

Het transport van een opgeloste stof naar het grondwater: theorie en een lysimeter experiment

Inleiding

De zorg om de kwaliteit van het grondwater is de laatste jaren sterk toegenomen. Een aantal negatieve effecten van verontreinigingen is aan het licht gekomen. Voorbeelden zijn onder meer de uitspoeling van stikstof- en fosforverbindingen vanuit de landbouwgronden, zure regen en de talrijke gevallen waarbij door het storten van afval de kwaliteit van het grondwater wordt bedreigd. Om voorspellingen te kunnen doen ten aanzien van de verplaatsing van een stof naar het grondwater toe, is kennis van het



W. H. J. BELTMAN
student Milieuhygiëne
LU Wageningen



H. C. VAN OMMEN
vakgroep Cultuurtechniek
LU Wageningen

transportmechanisme noodzakelijk. Hiervoor is in het verleden een aantal modellen ontwikkeld, gebaseerd op verschillende concepten. In dit artikel zullen vier modellen besproken worden; elk hiervan is op een ander principe gebaseerd.

Er is een tweetal experimenten uitgevoerd, waarbij het concentratieverloop van een inerte stof – in dit geval chloride – in het percolatiewater is gemeten, nadat een eenmalige toediening aan het maaiveld heeft plaatsgevonden. De genoemde – en te bespreken – modellen zijn gebruikt om de uitkomsten van de experimenten te beschrijven en zijn daarna vergeleken op hun bruikbaarheid en nauwkeurigheid.

Theorie

Er wordt uitgegaan van pseudo-stationaire waterstroming; de hoeveelheid drainage water wordt dan als tijdsvariabele gebruikt. De gedachte, die hieraan ten grondslag ligt, is, dat er geen – of verwaarloosbaar – transport van een opgeloste stof plaatsvindt ten tijde dat er geen afvoer optreedt. In het volgende worden de gebruikte modellen beschreven.

1. De convectie-dispersie vergelijking, die uitgaat van een gemiddelde transportsnelheid van de opgeloste stof. De verdeling van de snelheid rond dit gemiddelde wordt beschreven door de diffusie/dispersiecoëfficiënt D :

$$\text{Dus: } D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - v \frac{\partial c}{\partial x} \quad (1)$$

Met:

c : concentratie van de opgeloste stof in het bodemwater (ML^{-3})

x : afstand (L)

t : tijd (T)

D : diffusie/dispersiecoëfficiënt, bevattend de effecten van diffusie en hydrodynamische dispersie (L^2T^{-1})

v : gemiddelde stroomsnelheid in de poriën (LT^{-1})

Vaak zijn de effecten van diffusie te verwaarlozen ten opzichte van de hydrodynamische dispersie, en wordt D weergegeven door:

$$D = \alpha v \quad (2)$$

met α als de dispersielengte.

Analytische oplossingen van (1) voor verschillende begin- en randvoorwaarden zijn onder andere gegeven door Van Genuchten & Alves [1982].

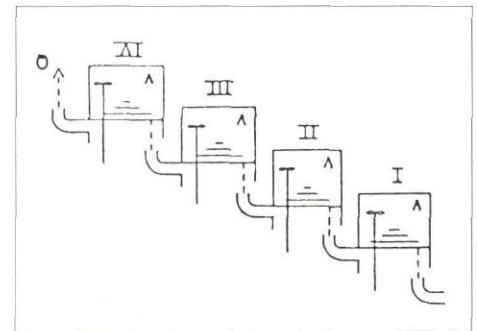
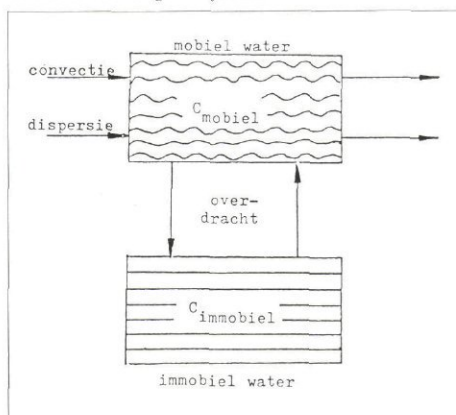
2. Het mobiele/immobiele uitwisselingsmodel. Dit gaat uit van een opdeling van het bodemvocht in twee ruimtelijk gescheiden fracties: een mobiele en een immobiele fractie. Transport met de waterstroming vindt plaats in de mobiele fractie, transport van en naar de (stagnante) immobiele fractie wordt bepaald door diffusie (afb. 1). Hoe een opgeloste stof zich door de bodem verplaatst, wordt bepaald door de verdeling van de vloeistoffase over de mobiele en immobiele fractie en de uitwisselingssnelheid daartussen.

