

**BODEMWATERKWALITEIT
IN WISSELWERKING MET
BIOLOGISCHE, CHEMISCHE EN HYDROLOGISCHE PROCESSEN**



COMMISSIE VOOR HYDROLOGISCH ONDERZOEK TNO

RAPPORTEN EN NOTA'S No. 23

**BODEMWATERKwaliteit
IN WISSELWERKING MET
BIOLOGISCHE, CHEMISCHE EN HYDROLOGISCHE PROCESSEN**



**COMMISSIE VOOR HYDROLOGISCH ONDERZOEK TNO
RAPPORTEN EN NOTA'S No. 23**

**BODEMWATERKWALITEIT
IN WISSELWERKING MET
BIOLOGISCHE, CHEMISCHE EN HYDROLOGISCHE PROCESSEN**

CIP-DATA

Bodemwaterkwaliteit

Bodemwaterkwaliteit in wisselwerking met biologische, chemische en hydrologische processen (auteurs: G.H. Bolt et al.; samensteller: J.C. Hooghart), 's-Gravenhage; Commissie voor Hydrologisch Onderzoek TNO.-111.- (Rapporten en Nota's/Commissie voor Hydrologisch Onderzoek TNO, no. 23).

Verslag van de 8e CHO-Studiebijeenkomst in het IAC te Wageningen, op 8 mei 1990.

Met lit. opg., reg.

ISBN 90-6743-175-3

Trefwoord: hydrologie, chemie, biologie, bodem.

Copyright © NEDERLANDSE ORGANISATIE VOOR TOEGEPAST
NATUURWETENSCHAPPELIJK ONDERRZOEK, 1990

**BODEMWATERKWALITEIT
IN WISSELWERKING MET
BIOLOGISCHE, CHEMISCHE EN HYDROLOGISCHE PROCESSEN**



**8e CHO-Studiebijeenkomst, 8 mei 1990,
IAC te Wageningen**

**COMMISSIE VOOR HYDROLOGISCH ONDERZOEK TNO
's-Gravenhage, 1990**

RAPPORTEN EN NOTA'S No. 23

VOORWOORD

De 8e CHO-Studiebijeenkomst, met als thema "Bodemwaterkwaliteit in wisselwerking met biologische, chemische en hydrologische processen", is gehouden op 8 mei 1990 in het Internationaal Agrarisch Centrum te Wageningen.

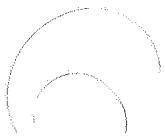
Het doel van de bijeenkomst was een aantal onderzoekers bij elkaar te brengen met zeer verschillende achtergrond, namelijk de biologie, de geochemie en de hydrologie, om kennis te nemen van elkaars inzichten ten aanzien van betreffend thema. Deze 8e studiebijeenkomst vertoont een zekere samenhang met drie voorgaande bijeenkomsten, namelijk de eerste studiebijeenkomst "Waterkwaliteit in grondwaterstromingsstelsels", de derde met als thema "Grondwaterkwaliteit in relatie met onderzoek en beleid" en de zesde studiebijeenkomst ging over het thema "Ruimtelijke variabiliteit van bodem en water".

Naast de inleidingen die duidelijk de problemen in de drie vakgebieden schetsen, zijn in deze publikatie de stellingen opgenomen, die vooraf waren opgesteld en een samenvatting van de discussie. Bovendien was aan de deelnemers gevraagd in het kort aan te geven wat hun ervaringen en ideeën waren ten aanzien van het behandelde onderwerp. Deze bijdragen zijn gebundeld onder de kop "Ingezonden schriftelijke bijdragen van de deelnemers".

Achterin de publikatie is een lijst met namen en adressen van de deelnemers opgenomen, alsmede het programma van de studiebijeenkomst.

Hoewel het aantal deelnemers aan de studiebijeenkomst was gelimiteerd, zullen hopelijk ook vele andere geïnteresseerden, middels deze publikatie kennis nemen van de resultaten van de bijeenkomst.

's-Gravenhage, augustus 1990



INHOUDSOPGAVE

1	BODEMWATERKWALITEIT IN RELATIE TOT DE ONDERLIGGENDE PROCESSEN; ALGEMENE INLEIDING	1
	G.H. Bolt	
2	HYDROLOGISCHE PROCESSEN IN RELATIE MET DE KWALITEIT VAN BODEM- EN GRONDWATER	9
	J. Hoeks en H.C. van Ommen	
	1 Inleiding	9
	2 Modelling van hydrologische processen	10
	3 Koppeling met transport van opgeloste stoffen	18
	4 Opschaling en schatten van parameters	25
	5 Conclusies	30
	Referenties	31
3	BODEMCHEMISCHE ASPECTEN VAN BODEM EN GRONDWATER- KWALITEIT	35
	W.H. van Riemsdijk	
	Samenvatting	35
	1 Inleiding	36
	2 Conceptuele benadering ten aanzien van het chemisch stofgedrag in bodemsystemen	37
	3 Heterogeniteitsproblematiek	43
	4 Chemie en transport	47
	Referenties	50
4	DE INVLOED VAN GEOCHEMISCHE PROCESSEN OP BODEMWATER- KWALITEIT; TOEPASSINGEN	53
	N.M. de Rooij	

1	Inleiding	53
2	Beschrijving chemische processen bodemwaterkwaliteit	54
3	Ervaringen beschrijvingen waterkwaliteit	56
4	Conclusies	59
	Referenties	60
5	DE INVLOED VAN BIOLOGISCHE PROCESSEN OP DE BODEM- WATERKWALITEIT	63
	Samenvatting	63
	P. van Beelen en J. Notenboom	
1	Inleiding	63
2	De microbiologische bodemwaterkwaliteit	64
3	De chemische bodemwaterkwaliteit	65
	Referenties	70
6	MICROBIAL DEGRADATION OF HEXACHLOROCYCLOHEXANE ISOMERS IN MINERAL SOIL AND OF ENDOSULFAN ISOMERS IN ORGANIC SOIL IN CONNECTION WITH SOIL AND WATER QUALITY; ECOTOXICOLOGICAL RESEARCH	73
	P. Doelman	
	Abstract	73
1	Introduction	74
2	Materials and Methods	75
3	Results and Discussion	78
4	Concluding Remarks	89
	References	90
7	SAMENVATTING VAN DE DISCUSSIE	93
8	INGEZONDEN SCHRIFTELIJKE BIJDRAGEN VAN DE DEELNEMERS	105
9	DEELNEMERSLIJST	133
10	PROGRAMMA STUDIEBIJEENKOMST	139

BODEMWATERKWALITEIT IN RELATIE TOT DE ONDERLIGGENDE PROCESSEN; ALGEMENE INLEIDING

G.H. Bolt

Zoals mede blijkt uit de hierna volgende inleidingen en uit de opgenomen schriftelijke bijdragen, bestaat er weinig onenigheid tussen betrokken wetenschappers met betrekking tot de hoofdlijnen van het te bespreken onderwerp. Voorafgaande aan een beschouwing van deze hoofdlijnen, een opmerking over de inhoud van het begrip Bodemwaterkwaliteit, kortheidshalve hier aangeduid als BWK. Uiteraard houdt het begrip kwaliteit een aanpasbare definitie in: het gebruiksdoel bepaalt mede de omschrijving.

Echter, terwijl dit zeer duidelijk is wanneer men spreekt over de kwaliteit van oppervlaktewater (refereert men aan 'zwem'water, aan water voor scheepvaart, aan water in een natuurreserveaat, etc.), in het geval van 'bodemwater' is het gebruiksdoel zeer veel nauwer bepaald. De situatie iets chargerend kan men stellen dat de functie van bodemwater slechts is die van een waterige vloeistoffase met een bepaalde samenstelling. Elk gebruik, met uitzondering van de opname door plantewortels, vindt plaats nadat het de bodem heeft verlaten, en dus geen bodemwater meer is. Aangezien de opname door de wortel in feite een passage door een moleculair filter inhoudt, is de kwaliteit van bodemwater aldus goed gekarakteriseerd door de chemische samenstelling, plus eventueel een specificatie van de microben populatie.

In het kader van het bovenstaande wijs ik met nadruk op de recente inaugurele rede van H.J. Achterhuis (1990) getiteld "van moeder aarde tot ruimteschip: humanisme en milieucrisis". Deze citeert met instemming de opmerking dienaangaande van Ivan Illich "dat als water tot zijn chemische formule (H_2O) wordt gereduceerd, aan het gebruik ervan geen grenzen gesteld kunnen worden".

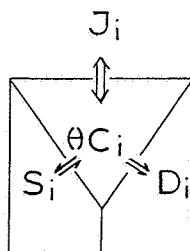
Met inachtneming van bovenstaande opmerking, en voorts mij in het bijzonder richtend op het ontwerp en gebruik van modellen ter voorspelling van BWK, lijkt het alleszins verantwoord uit te gaan van een "nauwe" definitie volgens:

$$BWK \equiv O_{x,t} [C_i] \quad (1)$$

$$i = 1 \rightarrow n$$

waar O bedoeld is als een 'specificatie-functie', i.e. een opsomming in tijd en plaats, en C wordt gebruikt om de concentratie in de waterfase aan te geven. Aldus, BWK ligt vast wanneer alle betrokken concentraties van opgeloste componenten zijn gespecificeerd gedurende het tijdvak van beschouwing.

