molecular epidemiology of *Giardia* and giardiasis. *Veterinary Parasitology* 126(1-2), 15-35.
- Tobiason, J.E. & O'Melia, C.R. 1988 Physicochemical aspects of particle removal in depth filtration. *Journal of the American Water Works Association* 80(12), 54-64.
- Tombácz, E. & Szekeres, M. 2006 Surface charge heterogeneity of kaolinite in aqueous suspension in comparison with montmorillonite. *Applied Clay Science* 34(1-4), 105-124.
- Tripathi, S., Champagne, D. & Tufenkji, N. 2012 Transport behavior of selected nanoparticles with different surface coatings in granular porous media coated with *Pseudomonas aeruginosa* biofilm. *Environmental Science & Technology* 46(13), 6942-6949.
- Tufenkji, N. 2007 Modeling microbial transport in porous media: traditional approaches and recent developments. *Advances in Water Resources* 30(6-7), 1455-1469.
- Tufenkji, N. & Elimelech, M. 2004a Correlation equation for predicting single-collector efficiency in physicochemical filtration in saturated porous media. *Environmental Science and Technology* 38(2), 529-536.
- Tufenkji, N. & Elimelech, M. 2004b Deviation from the classical colloid filtration theory in the presence of repulsive DLVO interactions. *Langmuir* 20(25), 10818-10828.

- Tufenkji, N. & Elimelech, M. 2005a Breakdown of colloid filtration theory: role of the secondary energy minimum and surface charge heterogeneities. *Langmuir* 21(3), 841-852.
- Tufenkji, N. & Elimelech, M. 2005b Spatial distributions of *Cryptosporidium* oocysts in porous media: evidence for dual mode deposition. *Environmental Science and Technology* 39(10), 3620-3629.
- Tufenkji, N., Dixon, D.R., Considine, R. & Drummond, C.J. 2006 Multi-scale *Cryptosporidium*/sand interactions in water treatment. *Water Research* 40(18), 3315-3331.
- Tufenkji, N., Miller, G.F., Ryan, J.N., Harvey, R.W. & Elimelech, M. 2004 Transport of *Cryptosporidium* oocysts in porous media: role of straining and physicochemical filtration. *Environmental Science and Technology* 38(22), 5932-5938.
- United States Environmental Protection Agency (USEPA) 1989 Federal Register. Part II. Drinking water; national primary drinking water regulations; filtration, disinfection; turbidity, *Giardia lamblia*, viruses, *Legionella*, and heterotrophic bacteria; Final rule, pp. 27485-27541, Washington, DC, USA.
- United States Environmental Protection Agency (USEPA) 1996a Method 6010B: Inductively coupled plasma-atomic emission spectrometry (Revision 2), p. 25.
- United States Environmental Protection Agency (USEPA) 1996b Method 3050B - Acid digestion of sediments, sludges, and soils (Revision), p. 12.
- United States Environmental Protection Agency (USEPA) 2005 Method 1623: *Cryptosporidium* and *Giardia* in water by filtration/IMS/FA, p. 76, Office of Water (4607), Washington, DC, USA.
- United States Environmental Protection Agency (USEPA) 2006 Federal Register. Part II. National primary drinking water regulations: Long Term 2 Enhanced Surface Water Treatment Rule; final rule, p. 136, Office of Science and Technology, Office of Water, Washington, DC, USA.
- Vasiliadou, I.A. & Chrysikopoulos, C.V. 2011 Cotransport of *Pseudomonas putida* and kaolinite particles through water-saturated columns packed with glass beads. *Water Resources Research* 47(2), W02543 (02541-02514).
- Verwey, E.J.W. 1947 Theory of the stability of lyophobic colloids. *The Journal of Physical and Colloid Chemistry* 51(3), 631-636.
- Verwey, E.J.W. & Overbeek, J.T.G. 1948 Theory of the stability of lyophobic colloids, Elsevier Publishing Company
- Wallis, P.M., Primrose, B. & Robertson, W.J. 1998 Outbreak of waterborne Giardiasis caused by sewage contamination of drinking water. *Environmental Health Reviews* 42(2), 44-51.
- Wallis, P.M., Erlandsen, S.L., Isaac-Renton, J.L., Olson, M.E., Robertson, W.J. & van Keulen, H. 1996 Prevalence of *Giardia* cysts and *Cryptosporidium* oocysts and characterization of *Giardia* spp. isolated from drinking water in Canada. *Applied and Environmental Microbiology* 62(8), 2789-2797.
- Wang, J.Z., Summers, R.S. & Miltner, R.J. 1995 Biofiltration performance: part 1, relationship to biomass. *Journal of the American Water Works Association* 87(12), 55-63.