Een dergelijk transportmodel zou bijvoorbeeld het transport kunnen beschrijven in een grond, die opgebouwd is uit aggregaten. Deze bevatten dan de immobiele fractie, terwijl door de er om heen gelegen grote poriën de mobiele fractie stroomt.

3. Het regionale stochastisch model; gebaseerd op een log-normale verdeling van de uitspoelingsnelheid v .

Op veldschaal blijkt de convectie-dispersie vergelijking het transport door de bodem

Afb. 1 - Schematisatie van het transport in een systeem met een mobiele en stagnante fractie.



Afb. 2 - Principe van het cascademodel om het transport van een opgeloste stof in de bodem te beschrijven.

soms minder goed te beschrijven. De snelheidsverschillen op deze schaal kunnen dan niet voldoende beschreven worden door het dispersiemechanisme alleen. In dit model wordt de uitspoelingsnelheid v beschouwd als een stochastische variabele. De bodem wordt dan opgebouwd gedacht uit een groot aantal parallelle kolommen, met elk zijn specifieke uitspoelingsnelheid, dispersiecoëfficiënt en randvoorwaarde. In iedere kolom afzonderlijk wordt het transport beschreven door de één-dimensionale convectie-dispersie vergelijking. De log-normale kansverdeling van de uitspoelingsnelheid v , gekarakteriseerd door het gemiddelde μ en de standaardafwijking σ van $\ln(v)$, luidt:

$$\rho(v) = \frac{1}{v\sigma\sqrt{2\pi}} \exp - \frac{(\ln(v) - \mu)^2}{2\sigma^2} \quad (3)$$

De gemiddelde uitspoelingsnelheid op veldschaal $\langle v \rangle$ wordt dan gegeven door:

$$\langle v \rangle = \exp(\mu + \sigma^2/2) \quad (4)$$

De spreiding van een opgeloste stof in de 'gemiddelde' kolom wordt dus bepaald door twee mechanismen: de dispersie in de kolom zelf en de spreiding van de uitspoelingsnelheid tussen de kolommen onderling.

4. Een andere methode om het transport te beschrijven is geënt op het principe om de bodem voor te stellen als een cascade van mengers [onder meer Van Ommen, 1985]. Het bodemprofiel wordt verdeeld in lagen, die elk als een afzonderlijke menger worden beschouwd. Aan de bovenkant van een laag infiltreert de vloeistof met daarin een bepaalde concentratie van een opgeloste stof. In zo'n laag treedt menging op en kunnen eventueel afbraak, productie en adsorptie van de opgeloste stof plaatsvinden. De effluentconcentratie van de laag is de invoerconcentratie voor de volgende laag (afb. 2). In deze opzet kunnen de parameters per laag ingevoerd worden en kan het model gebruikt worden voor niet-homogene bodemprofielen (bijvoorbeeld verschillende laagdiktes, vochtgehaltes, adsorptie en afbraak).