Wat betreft de onderliggende processen die een verandering (in de tijd) van BWK veroorzaken is het duidelijk dat deze laatste wordt bepaald door de netto-influx per volume-eenheid bodem, de herverdeling over de waterfase en eventueel andere fasen en voorts door (bio)degradatieprocessen. Vanwege het dominante aandeel van water als carrier van bewegende stoffen in de bodem, is met bovenstaande zin aldus de rol van de in de titel van de studiebijeenkomst gespecificeerde bodemprocessen nader aangegeven. De netto-influx is dan in eerste instantie bepaald door *hydrologische* processen, evenzeer als de herverdeling een zaak is van *bodemchemische* interacties, terwijl de *biotische* bodemprocessen bepalend zijn voor degradatie alsmede andere vormen van verdwijnen zoals opname in organismen. Schematisch is het geheel weergegeven in figuur 1.



Figuur 1: Schema van de lokale conserveringsconditie voor een opgeloste component i , aanwezig in hoeveelheid θC_i ; (θ = vochtgehalte) in een volume eenheid bodem, en onderhevig aan de influx, J , sorptie, S , en degradatie, D .

Na deze expositie van gemeenschappelijke uitgangspunten wil ik ingaan op de moeilijkheden die zich voordoen als men deze uitgangspunten tracht toe te passen ten behoeve van het maken van voorspellingen. In de eerste plaats de genoemde netto-influx. De flux-dichtheid aangevend met de letter J , geeft dit voor het homogene medium:

$$\text{netto-influx component } i = - \nabla \cdot J_i \quad (2)$$

$$\text{terwijl dan } J_i = J_w \cdot C_i + J_i^D, \quad (3)$$

waarin J^D staat voor diffusie/dispersie flux.

Men kan dan vaststellen dat slechts zelden (in het geval van de hier besproken 'courante' fluxen) een longitudinale diffusie-term gebaseerd op (bekende) moleculaire diffusieverschijnselen een rol van betekenis speelt. Anderzijds kan men gemakkelijk laten zien dat de berekening van 'meso' schaal fluxen in het geval dat de flux-dichtheid van de carrier varieert in de transversale richting, in principe aanleiding wordt tot het ontstaan van een 'velocity-dispersion' flux van dezelfde vorm als de standaard diffusie flux, i.e. een flux evenredig met de gradiënt van de concentratie. Het bovenstaande kan in een algemene vorm worden aangegeven met de betrekking:

$$J_i \approx J_w \cdot C_i \quad (4)$$

hetgeen als stelling X werd opgenomen aangezien beide ongelijkheidstekens door indieners werden genoemd.

In het voorbijgaan wordt er hier op gewezen dat hierbij twee aspecten apart dienen te worden beschouwd. Dit is enerzijds de discrepantie tussen een gedefinieerde lokale concentratie en de waarde die men experimenteel vaststelt met een of andere bemonsteringsmethode. Anderzijds is dit het meer formele aspect zoals dit volgt wanneer men de ongelijkheid:

$$\langle J_i \rangle \equiv \langle J_w \cdot C_i \rangle \neq \langle J_w \rangle \cdot \langle C_i \rangle \quad (5)$$

nader beschouwt. Voor het geval dat beide grootheden in hun distributie van waarden positief zijn gecorreleerd, zal de ongelijkheid (4) overgaan in 'groter dan'. In dat geval geeft een normale verdeling met een niet te grote spreiding een vergelijking van het type (3), waarbij de dispersieterm evenredig wordt met ∇C . De evenredigheidsconstante is dan zelf weer evenredig met $\langle J_w \rangle$; aldus $J_w^D \approx L \langle J_w \rangle \nabla C$, waarbij L de dispersielengte (dispersivity) wordt genoemd.

Teruggaand naar (4) kan men niettemin vaststellen dat de netto-influx (zie vgl. (2)) veelal dezelfde grootte orde heeft als de lokale divergentie van het produkt $J_w \cdot C_i$. Wat dat betreft zijn aldus de hydrologische aspecten van de (verandering van) BWK relatief eenvoudig, althans dezelfde als die processen welke worden beschouwd bij de voorspelling van de waterhuishouding. Het is hierbij belangrijk dat voor grotere gebieden de klimatologische randvoorwaarden dominant zijn. Om het wat simplistisch voor te stellen: via de Meteoriedienst weet men de dagelijkse neerslag en verdamping, waarvan de netto hoeveelheid bij het grondwater terecht komt met enige vertraging ten gevolge van buffering in de bodem. Als men dit hydrologische model kan voorzien van een redelijke schatting van de lokale concentraties dan heeft men eigenlijk de eerste term van de conserveringsvoorwaarde zoals in figuur 1 aangegeven, in handen.

De tweede (*chemische*) term waarmee de herverdeling over de fasen wordt beschreven brengt veel problemen met zich mee. Ruwweg hebben deze van doen met sortieprocessen, welke

- a. dikwijls aanleiding zijn tot een distributie-verhouding tussen vaste en vloeistoffase in de orde van 100;
- b. ten dele door de slechte bereikbaarheid van reactieve sites, vaak niet binnen de beschikbare 'residence time' voor passerende solutes tot evenwicht komen;
- c. vaak niet reversibel zijn, en
- d. in sommige gevallen interactief zijn ten opzichte van elkaar (competitie van componenten i en j voor dezelfde 'sites', in andere gevallen synergistisch ten gevolge van coprecipitatie.

Hierbij tellend de ruimtelijke variabiliteit welke die van de fysische bodemparameters wellicht evenaart, komt men in eerste instantie tot sombere verwachtingen over de

mogelijkheden tot voorspelling van de chemische herverdelingsterm die de lokale verandering van BWK mede beheerst. Wellicht ten overvloede kan men hierbij opmerken dat aldus de lokale retardatie-factor voor de voortdringing van 'pollutants' in verhouding tot die van de carrier water vaak onderhevig is aan onzekerheden van dezelfde orde als die van de distributie-verhouding. Typerend hierbij is dat het effect van onvolledige equilibratie bij te korte 'residence' tijd voert tot een vergroting van de spreiding, door superpositie van het effect van de spreiding van stroomsnelheden ten gevolge van heterogeniteit van het poriënstelsel. Aldus zijn de snelste poriën onderhevig aan een geringere retardatie dan de langzame poriën.

Los van eventueel incomplete equilibratie, kan anderzijds worden gesteld dat de 'capaciteiten' (tot sorptie) over een groot gebied zich wel lenen tot middeling als men is geïnteresseerd in de opslag van bepaalde 'solutes' (bv. Fosfaat) per ha. Daartegenover is de doorbraak van een toegevoegde 'solute' kritisch afhankelijk van de snelste (i.e. minst geretardeerde) stroombaan, waarvan het procentuele oppervlak dikwijls moeilijk is af te schatten. Het hangt dus vaak af van de gestelde vraag, in hoeverre men met gemiddelden van chemische sorptiecapaciteiten toch nog een verantwoorde schatting kan maken. In een poging tot generalisatie: Terwijl doorbraak van een 'ongewenste' solute in bijvoorbeeld aquifers moeilijk is te schatten aan de hand van gebiedsgemiddelde gegevens over sorptiecapaciteiten, zijn dezelfde gegevens wel van waarde voor een schatting van de 'naleveringscapaciteit' van een gebied nadat men de influx van een 'pollutant' heeft gestopt.

Tenslotte, ter completering, een enkele opmerking over de impliciete interactie tussen de 'divergentie flux-term' en de herverdelingsterm. Het moge dan zo zijn dat de specificatie van de carrierflux-distributie over een formatie wat verder is gevorderd dan de specificatie van de retardatiefactor-distributie, kwantitatieve modellering verlangt uiteraard de tweede in samenhang met de eerste wil men een distributie van soluteflux-divergenties kunnen opstellen. Voorts geldt dan nog dat de retardatiefactor mede afhankelijk is van de residence time, die weer van de lokale carriërflux afhangt. Aldus, er is weinig hoop op een werkelijke specificatie van een soluteflux-vectorveld in een reële situatie, en men zal naar vooraf gemiddelde waarden moeten. Het is daarbij wel een open vraag in hoeverre een poging tot specificatie van een distributie van lokale carriërflux densities de beste ingang is. Mogelijk

bieden aangenomen distributies van residence times een aantrekkelijker perspectief.

De derde term van belang is de *(bio)degradatie*. Er zijn belangrijke verschillen in aard met de tweede (chemische) term. Terwijl deze laatste duidelijk plaats gebonden is en aldus typisch onderhevig is aan de genoemde heterogeniteit van de bodem, geldt dit voor de biodegradatie slechts indirect. Veeleer is de hoofdfactor bij te verwachten verschillen in eerste instantie de aard van de af te breken stof. Op indirecte wijze doet de lokale bodemgesteldheid mee in zoverre deze bepalend is voor de algemene condities tijdens eventuele afbraakprocessen. Anaërobie is een tekenend voorbeeld, echter ook is vaak de pH van doorslaggevende betekenis voor het al dan niet verlopen van een afbraakreactie. De gevoeligheid voor dit soort bodemfactoren is dan stof/afbraakorganisme bepaald. Aldus is de ingang hier veelal via de stof waarvoor men is geïnteresseerd. Als voorbeeld: anorganische pollutants doen dikwijls niet mee (Zware Metalen!). Het lijkt dat voor afbreekbare stoffen microbiologische laboratoriumstudies over afbraak in 'grond' veelal de eerste informatie verschaffen. Als het afbrekend organisme(n) bekend is geworden, kan men een nadere aftasting van zijn 'gevoeligheden' ondernemen. Enige andere 'eigen'aardigheden bij de afbraak term zijn de gevoeligheid voor de temperatuur (Q10), als typisch voor bioprocessen, en de aanwezigheid van een 'aanloop'periode, nodig voor het opbouwen van de populatie van 'eters'. Hierover is ook een stelling aanwezig.