- Warth, A.D. 1978 Relationship between the heat resistance of spores and the optimum and maximum growth temperatures of *Bacillus* species. *Journal of Bacteriology* 134(3), 699-705.
- West, T., Daniel, P., Meyerhofer, P., DeGraca, A., Leonard, S. & Gerba, C. (1994) *Evaluation of Cryptosporidium removal through high rate filtration*. (American Water Works Association-Annual Conference, New York, NY, USA, June 19-23), 493-499.
- Wilkes, G., Edge, T., Gannon, V., Jokinen, C., Lyautey, E., Medeiros, D., Neumann, N., Ruecker, N., Topp, E. & Lapen, D.R. 2009 Seasonal relationships among indicator bacteria, pathogenic bacteria, *Cryptosporidium* oocysts, *Giardia* cysts, and hydrological indices for surface waters within an agricultural landscape. *Water Research* 43(8), 2209-2223.
- Wilkes, G., Ruecker, N.J., Neumann, N.F., Gannon, V.P.J., Jokinen, C., Sunohara, M., Topp, E., Pintar, K.D.M., Edge, T.A. & Lapen, D.R. 2013 Spatiotemporal analysis of *Cryptosporidium* species/genotypes and relationships with other zoonotic pathogens in surface water from mixed-use watersheds. *Applied and Environmental Microbiology* 79(2), 434-448.
- Wolfe, M.S. 1992 Giardiasis. *Clinical Microbiology Reviews* 5(1), 93-100.
- Woo, D.M. & Vicente, K.J. 2003 Sociotechnical systems, risk management, and public health: comparing the North Battleford and Walkerton outbreaks. *Reliability Engineering and System Safety* 80(3), 253-269.
- World Health Organization (WHO) 2002 Guidelines for drinking-water quality. Addendum microbiological agents in drinking water (Second Edition), pp. 70-118, Geneva, Switzerland.
- World Health Organization (WHO) 2006 Guidelines for drinking water quality. *Cryptosporidium*, p. 138.
- World Health Organization (WHO) 2011 Guidelines for drinking-water quality (Fourth Edition), p. 564, Geneva, Switzerland.
- Wu, J., Long, S.C., Das, D. & Dorner, S.M. 2011 Are microbial indicators and pathogens correlated? A statistical analysis of 40 years of research. *Journal of Water and Health* 9(2), 265-278.
- Xagorarakis, I., Harrington, G.W., Assavasilavasukul, P. & Standridge, J.H. 2004 Removal of emerging waterborne pathogens and pathogen indicators pilot-scale conventional treatment. *Journal of the American Water Works Association* 96(5), 102-113.
- Xiao, L., Fayer, R., Ryan, U. & Upton, S.J. 2004 *Cryptosporidium* taxonomy: recent advances and implications for public health. *Clinical Microbiology Reviews* 17(1), 72-97.
- Xiao, L., Bern, C., Limor, J., Sulaiman, I., Roberts, J., Checkley, W., Cabrera, L., Gilman, R.H. & Lal, A.A. 2001 Identification of 5 types of *Cryptosporidium* parasites in children in Lima, Peru. *Journal of Infectious Diseases* 183(3), 492-497.
- Yang, H., Tong, M. & Kim, H. 2012 Influence of bentonite particles on representative gram negative and gram positive bacterial deposition in porous media. *Environmental Science & Technology* 46(21), 11627-11634.
- Yao, K.-M., Habibian, M.T. & O'Melia, C.R. 1971 Water and waste water filtration: concepts and applications. *Current Research* 5(11), 1105-1112.