Experimenten

De experimenten zijn uitgevoerd in een lysimeterbak van 1,2 x 1,2 m, met een diepte van 1,25 m. Eenzelfde systeem is eerder gebruikt bij een studie naar zouttransport door Van Hoorn [1981]. De bak was gevuld met een grove zandgrond uit een groeve nabij Rhenen. Het zandpakket was 1 m dik, met daaronder een laag grof zand en grint van 0,15 m dik. Op de bodem van de bak lag een drainpijp voor de afvoer van het percolatie-water (afb. 3). Het gehele profiel was onverzadigd en doorgespoeld om het zout uit voorgaande experimenten te verwijderen.

De experimenten bestonden uit een éénmalige toediening van een hoeveelheid chloride ($11,1 \text{ keq/m}^2$) opgelost in een laag van 25 mm water. Tijdens het experiment is het oppervlak geheel onder water gezet. Het chloride was voor gelijke delen afkomstig van NaCl en CaCl₂. Gedurende een aantal weken vond na de toediening van het zout op gelijke wijze de toediening van water plaats, totdat ongeveer 90% van het toegediende chloride door uitspoeling was afgevoerd. Van iedere 5 mm effluent werd een mengmonster genomen en geanalyseerd op chloride door middel van elektrochemische titratie met zilver.

Om de invloed van de in werkelijkheid optredende niet-stationaire waterstroming in de bodem te bepalen, zijn twee experimenten uitgevoerd:

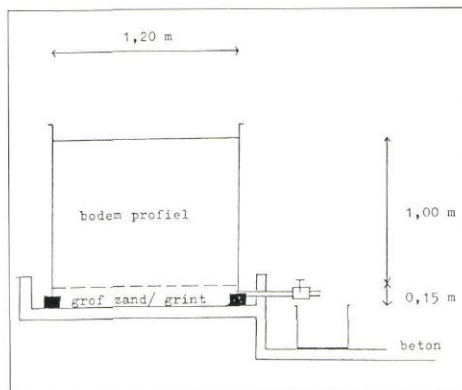
Experiment A: de verdamping uitgeschakeld door het afdekken van de bovenkant van de bak, regelmatige toediening van 100 mm water;

Experiment B: verdamping toegelaten, onregelmatige watertoediening wat betreft tijd en hoeveelheid (25-150 mm) per toediening. Om het bodemvochtgehalte te bepalen is tijdens de proef een aantal malen het bodemprofiel per laag van 10 cm bemonsterd. Deze bemonstering vond plaats op vijf verschillende locaties juist voor de watertoediening.

Resultaten

Allereerst werd getracht met gebruikmaking van het cascademodel een voorspelling te geven van de drainagewaterconcentratie als functie van de hoeveelheid afvoer. Hierna zijn de drie overige modellen getoetst op het vermogen om het transport in de lysimeter te beschrijven. Deze toetsing vond plaats door gebruik te maken van een kleinste kwadraten optimalisatie met behulp waarvan de transport parameters (zoals v , α en σ) verkregen werden, en deze op hun fysische waarde konden worden beoordeeld.

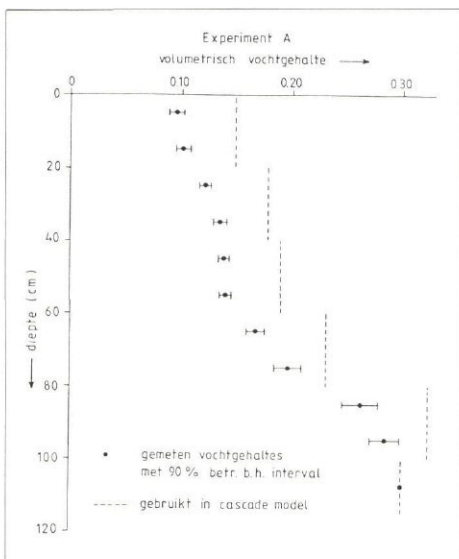
Om de voorspelling van de doorbraakcurves met behulp van het cascademodel te geven, is een aantal parameters nodig: per laag het volumetrisch vochtgehalte en de dikte



Afb. 3 - Proefopstelling.