Het geheel nog eens samenbindend, wil ik hiervoor de gegeneraliseerde vorm van de lokale conserveringsvergelijking gebruiken. Zoals in de tekening hiervoor werd aangegeven, is de verandering van de concentratie van stoffen in de waterfase van de bodem het centrale punt van de beschrijving. Deze kan men sterk idealiserend voor een enkele component i schrijven als:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[\left\{ \frac{\hat{S}_i}{C_i} + 1 \right\} \cdot \Theta C_i \right] + \nabla \cdot \left[J_w \cdot C_i + J_i^D \right] - r_D = 0 \quad (6)$$

$10 - 100 \qquad \alpha$

Het opvallende is dan dat de bodemvariabiliteit, aangrijpend op alle termen zoals aangegeven met het teken \wedge , via deze termen effecten heeft op de schatting van de BWK

welke sterk in betekenis kunnen verschillen. Zo is mogelijk de lokale waarde van de 'degradatie-coëfficiënt' r_D , hoewel species- en tijd-afhankelijk, hoogstens indirect afhankelijk van de variatie in andere bodemparameters. Voorts is de invloed van de variabiliteit van J^D vaak beperkt vanwege het karakter van de dispersieflux als fractionele correctie, α , op de convectieterm. Vermoedelijk het grootste effect wordt gevonden via de term S_i/C_i omdat daar de betekenis van de onzekerheid door de relatief grote waarde van de relevante term sterk doorwerkt in de verandering van C_i met de tijd. Voorts is deze chemische term bij uitstek de plaats waar eventuele interacties tussen meerdere opgeloste componenten plaatsvindt. Terugvallend op een der stellingen van vandaag: de hydrologie moge redelijk bekend zijn (als formulering), het is de toevoeging van de lokale C_i die zeer sterk variabel is ten gevolge van de chemische heterogeniteit van de bodem, welke de voorspelling van de lokale waarden van de soluteflux J_i beheerst. De kennis van de bodemchemie en zijn variabiliteit is dan de 'limiting factor' voor vele modelberekeningen.

LITERATUUR

ACHTERHUIS, H.J., 1990. Van Moeder Aarde tot Ruimteschip; Humanisme en Milieucrisis. Inaugurale rede, Landbouwniversiteit, Wageningen.

Voor de beschrijving van de hydrologische processen en het transport van water in de bodem wordt veelal gebruik gemaakt van wiskundige modellen. Daarbij dient men zich te realiseren dat zelfs een complex model niet meer dan een vereenvoudigde afspiegeling van de werkelijkheid is. Bij de ontwikkeling van een model, maar ook bij de selectie van een reeds bestaand model, moet daarom eerst worden vastgesteld welke processen van belang zijn en welke aannamen nodig en verantwoord zijn om de werkelijk optredende processen en de geometrie van het systeem te vereenvoudigen. De toegestane schematisering en vereenvoudiging van het werkelijke systeem zal sterk afhangen van de vraagstelling.

In dit artikel zal de modellering van hydrologische processen en de koppeling van het watertransport met het stoftransport worden besproken. Belangrijke aandachtspunten zijn daarbij de toegepaste schematisaties en de schatting van parameters in relatie met de gekozen schaal en de ruimtelijke variabiliteit. Tijdens het transport van opgeloste stoffen in de bodem vinden interactieprocessen plaats, welke grote invloed hebben op de verplaatsingssnelheid en de concentraties van deze stoffen. De chemische en biologische processen in de bodem worden in deze publikatie uitvoerig besproken door Van Riemsdijk (1990), De Rooy (1990), Van Beelen en Nootenboom (1990) en Doelman (1990).

2 MODELLERING VAN HYDROLOGISCHE PROCESSEN

2.1 Het conceptuele model

Voor de beschrijving van de hydrologie wordt het bodemsysteem meestal meer of minder geschematiseerd. Bij het opstellen van een conceptueel model worden met name schematisaties en vereenvoudigingen ingevoerd voor de volgende onderdelen:

- geometrie van het gebied en de onderverdeling in homogene deelgebieden;
- bodemopbouw, waarbij het profiel wordt onderverdeeld in een aantal homogene lagen;
- soort stroming (1-, 2- of 3-dimensionaal, laminair of turbulent), bijvoorbeeld alleen verticale stroming in de onverzadigde zone en in afdekkende pakketten en alleen 2-dimensionale (horizontale) stroming in watervoerende pakketten;

- eigenschappen van water (dichtheid, viscositeit), waarbij bijvoorbeeld de effecten van opgeloste stof en temperatuur op dichtheid en viscositeit al dan niet worden verwaarloosd;
- relevante toestandsvariabelen;
- bronnen en sinks van water;
- randvoorwaarden langs de grenzen van het beschouwde systeem (opgelegde potentiaal of flux).

De veronderstelling, dat onderdelen van het te beschrijven gebied homogeen zijn, brengt met zich mee dat gemiddelde parameterwaarden moeten worden gezocht voor de onderscheiden homogene lagen of deelgebieden. In werkelijkheid is er echter sprake van heterogeniteit en ruimtelijke variabiliteit van de parameterwaarden. Het is mogelijk hiermee rekening te houden door parameters een verwachtingswaarde en een spreiding mee te geven. Met stochastische modellen kan dan worden berekend welke consequenties dit heeft voor het berekende resultaat. Meestal heeft men echter slechts beperkte informatie over de stochastische verdeling van parameterwaarden. De spreiding van parameterwaarden kan van plaats tot plaats sterk verschillen, hoewel mogelijk een samenhang is te verwachten met de aard van de geologische afzettingen.

2.2 Het wiskundige model

2.2.1 Flux- en continuïteitsvergelijkingen

De meeste transportmodellen zijn in feite niet meer dan massabalansen. Dit geldt bijvoorbeeld voor het transport van water, maar ook voor het transport van opgeloste stoffen, gassen en warmte. Voor de beschrijving van de bodem- en grondwaterkwaliteit moeten de fysische transportverschijnselen worden beschouwd in wisselwerking met de interactieprocessen in de bodem, met name biologische en chemische processen. De continuïteitsvergelijking (= massabalans) voor het transport van opgeloste stoffen in de

bodem brengt deze samenhang van processen tot uitdrukking. In geval van één-dimensionaal transport kan deze vergelijking als volgt worden geschreven:

$$\delta(\Theta C)/\delta t + \delta Q/\delta t + \delta P/\delta t = -\delta F/\delta x - \alpha - S_c \quad (1)$$

waarbij de flux van opgeloste stoffen (F) bestaat uit twee termen, namelijk convectief transport en transport als gevolg van dispersie en diffusie:

$$F = vC - D \delta C/\delta x \quad (2)$$

dus:

$$-\delta F/\delta x = -\delta(vC)/\delta x + \delta(D \delta C)/\delta x^2 \quad (3)$$

De symbolen in deze vergelijkingen hebben de volgende betekenis:

- C = concentratie van betreffende component (g.cm^{-3})
- Q = hoeveelheid geadsorbeerd (g.cm^{-3})
- P = hoeveelheid geprecipiteerd (g.cm^{-3})
- Θ = volumetrisch vochtgehalte ($\text{cm}^3.\text{cm}^{-3}$)
- α = afbraaksnelheid ($\text{g.cm}^{-3}.\text{s}^{-1}$)
- v = waterflux ($\text{cm}^3.\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$)
- S_c = sinkterm, bijvoorbeeld opname van opgeloste stoffen in het gewas, toevoer of onttrekking van water met opgeloste stoffen via putten ($\text{g.cm}^{-3}.\text{s}^{-1}$)
- D = dispersiecoëfficiënt voor hydrodynamische dispersie (= mechanische dispersie + moleculaire diffusie) ($\text{cm}^2.\text{s}^{-1}$)
- x = afstand in transportrichting (cm)
- t = tijd (s)

In deze vergelijkingen, die het transport van opgeloste stoffen in de bodem beschrijven, komen enkele termen voor die te maken hebben met het transport en de berging van water,

namelijk θ (vochtgehalte) en v (waterflux of filtersnelheid van het water). Andere termen kunnen indirect hiermee samenhangen, bijvoorbeeld α is vaak afhankelijk van het luchtgehalte en de temperatuur (dus indirect ook van het vochtgehalte) en D (althans de mechanische dispersie) is afhankelijk van v .

Alvorens de continuïteitsvergelijking voor het stoffentransport kan worden opgelost, zal dus eerst de continuïteitsvergelijking voor het watertransport moeten worden opgelost. Voor één-dimensionaal transport van water ziet deze er als volgt uit:

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = -\frac{\partial v}{\partial x} - S \quad (4)$$

De flux v (ook wel filtersnelheid genoemd) wordt beschreven met de Wet van Darcy:

$$v = -k \left(\frac{\partial h}{\partial x} \right) \quad (5)$$

De stijghoogte (h) bestaat uit twee termen, namelijk de drukhoogte (p) en de plaatshoogte (z):

$$h = p + z \quad (6)$$

en combinatie van de vergelijkingen (4), (5) en (6) geeft:

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left\{ k \frac{\partial (p+z)}{\partial x} \right\} - S \quad (7)$$

De symbolen in de vergelijkingen (4) t/m (7) hebben de volgende betekenis:

- θ = vochtgehalte ($\text{cm}^3 \cdot \text{cm}^{-3}$)
- S = sinkterm, bijvoorbeeld wateropname in gewas of watertoevoer of -onttrekking via putten ($\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)
- k = doorlatendheid voor water ($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$)
- h = stijghoogte, d.i. potentiaal uitgedrukt als waterkolomhoogte (cm)

2.2.2 Onverzadigde zone

Combinatie van vergelijkingen (5) en (6) voor één-dimensionaal verticaal transport in de onverzadigde zone levert de vergelijking:

$$v = -k(p) \left\{ \frac{\delta p}{\delta z} + 1 \right\} \quad (8)$$

waarin $k(p)$ de onverzadigde doorlatendheid of ook wel het capillair geleidingsvermogen is. Deze is niet constant maar afhankelijk van de vochtspanning en dus van het vochtgehalte van de grond.