Zhou, Z. & Gunter, W.D. 1992 The nature of the surface charge of kaolinite. *Clays and Clay Minerals* 40(3), 365-368.

Zhu, I.X., Getting, T. & Bruce, D. 2010 Review of biologically active filters in drinking water applications. *Journal of the American Water Works Association* 102(12), 67-77.

ANNEXE 1 – SCHÉMA DES COLONNES DES FILTRATION

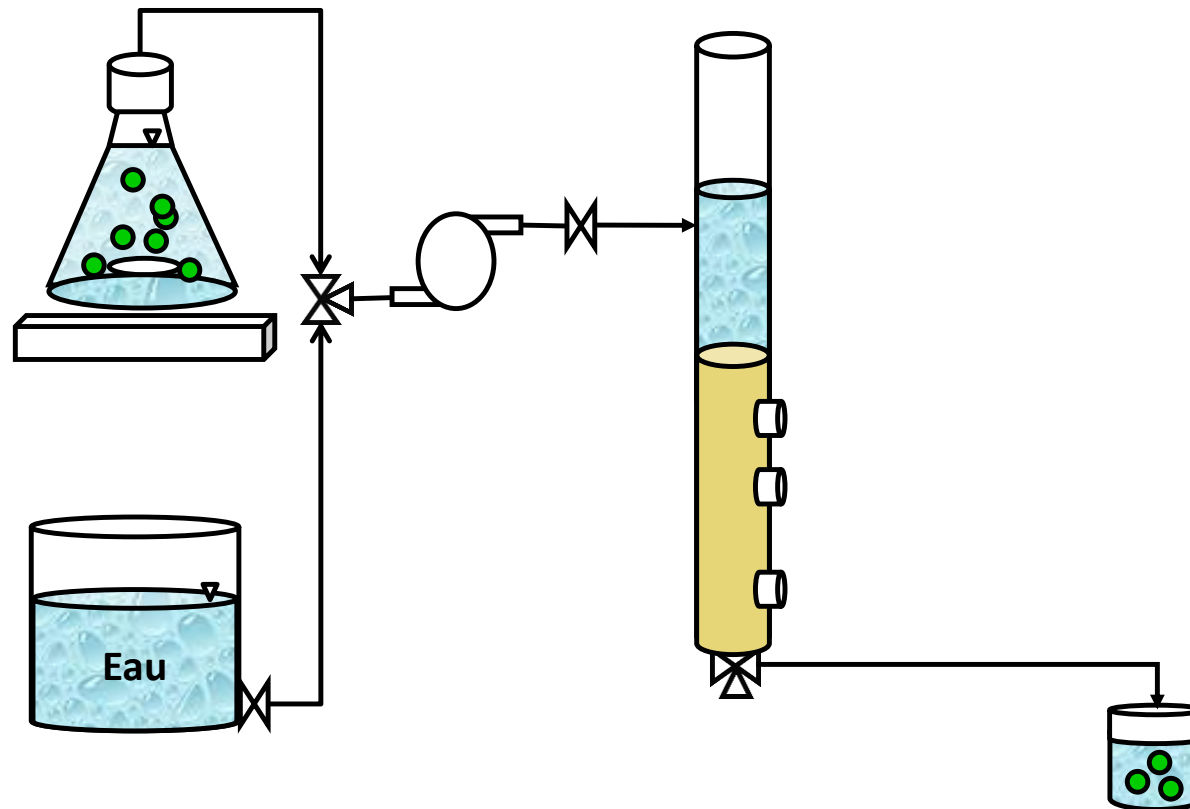


Figure A-1.1: Schéma du montage utilisé dans le cadre des essais de filtrations menés en laboratoire dans le cadre de cette thèse.