dikte van het profiel en het aantal lagen). Als eerste benadering werd uitgegaan van een dispersielengte die 10% bedroeg van de afstand waarover het transport plaatsvond; resulterend in een dispersielengte van ongeveer 10 cm. Aangezien de oplossing van de convectie-dispersie vergelijking voor een uniform vochtprofiel overeenkomt met de oplossing die het cascademodel voor het transport in een homogene bodem geeft met laagdiktes van tweemaal de dispersielengte [Goudriaan, 1973], is gekozen voor een schematisatie van zes lagen van 20 cm dik. De vochtgehalten, die afgeleid zijn uit de bodembemonsteringen (afb. 4 en 5) zijn per laag ingevoerd. Afb. 4 toont het gemiddelde vochtgehalte als functie van de diepte voor experiment A. Deze vochtgehalten hebben betrekking op de tijd vlak voor de watertoediening; de gemiddelde vochtgehalten waarbij het transport plaatsvindt zullen dus hoger zijn. Deze zijn verkregen op de volgende wijze. Uitgaande van de gemeten vochtprofielen wordt verondersteld, dat een watergift van 100 mm een toename van het bodemvochtgehalte van gemiddeld 10% teweegbrengt. Deze toename van het vocht-

Afb. 4 - Vochtprofielen van experiment 'A'.



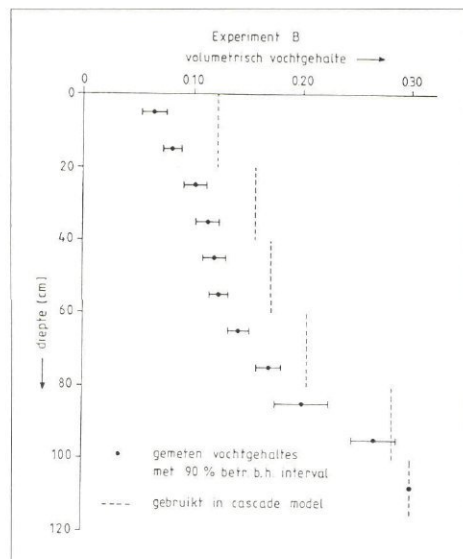
gehalte is voor elke diepte gelijk. De gemiddelde vochtgehalten waarbij het transport wordt verondersteld plaats te vinden, wordt nu verkregen door het gemiddelde – per laag – te nemen van de situatie voor en na de watertoediening. Hoewel de gekozen benadering de werkelijkheid niet beschrijft – of soms geweld aandoet – is deze benadering ook gebruikt bij experiment B (afb. 5), waarbij overigens is uitgegaan van de gemeten vochtgehalten, vermeerderd met 10% van het vochtgehalte tijdens de watertoediening. Aangezien de watergiften tijdens experiment B niet telkens 100 mm hebben bedragen, maar de ene keer meer, de andere keer minder dan de gift tijdens experiment A, is wel uitgegaan van gemiddeld dezelfde toename van het vochtgehalte tijdens de watertoediening.