De relatie tussen de vochtspanning en het vochtgehalte wordt weergegeven met de zogenaamde pF-curve ($pF = \log(-p)$). De linkerterm in vergelijking (7) kan nu als volgt worden geschreven:

$$\delta\theta/\delta t = C(p) \delta p/\delta t \quad (9)$$

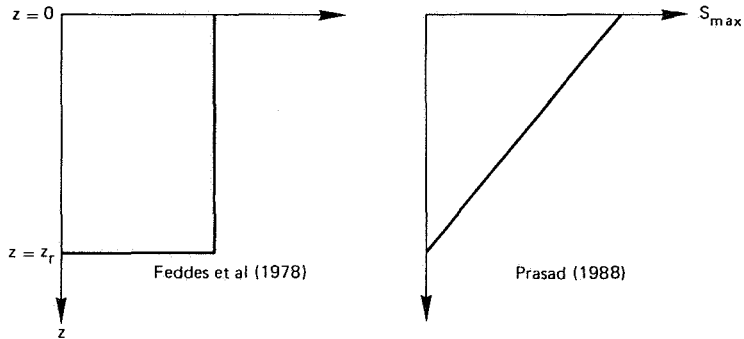
waarin $C(p)$ is de differentiële vochtcapaciteit, of wel de eerste afgeleide van de θ -p curve ($\delta\theta/\delta p$).

Voor onverzadigde omstandigheden en één-dimensionaal verticaal transport gaat vergelijking (7) over in:

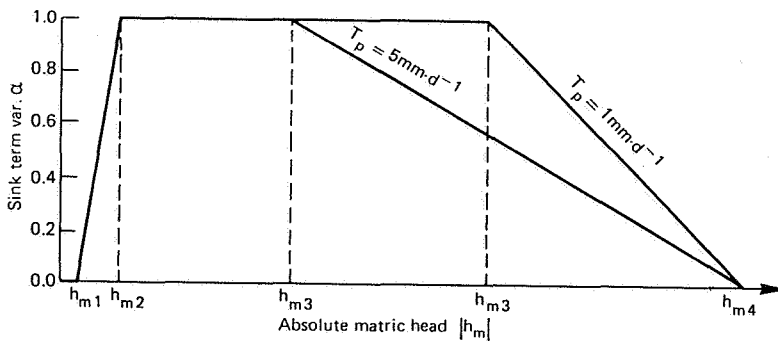
$$\delta p/\delta t = [1/C(p)] \delta/\delta z \left\{ k(p) \left(\frac{\delta p}{\delta z} + 1 \right) \right\} - S/C(p) \quad (10)$$

De sinkterm S omvat meerdere termen en is afhankelijk van plaats en tijd. Aan maaiveld betreft het bijvoorbeeld de tijdsafhankelijke toevoer van regenwater en afvoer via verdamping. In de wortelzone verdwijnt water door opname in het gewas, waarbij de dikte van de wortelzone en de wateropname toeneemt met de ontwikkeling van het gewas. Voor de wateropname door het gewas wordt meestal een relatie met de diepte in het bodemprofiel aangenomen (fig. 1). Bovendien is de wateropname afhankelijk van de vochtspanning en dus van het vochtgehalte in de bodem (fig. 2). Onder zeer natte omstandigheden daalt de wateropname tot nul vanwege onvoldoende aëratie en onder droge omstandigheden daalt de

wateropname door de sterke binding van water aan de grond. Bij het verwelkingspunt is de opname tot nul gereduceerd (pF 4.2).



Figuur 1 Twee voorbeelden van schematisatie van de wateropname in de wortelzone als functie van de diepte (Feddes et al., 1988)



Figuur 2 Schematisatie van de wateropname door het gewas als functie van de vochtspanning in de wortelzone (Feddes et al., 1988)

In zwellende en krimpende gronden kan aanzienlijke deformatie van de vaste matrix optreden bij bevochtiging of uitdroging van de grond. Het optreden van scheuren kan hier leiden tot "kortsluiting" tussen het maaiveld en het grondwater, waardoor toevoer van water en stoffen op het maaiveld leidt tot zeer snelle uitspoeling (Bronswijk, 1988). Dit verschijnsel kan ook optreden in waterafstotende gronden waar infiltratie van water via enkele preferente banen plaatsvindt, terwijl een groot deel van de bodemmatrix droog blijft. Ook in bevroren grond kan een zeer afwijkende stroming van water optreden. In dergelijke gevallen zullen de continuïteitsvergelijking en de fluxvergelijking aangepast moeten worden om het water- en stoffentransport goed te kunnen beschrijven.

2.2.3. Verzadigde zone

Onder verzadigde omstandigheden is $\delta\theta/\delta t = 0$, tenzij de modelberekeningen betrekking hebben op een zogenaamde open aquifer, d.w.z. dat de berging van water bij stijging van het freatisch grondwaterpeil wordt meegenomen. In dat geval kan het linkerlid van vergelijking (7) worden geschreven als:

$$\delta\theta/\delta t = \mu \delta h/\delta t \quad (11)$$

waarin: μ = freatisch bergingscoëfficiënt (cm^{-1})

Heeft het model betrekking op een zogenaamde semi-confined of confined aquifer, d.i. een watervoerend pakket dat aan boven- en onderzijde wordt afgesloten door een slechtdoorlatende of ondoorlatende laag, dan is de berging van water nihil, tenzij de bodemmatrix elastisch is en onder invloed van drukverschillen kan uitzetten of krimpen. In dat geval heeft de bergingscoëfficiënt uit vergelijking (11) een eindige, maar kleine waarde en wordt dan de elasticiteitscoëfficiënt genoemd.

De sinkterm S kan in de verzadigde zone betrekking hebben op toevoer of afvoer van water via putten.

2.3 Oplossingen

De continuïteitsvergelijking voor het watertransport kan worden opgelost als de initiële condities met betrekking tot de toestandsvariabelen en de randvoorwaarden bekend zijn. De randvoorwaarden beschrijven de uitwisseling van water met de omgeving buiten het beschouwde systeem en kunnen betrekking hebben op een voorgeschreven stijghoogte ter plaatse van de rand, een voorgeschreven flux over de rand, of variabele flux over een semipermeabele rand, bijv. een afdekkend pakket waardoor wegzijging of kwel optreedt (stijghoogte in het buitensysteem constant).

Voor sterk geschematiseerde situaties kunnen soms analytische oplossingen worden afgeleid. Voor verschillende praktijkgevallen kunnen dergelijke oplossingen zeer nuttig zijn om een eerste schatting te geven van effecten. Analytische formules zijn veelal eenvoudig hanteerbaar en hebben het voordeel dat ze doorzichtig zijn. Bekend zijn in dit verband de vele analytische oplossingen voor grondwaterstroming en drainage van landbouwgronden (Hooghoudt, Ernst). Voor meer gedetailleerde procesbeschrijvingen kunnen doorgaans geen analytische oplossingen worden afgeleid.

Onregelmatige begrenzingen van het gebied, heterogeniteit en ruimtelijke variabiliteit van transport- en bergingscoëfficiënten en variabele invoer en onttrekking van water in ruimte en tijd kunnen alleen goed worden beschreven door over te gaan op numerieke oplossingsmethoden en het gebruik van de computer. De partiële differentiaalvergelijkingen worden daarbij benaderd door een set van differentievergelijkingen voor discrete punten in ruimte en tijd (Vb.: eindige differentie methode en eindige elementen methode). Een voorbeeld van een eindige elementen methode voor twee-dimensionale grondwaterstroming is bijvoorbeeld het model FEMSAT (Van Bakel, 1978) en het model SIMGRO (Querner en Van Bakel, 1989). Naar gelang het aantal deelsystemen, de koppeling tussen systemen, het aantal dimensies, het al dan niet stationair zijn, kunnen vele verschillende numerieke modellen ontstaan. Volp en Lambrechts (1988) hebben een overzicht gepresenteerd van in Nederland beschikbare hydrologische modellen.

In grote lijnen bepalen de vereenvoudigingen en schematisaties (het conceptuele model) of een bepaald hydrologisch model geschikt is voor de oplossing van een gegeven probleem.