ANNEXE 2 - SUPPLEMENTAL DATA OF PUBLICATION #1: IMPACT OF MEDIA AGING ON THE REMOVAL OF *CRYPTOSPORIDIUM* IN GRANULAR MEDIA FILTERS

A-2.1 Size distribution of grains as a function of depth

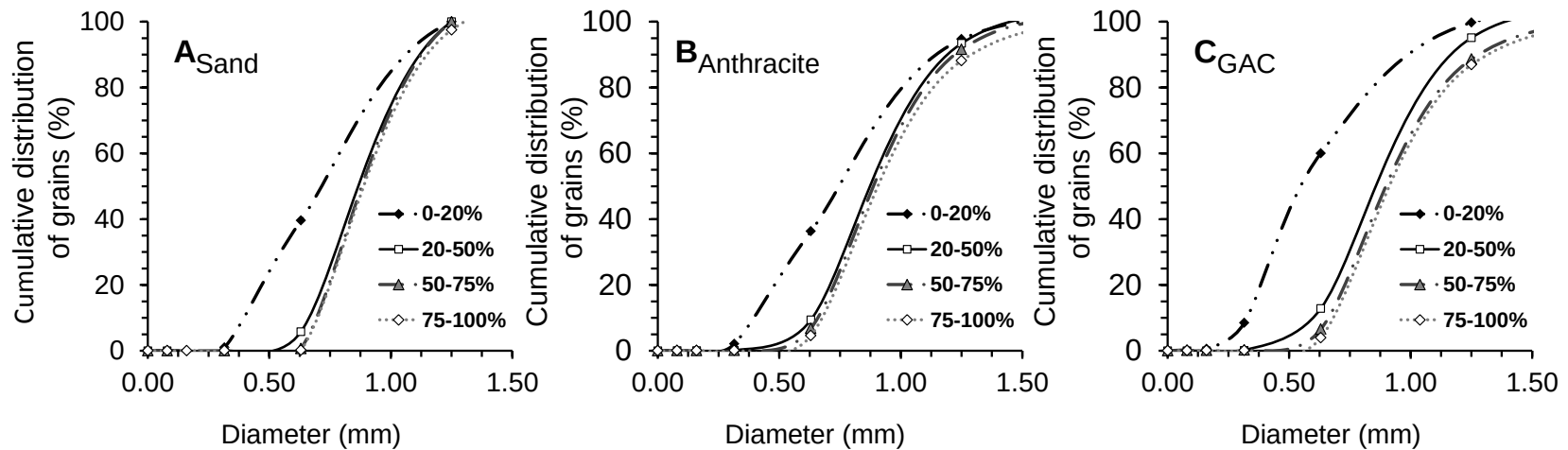


Figure A-2.1: Cumulative size distribution grains of new sand (A), new anthracite (B) and new GAC (C) as a function of depth subsequent to transport experiments

A-2.2 Characterization of the oocyst-to-collector grain size ratio with depth

Table A-2.1 Grain diameter according to sieving experiments and oocyst-to-collector ratio as a function of depth of the filter bed.

Media	Depth (%)	Diameter (mm)		d_p/d_c ¹ ratio	
		d_{10}	d_{50}	d_{10}	d_{50}
Sand	0-20	0.40	0.75	0.0113	0.0060
	20-50	0.66	0.86	0.0068	0.0052
	50-75	0.69	0.88	0.0065	0.0051
	75-100	0.70	0.89	0.0064	0.0051
Anthracite	0-20	0.40	0.75	0.0114	0.0060
	20-50	0.64	0.87	0.0071	0.0052
	50-75	0.66	0.89	0.0068	0.0051
	75-100	0.68	0.92	0.0066	0.0049
GAC	0-20	0.33	0.55	0.0136	0.0082
	20-50	0.60	0.86	0.0075	0.0052
	50-75	0.66	0.90	0.0068	0.0050
	75-100	0.68	0.91	0.0066	0.0049

¹⁻ d_p/d_c - ratio of oocyst diameter to the diameter of collector grains.