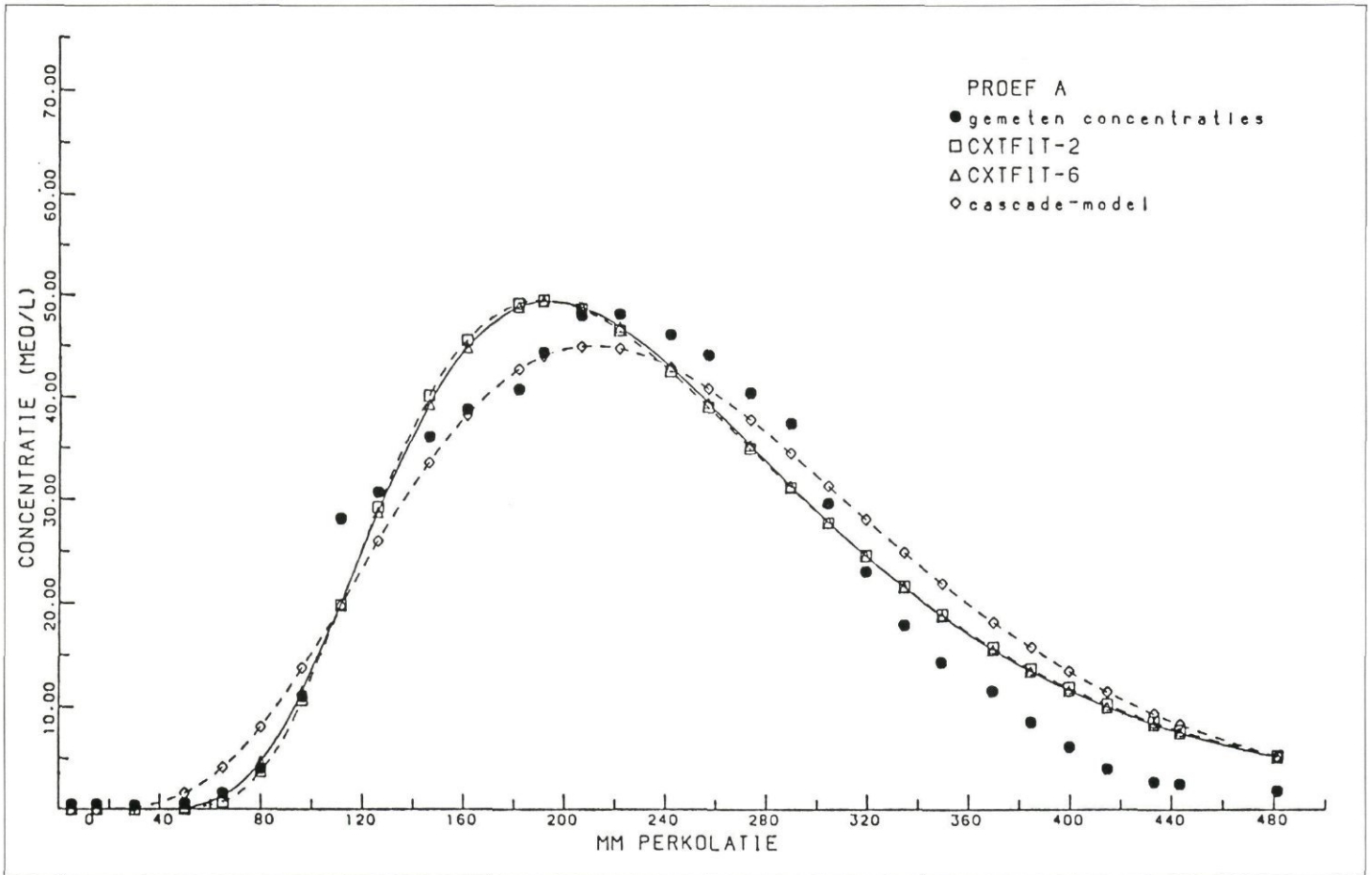
Het vochtgehalte van de laag waar zich de drainpijp in bevond, is gesteld – voor zowel experiment A als B – op 30%.

De resultaten van de berekeningen met het cascademodel (afb. 6 en 7) tonen, dat de momenten waarop de piekconcentraties in het drainagewater voorkomen, goed worden voorspeld. De hoogte van deze concentraties wordt in beide gevallen onderschat, wat erop zou kunnen duiden dat de dispersielengte – en dus de mate waarmee de piek wordt 'afgevlakt' – van ongeveer 10 cm te groot was gekozen. Overigens had deze geschatte dispersielengte betrekking op een uniforme bodem wat betreft het vochtgehalte; in het onderhavige geval is per laag het vochtgehalte ingevoerd zoals dat door de bodembemonstering is vastgesteld.

Bij de bepaling van de transportparameters met behulp van de kleinste kwadraten optimalisatie, is gebruik gemaakt van het programma CXTFIT, ontwikkeld door Parker en Van Genuchten [1984]. De gemiddelde afvoeren waren voor experiment A

Afb. 5 - Vochtprofielen van experiment 'B'.