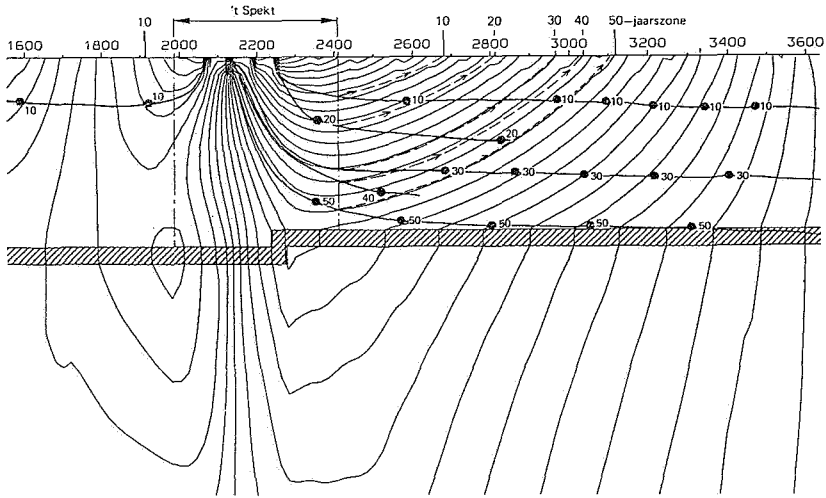
De belangrijkste vraag daarbij is of de toegepaste vereenvoudiging van de werkelijkheid acceptabel is gezien de doelstelling van het onderzoek. Uiteraard moet het model worden gevalideerd, dat wil zeggen dat nagaan moet worden of de mathematische beschrijvingen de relevante processen voldoende beschrijven en de fouten veroorzaakt door de numerieke benadering voldoende klein zijn.

3 KOPPELING MET TRANSPORT VAN OPGELOSTE STOFFEN

3.1 Algemeen

Hydrologische modellen zijn vaak niet direct te koppelen aan modellen voor het transport van opgeloste stoffen. Vanouds leveren hydrologische modellen output in de vorm van stijghoogten, grondwaterstanden, afvoeren naar drains, sloten of watervoerende pakketten, en vochtgehalten in de onverzadigde zone. Voor modellering van het transport van opgeloste stoffen is echter de stroomsnelheid van het water in het bodemsysteem het belangrijkste gegeven. De opgeloste stof verplaatst zich namelijk langs stroomlijnen in het bodem- en grondwatersysteem. Een stroomlijn is in feite de opeenvolging van punten waar een vloeistofdeeltje zich bevindt bij voortschrijding in de tijd. Anders gedefinieerd is de stroomlijn de curve waarvoor geldt dat in elk punt van de curve de snelheidsvector raaklijn is aan de curve.

Voor de meeste hydrologische modellen vergt dit de nodige aanpassing, althans wat de output betreft. Zo kan het model zodanig worden aangepast dat als output de stroomsnelheid per knooppunt wordt berekend. Ook een aanpassing voor de berekening van stroomlijnen en verblijftijden is in principe mogelijk. Een voorbeeld van een dergelijke berekening met het model STRELIN (Groenendijk, 1988) is gegeven in figuur 3.



Figuur 3 Stroomlijnenpatroon in het grondwater berekend met het model STRELIN (naar Adriaanse en Kemmers, 1988)

De continuïteitsvergelijking (1) voor het stoffentransport kan in combinatie met de continuïteitsvergelijking voor het watertransport (4) gelijktijdig worden opgelost. In de praktijk zal het echter veelal voordelen hebben, vooral als de waterstroming als stationair mag worden beschouwd, om eerst met een hydrologisch model de stroomsnelheden in het bodemsysteem te berekenen en vervolgens deze stroomsnelheden in te voeren in een model voor het stoffentransport. Op deze wijze wordt een grotere mate van flexibiliteit verkregen en kunnen het hydrologisch model of het stoftransportmodel eventueel worden uitgewisseld voor andere modellen.

In de volgende paragrafen zullen enkele voorbeelden worden gegeven van de koppeling van water- en stoffentransport. In de vakliteratuur worden vele oplossingsmethoden beschreven, zodat het nastreven van volledigheid hier weinig zinvol is.

3.2 Transport van één opgeloste stof (monocomponent modellen)

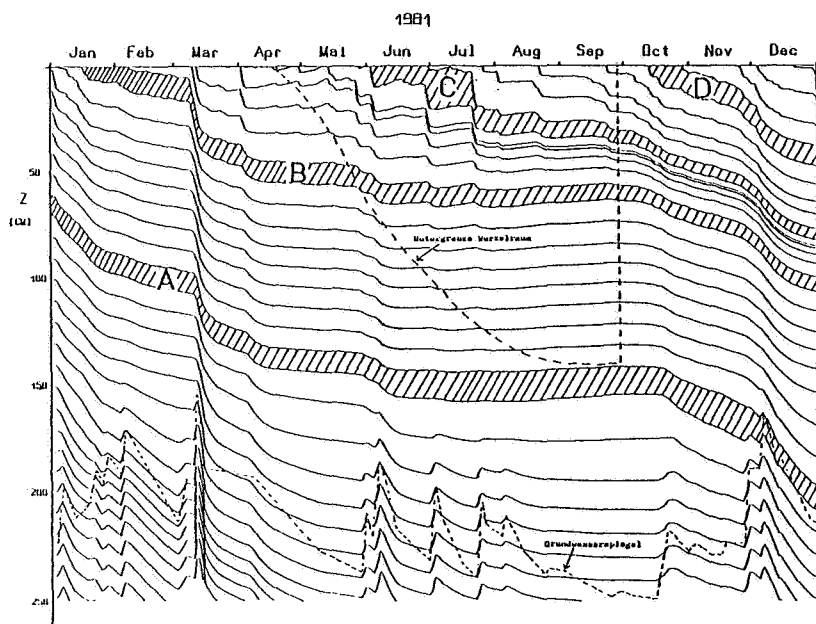
Uitgaande van vergelijking (5), die het watertransport in de bodem beschrijft (Wet van

Darcy) kan het transport van een conservatieve stof (d.w.z. interactieprocessen zijn niet van belang) worden beschreven als:

$$v_i = v/\theta \quad (12)$$

waarin: v_i = verplaatsingssnelheid van de opgeloste stof i ($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$)

Door integratie van de verplaatsingssnelheid over de tijd kan de afgelegde afstand worden berekend. Deze methode wordt in de grondwaterhydrologie veel gebruikt voor de berekening van stroombanen en verblijftijden. Duynisveld (1983) paste deze methode toe voor de berekening van de uitspoeling van nitraat in landbouwgronden. Een voorbeeld van de indringing van nitraat in de bodem als functie van de tijd is gegeven in figuur 4 (zogenaamde "Zeit-Tiefen-Kurven").



Figuur 4 Voorbeeld van "Zeit-Tiefen Kurven", aangevend hoe de indringing van nitraat verloopt als functie van de tijd (naar Duynisveld, 1983)

Vanzelfsprekend kunnen dergelijke berekeningen worden uitgevoerd met verschillende modellen voor de waterstroming. Een veel gebruikt model voor de niet-stationaire

onverzadigde waterstroming is het model SWATRE (Feddes et al., 1978). Dit model is reeds op ruime schaal toegepast en gevalideerd.

Deze methode voor berekening van stroombanen, verblijftijden en indringingsdiepten houdt geen rekening met diffusie en dispersie. In feite wordt gerekend met scherpe concentratiefronten. De geleidelijke vervaging van concentratieverschillen als gevolg van de dispersie in een poreus medium als de bodem wordt hier dus verwaarloosd.

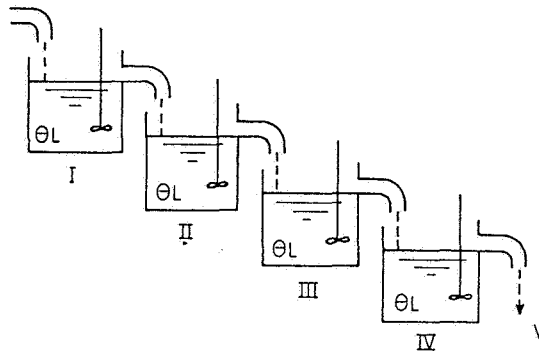
Voor globale schattingen wordt vaak een zeer sterke schematisatie doorgevoerd, waarbij de gemiddelde verplaatsing van een opgeloste stof in de bodem bijvoorbeeld wordt berekend op basis van het netto neerslagoverschot en een gemiddelde waarde van het vochtgehalte (bijvoorbeeld veldcapaciteit). Cassel et al. (1975) en Wierenga (1977) toonden aan dat zo'n sterke schematisatie vaak een heel redelijke schatting kan geven van het stoftransport in de bodem. Vanzelfsprekend kan een dergelijke schematisatie echter ook grote bezwaren hebben, namelijk als specifieke niet-stationaire effecten juist van groot belang zijn, bijvoorbeeld in geval van transport in gestructureerde (klei)gronden of in gronden die moeilijk bevochtigbaar zijn (Bouma en Westen, 1987).

Behalve de verplaatsing van opgeloste stoffen in de bodem is echter veelal ook de concentratie een belangrijke variabele. Diffusie en dispersie hebben een belangrijke invloed op de concentratie in het poriënwater. Als uitgegaan kan worden van een homogeen bodemprofiel en een constante verplaatsingssnelheid dan zijn een groot aantal analytische oplossingen van de convectie-dispersievergelijking voorhanden. Van Genuchten en Alves (1982) geven een overzicht van dergelijke oplossingen voor verschillende begin- en randvoorwaarden.

Als zowel diffusie en dispersie als ook niet-stationaire waterstroming in een niet homogene grond in beschouwing moeten worden genomen dan zijn numerieke oplossingsmethoden noodzakelijk. Een dergelijk model vereist uiteraard als invoer de vochtgehalten en waterfluxen als functie van tijd en diepte. Een hydrologisch model voor de waterstroming in de bodem zal deze gegevens moeten aanleveren. Eventueel kunnen de continuïteitsvergelijkingen voor het watertransport en het stoftransport ook gelijktijdig worden opgelost.