A-2.3 Predictions of the classical CFT model adjusted for the diameter of grains with column depth

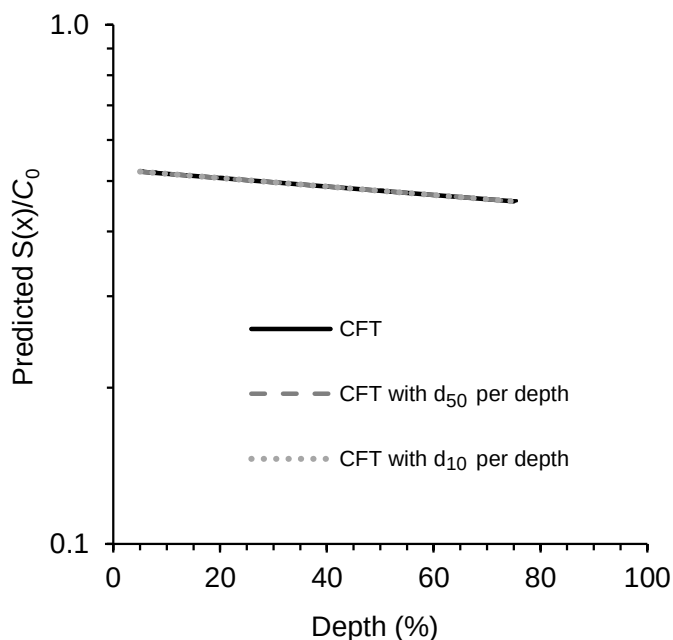


Figure A-2.2: Predicted oocyst retention profiles of new sand according to the classical CFT (bold line), predictions of classical CFT adjusted according to the median diameter (d_{50}) of collectors as a function of column depth as determined by sieving experiments (dashed line) and predictions of classical CFT adjusted according to the effective size (d_{10}) of collectors as a function of column depth as determined by sieving experiments (dotted line).

**ANNEXE 3 – SUPPLEMENTAL INFORMATION OF PUBLICATION #2:
IMPACT OF KAOLINITE CLAY PARTICLES ON THE FILTRATION OF
CRYPTOSPORIDIUM-SIZED MICROSPHERES**

Table A-3.1. Chemical composition of the synthetic water.

Salt	Concentration
MgSO ₄	0.260 mM
CaCO ₃	0.009 mM
Ca(HCO ₃) ₂	0.790 mM
CaCl ₂	0.026 mM
MgCl ₂	0.090 mM
KCl	0.051 mM
NaCl	0.522 mM
Total Ionic Strength	4.37 mM

Table A- 1. Chemical composition of the synthetic water

Table A-3.2. Measured physico-chemical properties of the synthetic water.

Alkalinity	79 ± 1 mg/L CaCO ₃
pH	8.20 ± 0.07
Temperature	20.6 ± 0.7°C



Figure A-3.1: Core sampling of the filter bed using a plastic syringe to push the media.

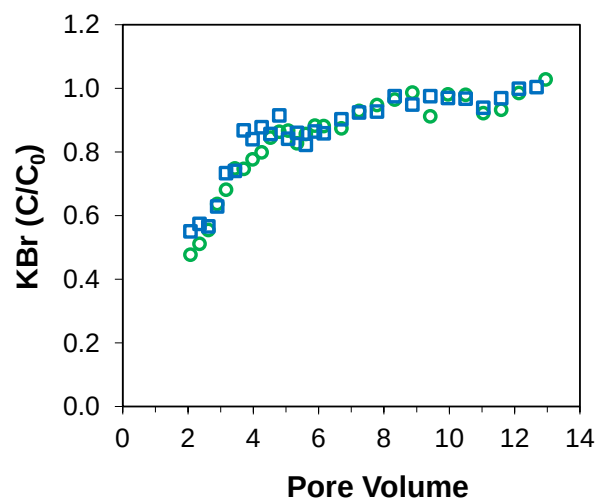


Figure A-3.2: Impact of the particulate load on tracer (Br^-) breakthrough curves prior (circles) and subsequent (squares) to kaolinite injection (10^6 particles mL^{-1}).