Afb. 6 - Concentratie in het drainagewater als functie van de hoeveelheid afvoer voor experiment 'A'.

en B successievelijk 32 mm/dag en 9 mm/dag. Eerst wordt de parameterschatting besproken voor de convectie-dispersie vergelijking (CXTFIT-2). Met het programma werden de volgende resultaten verkregen:

experiment A:

$v = 151$ mm/dag, $\alpha = 123$ mm

experiment B:

$v = 45,1$ mm/dag, $\alpha = 87$ mm

De afb. 6 en 7 tonen aan, dat de concentratieverlopen voor beide experimenten goed beschreven kunnen worden met de convectie-dispersie vergelijking. Met de benaderde stroomsnelheden en de gemeten afvoerdebiten zijn de gemiddelde vochtgehalten te bepalen uit het quotiënt van het afvoerdebiet en de berekende transportsnelheid door de bodem. Voor experiment A leidt dit tot een gemiddeld vochtgehalte van $32/151 \times 100\% = 21,2\%$, voor experiment B tot $9/45,1 = 20,0\%$. Beide waarden komen goed overeen met de geschatte vochtgehalten waarbij transport zou optreden. De berekende waarden voor de dispersielengte blijken goed overeen te komen met de beginschatting van 10 cm, waarmee de voorspelling door het cascademodel is uitgevoerd. Vreemd is echter wel, dat een onregelmatige watertoediening (experiment B) tot een wat kleinere disper-

sielengte lijkt te leiden. Het vermoeden bestond immers, dat een onregelmatige watertoediening tot een grotere spreiding van de chlorideconcentratie in de bodem zou leiden, en dus een grotere dispersielengte ten gevolge zou hebben.

De parameterfit voor het immobiele/mobiele model (CXTFIT-4), bleek voor de experimenten minder goed te voldoen. Na een aantal iteraties kwam bij experiment A de fractie mobiel uit op nul, wat zou betekenen dat er geen mobiele fractie aanwezig was. Bij experiment B kwam de mobiele fractie van de totaal aanwezige hoeveelheid vocht uit op 11%. Op grond van de uitkomsten van CXTFIT-2 en het feit dat bij grof zand de vorming van een stagnante fase niet zal optreden, lijkt het niet waarschijnlijk dat het transport bij deze experimenten juist beschreven wordt met een immobiel/mobiel uitwisselingsmodel. De resultaten van de parameterbenadering met CXTFIT-4 zijn daarom ook niet gepresenteerd.

De concentraties in het drainagewater blijken wel goed beschreven te kunnen worden met het regionale stochastische model. Zoals al besproken in het voorgaande, gaat het model uit van een gemiddelde snelheid met een afvlakingsmechanisme enerzijds door dispersie en anderzijds door het log-normaal

verdeeld zijn van de uitspoelingsnelheid over het veld, in dit geval de lysimeter. Uit de resultaten van het optimaliseringsprogramma blijkt, dat de effluentcurve het best beschreven wordt door de volgende parameters:

experiment A:

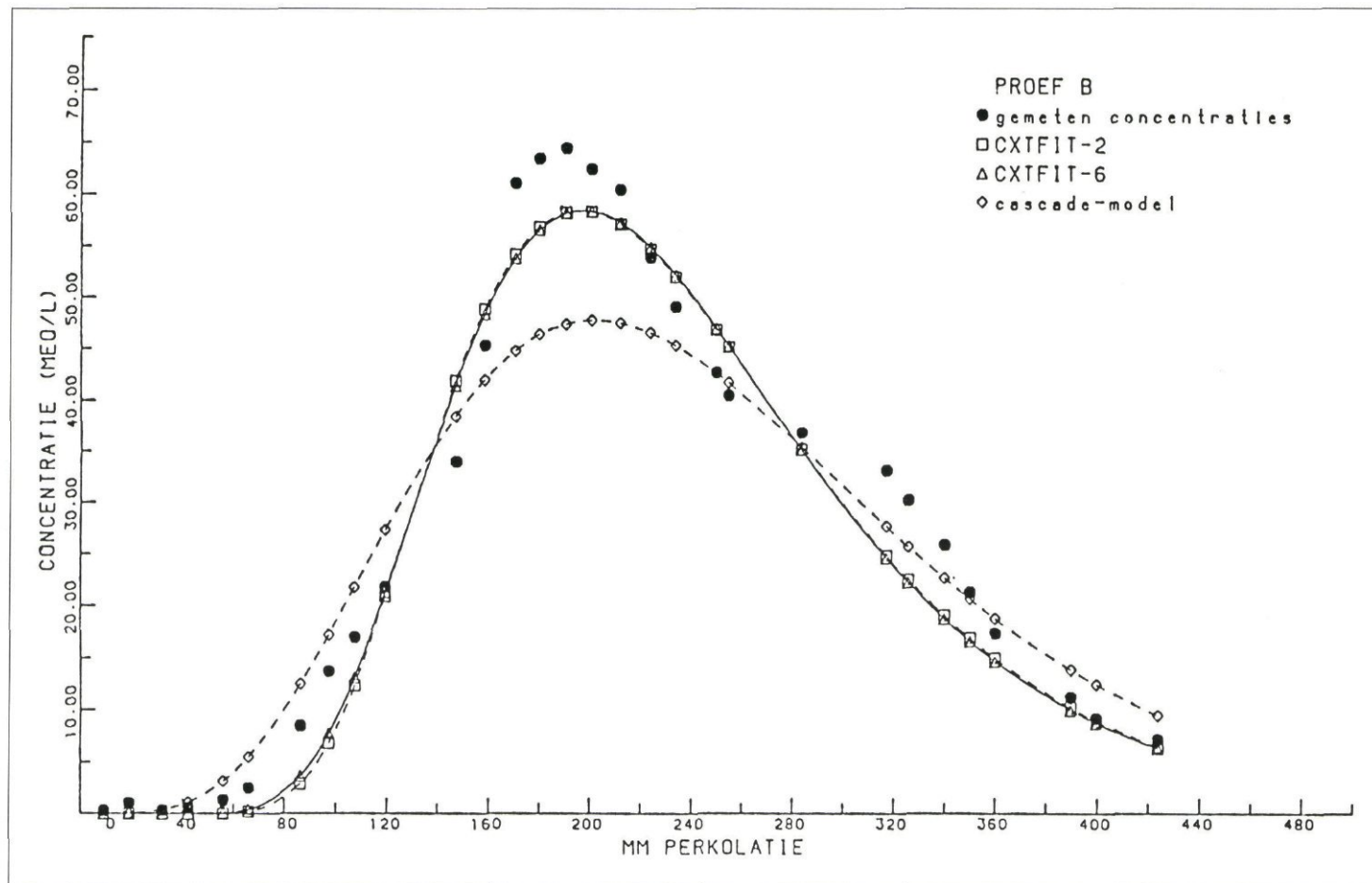
$v = 151$ mm/dag $\alpha = 1,98$ mm $\sigma = 0,44$

experiment B:

$v = 45,2$ mm/dag $\alpha = 2,71$ mm $\sigma = 0,37$

De afvlakking van het concentratieverloop vindt nu dus – op grond van de resultaten van CXTFIT-6 – voornamelijk plaats door de snelheidsverschillen in het veld; het effect van dispersie is hieraan ondergeschikt. Of dit een juiste voorstelling is van het transport door de bodem, is met behulp van de uitgevoerde bemonsteringen niet te achterhalen. In ieder geval vallen de gemiddelde verplaatsingssnelheden nagenoeg samen met die snelheden, die berekend zijn met behulp van CXTFIT-2 voor de convectie-dispersie vergelijking.