Voorbeelden van dergelijke modellen zijn Wurm (Van Genuchten, 1986) en SWASALT (Kabat en Van der Bolt, pers. meded.).

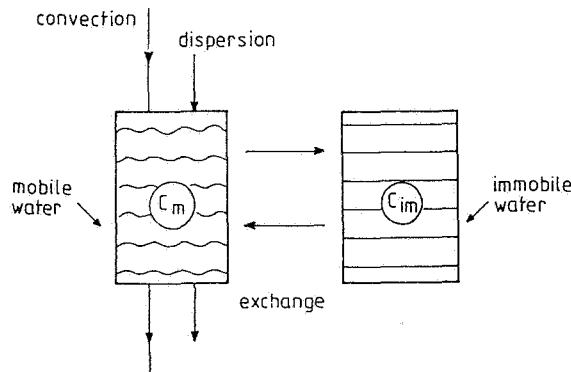
Semi-analytische oplossingen zijn afgeleid voor de beschrijving van het transport van opgeloste stoffen door een bodemprofiel, waarbij de waterflux stationair wordt verondersteld, maar waarbij de flux en overige bodemeigenschappen (zoals vochtgehalte, dispersiecoëfficiënt) met de diepte mogen variëren (Van Ommen, 1985a). Een dergelijke beschrijving berust op het schematiseren van het transport door een bodemprofiel als de stroming door een reeks reservoirs, waarin volledige menging plaatsvindt (zie fig. 5). In de literatuur staat deze methode bekend als die van de CSTR's (Continuously Stirred Tank Reactors), een methode die in de proceskunde vaak wordt toegepast bij het beschrijven van transport- en omzettingsprocessen.



Figuur 5 Het transport van opgeloste stoffen in de bodem geschematiseerd tot een "cascade" model, waarbij de bodemlagen worden voorgesteld als reservoirs (hier 4 lagen; L = dikte bodemlaag, θ = vochtgehalte)

Bij de hier besproken modellen wordt er van uitgegaan dat het totale volume poriënwater deelneemt aan de waterstroming. Er zijn echter vele situaties denkbaar waarbij dit niet het geval is. In een sterk gestructureerde grond zal relatief veel water door scheuren of macroporiën stromen, terwijl het poriënwater in de structurelementen nauwelijks aan de stroming deelneemt. In zo'n situatie is dan sprake van een "stagnante" en een "mobiele"

fase, waartussen uitwisseling kan plaatsvinden door middel van diffusie (zie fig. 6). Vaak wordt de uitwisseling tussen beide fasen beschreven als een eerste-orde proces, waarbij de flux recht evenredig is met het concentratieverschil tussen de twee fasen.



Figuur 6 Transport in een systeem met mobiele en stagnante fase.

Van Genuchten en Dalton (1986) geven een overzicht van analytische oplossingen voor dergelijke situaties, waarbij de waterstroming als stationair wordt verondersteld. Bovendien leiden zij theoretische relaties af tussen de uitwisselingsconstanten en geometrische factoren van zo'n stagnante fase. Meestal zal de waterstroming echter niet als stationaire stroming kunnen worden beschouwd. Voor transport van opgeloste stoffen zou in dat geval uitgegaan kunnen worden van een door Bronswijk (1988) ontwikkeld model voor waterstroming in gestructureerde kleigronden.

De hiervoor beschreven oplossingen voor het stoftransport in de bodem hadden alle betrekking op conservatieve stoffen, waarbij interactieprocessen in de bodem buiten beschouwing bleven. Deze oplossingen kunnen echter op eenvoudige wijze worden aangepast, zodat ook het effect van adsorptie- of afbraakreacties kan worden beschreven (zie bijvoorbeeld Hoeks, 1988). Voorwaarde is dan wel, dat de adsorptie eenvoudig kan worden beschreven als een lineair adsorptieproces. In dat geval wordt vergelijking (12) uitgebreid met een retardatiefactor, die de verhouding weergeeft tussen de effectieve stroomsnelheid van het water en de verplaatsingssnelheid van de opgeloste stof. Ook het effect van afbraakreacties kan op eenvoudige wijze worden beschreven, mits de afbraak als een eerste-orde proces mag worden beschouwd.

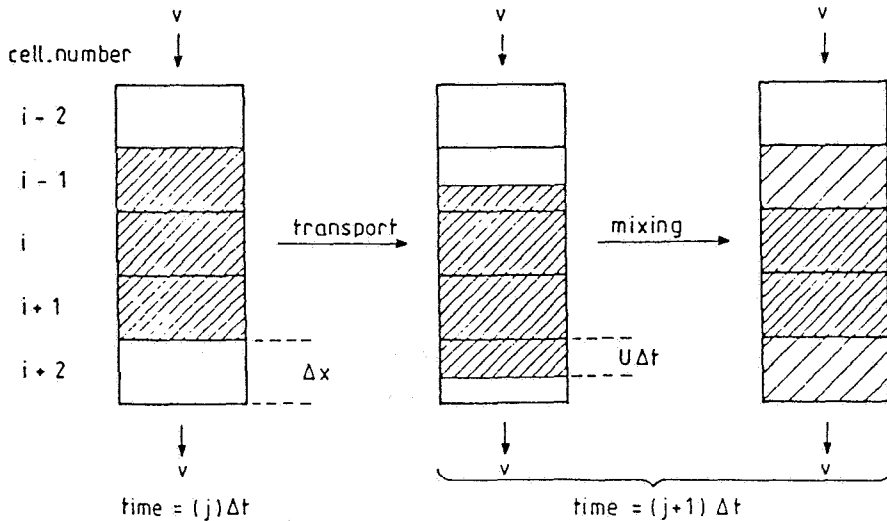
Als de adsorptie- en afbraakprocessen worden bepaald door ingewikkelde mechanismen, die niet eenvoudig zijn te beschrijven, dan moeten numerieke benaderingen worden toegepast.

3.3 Transport met interactie tussen meerdere opgeloste stoffen (multicomponent modellen)

In veel gevallen blijkt het gedrag van een opgeloste stof in de bodem afhankelijk te zijn van andere opgeloste stoffen in het bodemsysteem. Wellicht het meest bekende voorbeeld is de concurrentie tussen kationen bij adsorptie aan een (negatief geladen) adsorptiecomplex. Adsorptie van het ene kation leidt hier tot desorptie van een ander kation. Een ander voorbeeld betreft de precipitatie van fosfaat waarbij ionen als calcium, ijzer, aluminium en waterstof een belangrijke rol spelen. Voor de relevante opgeloste stoffen zullen dan de transportvergelijkingen (zie vergelijking 1) gelijktijdig moeten worden opgelost, rekening houdend met de interactie tussen de stoffen. Valocchi et al. (1981) geven een voorbeeld van zo'n berekening voor het transport van meerdere kationen in een grondkolom.

Een meer gebruikte en eenvoudiger methode om multicomponent transport te beschrijven is de "mixing-cell" benadering (Dutt et al., 1972; Van Ommen, 1985b; Appelo, 1990). Deze berust op een eindige differentiebenadering van de transportvergelijking waarbij het transport (verplaatsing) van de bodemoplossing losgekoppeld is van de chemische interactieprocessen. In figuur 7 is dit schematisch weergegeven.

Een dergelijke loskoppeling van transportprocessen en interactieprocessen heeft als voordeel dat de hydrologische, bodemchemische en biologische modellen op relatief eenvoudige wijze kunnen worden gekoppeld, losgekoppeld of vervangen door andere. Voorbeelden van modellen voor de beschrijving van chemische processen zijn CHARON (De Rooy 1982), PHREEQE (Parkhurst et al., 1983) en EPIDIM (Groenendijk, 1987).



Figuur 7 Schematische voorstelling van de "mixing-cell" benadering.

4 OPSCHALING EN SCHATTING VAN PARAMETERS

De belangrijkste parameters in hydrologische modellen betreffen de coëfficiënten voor transport en berging, te weten doorlatendheid, transmissiviteit van watervoerende pakketten, en berging in de onverzadigde zone en eventueel in de verzadigde zone.

De verzadigde doorlatendheid kan worden afgeleid uit de eerder genoemde Wet van Darcy (vergelijking 5). In het laboratorium kan de doorlatendheid worden gemeten door de flux van water door een waterkolom te meten als functie van de aangelegde stijghoogte-gradiënt. In feite is de aldus bepaalde doorlatendheid afhankelijk van dichtheid en viscositeit, wat

blijkt uit de volgende formule:

$$k_s = k_i \rho g / \eta \quad (13)$$

waarin:

ρ = dichtheid

η = viscositeit

k_s = verzadigde doorlatendheid

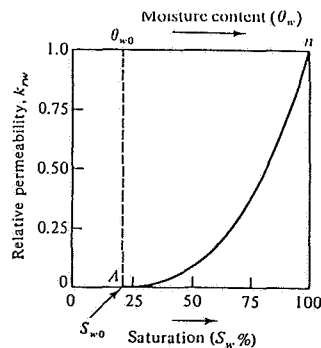
k_i = intrinsieke doorlatendheid

g = versnelling van de zwaartekracht

De doorlatendheid k kan eventueel ook worden afgeleid uit eigenschappen van de vaste matrix, bijvoorbeeld de diameter van de korrels, de fractie zand, de pakingsfactor, de gemiddelde diameter van fracties, het specifiek oppervlak, het poriënvolume, etc.

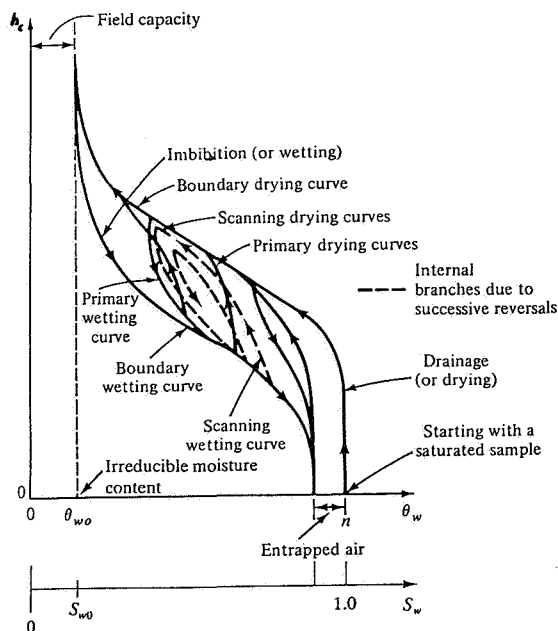
De Wet van Darcy is overigens niet altijd geldig. In kleigronden kunnen afwijkingen optreden bij lage gradiënten vanwege de zeer sterke binding van water aan de kleideeltjes. Ook bij hoge gradiënten kunnen afwijkingen optreden als gevolg van turbulente stroming.

Onder niet-verzadigde omstandigheden is de doorlatendheid (k) afhankelijk van het vochtgehalte (θ) in de bodem. Een voorbeeld van deze relatie is gegeven in figuur 8. Deze relatie is in grote mate bepalend voor het transport van water in de onverzadigde zone.



Figuur 8 Relatie tussen de relatieve doorlatendheid ($k(p)/k_s$) en vochtgehalte (θ) respectievelijk verzadigingsgraad (S)

Voor het oplossen van de continuïteitsvergelijking is het noodzakelijk het verband tussen vochtgehalte (θ) en drukhoogte (p) te kennen. In de onverzadigde zone is deze drukhoogte negatief en wordt dan vaak aangeduid als de vochtspanning ($= -p$). De relatie tussen vochtgehalte en vochtspanning wordt weergegeven met de pF-curve. Deze relatie blijkt echter in veel gevallen niet eenduidig te zijn voor een bepaalde grond vanwege hysteresis-verschijnselen. Bij bevochtiging van droge grond is het vochtgehalte bij een bepaalde zuigspanning lager dan bij uitdroging van een natte grond. Dit is in figuur 9 tot uitdrukking gebracht met een waaier van curves. In bepaalde trajecten van de pF-curve kan dit hysteresis-verschijnsel grote invloed hebben. Een correcte mathematische beschrijving is vrijwel niet mogelijk of zeer ingewikkeld.



Figuur 9 De relatie tussen vochtspanning en vochtgehalte en het effect van hysteresis

Voor de modelberekeningen zullen parameters geschat moeten worden voor de in het model onderscheiden homogene lagen en/of homogene gebieden. De hier voorkomende grondsoorten worden gekarakteriseerd aan de hand van granulaire samenstelling, organische stofgehalte, doorlatendheid, pF-curve, e.a. Daarbij wordt de eventueel voorkomende heterogeniteit binnen de lagen en/of gebieden uitgevlakt door het kiezen van gemiddelde

waarden. Naarmate de lagen dikker en de gebieden groter worden gekozen vindt meer uitvlakking plaats. In de zogenaamde "Staringreeks" (Wösten et al., 1987) zijn voor een groot aantal karakteristieke boven- en ondergronden de gemiddelde pF-curven en doorlatendheidskarakteristieken gegeven.

Bij het transport van opgeloste stoffen kan de fout als gevolg van de middeling van parameterwaarden weer worden gecorrigeerd door het invoeren van een dispersiecoëfficiënt. De grootte van deze dispersiecoëfficiënt is afhankelijk van de schaal waarover middeling van de parameters heeft plaatsgevonden. De dispersielengte (D/v) kan daardoor variëren van enkele centimeters in een homogene grondkolom tot tientallen meters bij regionale grondwaterstroming. In feite leidt de spreiding van de parameterwaarden tot een spreiding in stroomsnelheden en dus tot een spreiding in verblijftijd. De oplossing van de convectiedispersievergelijking is gebaseerd op een normaal verdeelde (Gaussische) spreiding van stroomsnelheden en verblijftijden (zie onder meer Van Ommen en Van der Molen, 1988).

In veel gevallen blijkt een normaal verdeelde verblijftijdspreiding echter onbevredigende resultaten te geven, met name in heterogene gronden waar preferente stroming door macroporiën en scheuren optreedt. Jury (1982) stelde daarom voor een zogenaamd Transfer Function Model (TFM) te gebruiken, gebaseerd op een log-normale verdeling van verblijftijden in de bodem. De verblijftijden kunnen daarbij variëren tussen nul en oneindig zodat ook kortsluitstroming (via scheuren) kan worden beschreven, waarmee een brede toepasbaarheid is gewaarborgd. Voor kleine waarden van de variatiecoëfficiënt blijkt er weinig verschil te bestaan tussen de oplossing met een log-normaal verdeelde verblijftijdspreiding en die met een normaal verdeelde verblijftijdspreiding (Simmons, 1981). De thans beschikbare bodemkundige gegevens kunnen echter nog niet eenduidig worden vertaald naar zo'n log-normale verblijftijdspreiding (Van Ommen et al., 1989a).

Een nadeel van deze TFM-methode is echter dat vele processen "gelumpd" worden in enkele parameters, zonder dat een dieper inzicht wordt verkregen in de fysica van de transportprocessen zelf. In feite gebeurt echter hetzelfde in de convectie-dispersievergelijking, waar diverse processen worden gelumpd in de dispersiecoëfficiënt.

In veel gevallen is onvoldoende informatie beschikbaar over de stochastische verdeling van parameterwaarden binnen de onderscheiden homogene lagen en/of deelgebieden. Dit maakt het ook moeilijk om de juiste gemiddelde waarden te vinden voor de parameters in het model. Kalibratie op veldschaal is nodig voor het vaststellen van de parameterwaarden. Bij toepassing van het model op andere gebieden is het echter niet vanzelfsprekend dat de daar voorkomende heterogeniteit vergelijkbaar is met die van het gebied waarvoor de kalibratie heeft plaatsgevonden. Dit betekent dat men zeer kritisch zal moeten zijn bij de toepassing van modellen voor andere situaties, vooral als de schaal van toepassing sterk afwijkt van de situatie waarvoor het model gekalibreerd is.

Van Ommen et al. (1989b) voerden een experiment op veldschaal uit, waarbij een inerte merkstof (bromide) werd toegediend op een gedraineerd bouwlandperceel door middel van een eenmalige gift ($11,5 \text{ g.m}^{-2}$). Hierna werden de concentraties in de bodem op vier verschillende tijdstippen bepaald en werd het drainagewater intensief (elke 0,5 mm afvoer) bemonsterd. Met behulp van de concentraties in de bodem werden de transportparameters (gemiddelde verplaatsingssnelheden en dispersiecoëfficiënten) berekend. Met deze parameters, de dikten van de onverzadigde en de verzadigde zone, en de daaruit resulterende verblijftijdspreiding kon de drainagewaterkwaliteit worden voorspeld en vergeleken met het gemeten verloop. De resultaten waren redelijk bevredigend, maar gaven de indruk dat in de onverzadigde zone versnelde uitspoeling was opgetreden, waarbij een deel van het poriënvolumen niet aan de stroming deelnam (preferente stroming).

Circa 1,5 jaar later zijn op hetzelfde perceel opnieuw experimenten met een merkstof uitgevoerd (iodide), waarbij de penetratiediepte van het iodidefront met een kleuringstechniek zichtbaar werd gemaakt (Van Ommen et al., 1989c). Bij deze experimenten kwam de gemiddelde penetratiediepte van het front overeen met de toegediende hoeveelheid (100 mm) en het gemiddelde vochtgehalte in de bodem (25%). De spreiding in de penetratiediepte was duidelijk minder groot dan bij het eerste experiment en kon goed gekwantificeerd worden met een dispersielengte van enkele centimeters.

Van Der Zee en Van Riemsdijk (1986) stelden vast, dat fosfaatuitspoeling op een landbouwperceel in sterke mate afhankelijk is van de ruimtelijke variatie in de toegediende

hoeveelheid en de variatie in het fosfaatbindend vermogen van de grond. Zij maakten voor de modelberekeningen gebruik van een log-normaal verdeelde verblijftijdspreiding. Uit dit onderzoek bleek dat de ruimtelijke variabiliteit in toevoer van stoffen (bijvoorbeeld de mestgift), bodemgebruik en bodemgesteldheid een groot effect heeft op de uitspoeling van nutriënten.

Een algemene receptuur voor de aanpak van problemen op regionale schaal is moeilijk te geven en is sterk afhankelijk van de doelstelling, de processen, de beschikbare gegevens en de creativiteit van de onderzoekers, die vanuit verschillende vakdisciplines de technische "input" moeten leveren.

5 CONCLUSIES

Bij de toepassing van hydrologische modellen en modellen voor het transport van opgeloste stoffen in de bodem dient grote aandacht besteed te worden aan de volgende aspecten:

- het conceptuele model: welke schematisaties en vereenvoudigingen liggen ten grondslag aan het model;
- de wiskundige formulering: welke relevante processen zijn opgenomen in het model en welke zijn verwaarloosd;
- parameterschatting: voor welke situatie is het model gekalibreerd en hoe kunnen de parameterwaarden geschat worden in relatie tot de schaal van toepassing;
- welke nauwkeurigheid is gewenst gezien de doelstelling van het onderzoek.