Ter vergelijking van de verschillende modellen ten opzichte van elkaar is de som van de kwadraten van de verschillen tussen gemeten en voorspelde c.q. gefitte concentraties berekend:



Afb. 7 - Concentratie in het drainagewater als functie van de hoeveelheid afvoer voor experiment 'B'.

	experiment A	experiment B
CXTFIT-2	579	596
CXTFIT-6	522	589
Cascademodel	627	1.533

Hieruit is af te lezen dat de parameterfit met het regionale stochastische model de kleinste som van de kwadraten heeft. Dit is niet zo verwonderlijk, als men bedenkt, dat het aantal te fitten parameters in dit geval gelijk aan drie is, terwijl de convectie-dispersie-vergelijking 'gefit' wordt met twee parameters. Het cascademodel geeft een voorspelling aan de hand van gemeten en geschatte parameters. Dit model blijkt bij experiment A wat nauwkeurigheid betreft goed overeen te komen met de door CXTFIT uitgevoerde optimalisaties. De resultaten van experiment B leveren een ander beeld op; de aanvankelijk te groot geschatte dispersielengte zou hier mede debet aan kunnen zijn.

Conclusies

De effluentconcentratie van chloride blijkt voor de uitgevoerde experimenten goed te voorspellen als functie van de hoeveelheid drainagewater.

Het regionale stochastische model blijkt de effluentconcentratie als functie van de afvoer,

het best te kunnen beschrijven.

Het mobiel/immobiel uitwisselingsmodel lijkt de bij deze experimenten waargenomen transportmechanismen niet goed te beschrijven.

De vergelijking van de uitkomsten van beide experimenten laat zien dat de voorspelde concentraties het meest overeenkomen met de waargenomen concentraties in het geval van experiment A.

De dispersielengte, die voor experiment B berekend wordt, is lager dan die voor experiment A; het omgekeerde werd eigenlijk verwacht.

De verplaatsing van een opgeloste stof door de onverzadigde zone naar het grondwater, blijkt bij de uitgevoerde experimenten met de gebruikte modellen goed te voorspellen en te beschrijven met uitzondering van het immobiel/mobiel uitwisselingsmodel.

Het op veldschaal gebruik maken van deze modellen dient echter nog met de nodige voorzichtigheid te gebeuren. Er zijn aanwijzingen, dat nog andere factoren een rol kunnen spelen. Zo kan het optreden van instabiele vochtfronten leiden tot een aanmerkelijk kortere reistijd tussen het bodemoppervlak en het grondwater [Van Ommen and Thunnissen, 1987].

Literatuurlijst

- Genuchten, M. Th. van and Alves, W. J. (1982). *Analytical solutions of the one-dimensional convective-dispersive solute transport equation*. US Department of Agriculture. Technical Bulletin No. 1661, 151 p.
- Goudriaan, J. (1973). *Dispersion in simulation models of population growth and salt movement in the soil*. Neth. J. of Agric. Sci. 21: p. 269-281.
- Hoorn, J. W. van (1981). *Salt movement, leaching efficiency, and leaching requirement*. Agricultural Water Management 4, p. 363-428.
- Jury, W. A. and Stolzy, L. H. (1982). *A field test of the transfer function model for predicting solute transport*. Water Resources Research 2, p. 369-375.
- Ommen, H. C. van (1985). *Calculating the quality of drainage water from non-homogeneous soil profiles with an extension to an unsaturated-saturated groundwater quality model including bypass flow*. Agricultural Water Management 10, p. 293-304.
- Ommen, H. C. van and Thunnissen, H. A. M. (1987). *Transport from a diffuse source of contamination - a field experiment*. Proceedings of VSGP '87 Congress Noordwijk, The Netherlands.
- Parker, J. C. and Genuchten, M. Th. van (1984). *Determining transport parameters from laboratory and field tracer experiments*. Virginia Agricultural Experiment Station, Bulletin 84-3, 96 pag.

● ● ●