De belangrijkste parameters in hydrologische modellen betreffen de pF-curve en de doorlatendheidskarakteristiek. De spreiding van meetpunten rond een gemiddelde pF-curve voor een bepaald bodemtype kan vrij aanzienlijk zijn. Bovendien is veelal ook nog sprake van hysteresis-effecten die moeilijk te beschrijven zijn. Ook de doorlatendheid als functie van het vochtgehalte kan een aanzienlijke spreiding vertonen. Een belangrijke parameter in grondwatermodellen betreft de drainageweerstand. Met name de weerstand in slootbodems, belangrijk voor de interactie met het oppervlaktewater, is vaak slecht bekend.

Een algemeen probleem betreft het omgaan met de ruimtelijke variabiliteit van parameters. Voor het transport van opgeloste stoffen is met name de spreiding in stroomsnelheden en verblijftijden in het beschouwde systeem van belang. Het gebruiken van databestanden met geografische en bodemkundige informatie kan bij het bepalen van deze systeemkarakteristieken zeer waardevol zijn.

REFERENTIES

- ADRIAANSE, P.I. en R.H. KEMMERS; 1988. Bufferzones tegen nitraatinspoeling in beekdalen: Een methode om de ligging en breedte vast te stellen. Rapport ICW 27, Staringcentrum, Wageningen, 97 pp.
- APPELO, C.A.J.; 1990. Eenvoudige rekenmethoden voor uitwisselfronten bij kunstmatige infiltratie. *H₂O*, 23(6):164-166.
- BAKEL, P.J.T. VAN; 1978. A numerical model for non-stationairy saturated groundwater flow in a multi-layered system. Nota ICW 1077, Staringcentrum, Wageningen, 39 pp.
- BEELEN, P. VAN, en J. NOTENBOOM; 1990. De invloed van biologische processen op de bodemwaterkwaliteit. Bijdrage 8e CHO-Studiebijeenkomst, 8 mei 1990, IAC, Wageningen.
- BOUMA, J. and J.H.M. W6STEN; 1987. Obtaining data for models that predict properties of areas of land using soil surveys. In: Vulnerability of soil and groundwater to pollutants. CHO/TNO-RIVM Verslagen en mededelingen no. 38. Noordwijk. pp. 959-971.
- BRONSWIJK, J.J.B.; 1988. Modeling of water balance, cracking and subsidence of clay soils. *J. Hydrol.*, 97:199-212.
- CASSEL, D.K., M. Th. VAN GENUCHTEN, P.J. WIERENGA; 1975. Predicting anion movement in disturbed and undisturbed soils. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.* 39:1015-1019.
- DOELMAN, P.; 1990. De invloed van biologische processen op de bodem-water-kwaliteit. Bijdrage 8e CHO-Studiebijeenkomst, 8 mei 1990, IAC, Wageningen.
- DUTT, G.R., M.J. SCHAFFER and W.J. MOORE; 1972. Computer simulation model of bio-physicochemical processes in soils. Agricultural Experiment Station, Univ. of Arizona, Tucson, Ariz., Tech. Bull. 196.

- DUYNISVELD, W.H.M.; 1983. Entwicklung von Simulationsmodellen für den transport von gelösten Stoffen in wasserungesättigten Böden und Lokersedimenten. Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe. Hannover. Forschungsbericht 102 02 303. UBA-FB 82-162.
- FEDDES, R.A., P.J. KOWALIK and H. ZARADNY; 1978. Simulation of field water use and crop yield. PUDOC Wageningen, 189 pp.
- FEDDES, R.A., P. KABAT, P.J.T. VAN BAKEL, J.J.B. BRONSWIJK and J. HALBERTSMA; 1988. Modelling soil water dynamics in the unsaturated zone - State of the Art. J. Hydrol. 100: 69-111; tevens als Techn. Bull. n.s. 78, ICW, Wageningen.
- GROENENDIJK, P.; 1987. Onderzoek naar de effecten van wateraanvoer en peilveranderingen in agrarische gebieden op de waterkwaliteit in natuurgebieden. Deel 3: EPIDIM, een chemisch evenwichtsmodel met adsorptie, verwerking en neerslag van calciet. Nota ICW 1774, Staringcentrum, Wageningen.
- GROENENDIJK, P.; 1988. Onderzoek naar de effecten van wateraanvoer en peilveranderingen in agrarische gebieden op de waterkwaliteit in natuurgebieden. Deel 8: STRELIN, een computerprogramma voor de berekening van stroomlijnen, potentialen en verblijftijden. Nota 1810, ICW, Staringcentrum, Wageningen.
- GENUCHTEN, M.Th. VAN; 1986. WURM. A numerical model for water and solute movement in and below the root zone. Model description and user manual. U.S. Salinity Lab, USDA/ARS. Riverside California.
- GENUCHTEN, M.Th. VAN, F.DALTON; 1987. Models for simulating salt movement in aggregated field soils. Geoderma 38:165-183.
- GENUCHTEN, M.Th. VAN, W.J. ALVES; 1982. Analytical solutions of the one-dimensional convective-dispersive solute transport equation. USSL research report no. 1661.
- HOEKS, J.; 1988. Grondwaterkwaliteit in relatie tot grondwaterstroming. PHLO-cursus "Waterkwaliteit Landelijke Gebieden", Nota ICW 1880, Staringcentrum, Wageningen.
- JURY, W.A.; 1982. Simulation of solute transport using a transfer function model. Water Resources Research 18:363-368.
- OMMEN, H.C. VAN, W.H. VAN DER MOLEN; 1988. Waterquality; the influence of mixing and transport processes. Collegediktaat Landbouwniversiteit, Vakgroep Hydrologie, Bodemnatuurkunde en Hydraulica (v/h Vakgroep Cultuurtechniek).

- OMMEN, H.C. VAN, J.W. HOPMANS, S.E.A.T.M. VAN DER ZEE; 1989a. Prediction of solute breakthrough from scaled soil physical properties. *J. of Hydrology* 105(1989):433-451.
- OMMEN, H.C. VAN, M.Th. VAN GENUCHTEN, W.H. VAN DER MOLEN, J. HULSHOF en R. DIJKSMA; 1989b. Experimental and theoretical analysis of solute transport from a diffuse source of contamination. *J. of Hydrology* 105(1989):225-251.
- OMMEN, H.C. VAN, J.M.H. HENDRICKX, L.W. DEKKER, J. HULSHOF, M. VAN DEN HEUVEL; 1989c. Experimental assessment of preferential flowpaths in a field soil. *J. of Hydrology* 105(1989):253-262.
- OMMEN, H.C. VAN; 1985a. Calculating the quality of drainage water from non-homogeneous soil profiles with an extension to a coupled unsaturated-saturated groundwater quality model, including bypass flow. *Agric. Water Manage.*, 10(1985): 292-304.
- OMMEN, H.C. VAN, 1985b. The "mixing-cell" concept applied to transport of non-reactive and reactive components in soils and groundwater. *J. of Hydrology* 78(1985):201-213.
- PARKHURST, D.L., D.G. THORSTENSON and L.N. PLUMMER; 1983. PHREEQE. A geochemical simulation program. USGS Water-Resources Investigations Report 83-4236.
- QUERNER, E.P. and P.J.T. VAN BAKEL; 1989. Description of the regional groundwater flow model SIMGRO. Report 7, Staringcentrum, Wageningen.
- RIEMSDIJK, W.H. VAN; 1990. Bodemchemische aspecten van bodem en grondwaterkwaliteit. Bijdrage 8e CHO-Studiebijeenkomst, 8 mei 1990, IAC, Wageningen.
- ROOIJ, N.M. DE; 1982. CHARON: A manual. Report R1310-11, WL- Delft.
- ROOIJ, N.M. DE, 1990. De invloed van geochemische processen op de bodemwaterkwaliteit. Bijdrage 8e CHO-Studiebijeenkomst, 8 mei 1990, IAC, Wageningen.
- SIMMONS, C.S., 1981. A stochastic-convective transport representation of dispersion one dimensional porous media systems. *Water Resources Research* 18(4): 1193-1214.
- VALOCCHI, A.J., R.L. STREET and P.V. ROBERTS, 1981. Transport of ion exchanging solutes in groundwater: chromatographic theory and field simulation. *Water Resources Research* 17(5):1517-1527.

- VOLP, C. en A.C.W. LAMBRECHTS; 1988. The SAMWAT database for computer models in water management. Report 2, SAMWAT, Den Haag, 55 pp.
- WIERENGA, P.J.; 1977. Solute distribution profiles computed with steady-state and transient water movement models. Soil Sci. Soc. Am. J. 41:1050-1055.
- WöSTEN, J.H.M., BANNINK, M.H. en J. BEUVING, 1987. Waterretentie- en doorlatendheidskarakteristieken van boven- en ondergronden in Nederland: de Staringreeks. Rapport ICW 18, Wageningen.
- ZEE, S.E.A.T.M. VAN DER, W.H. VAN RIEMSDIJK; 1986. Transport of phosphate in a heterogeneous field. Transport in Porous Media, 1(1986):339-359.

W.H. van Riemsdijk

SAMENVATTING

De kwaliteit van bodem en grondwater is gerelateerd aan effecten op biota of op de kwaliteit van drinkwater en oppervlaktewater. Beoordeling van kwaliteit wordt vertaald naar normen voor gehalten van stoffen in de bodem of het grondwater. De relatie tussen het gehalte van een stof in de vaste fase en de concentratie in de bodemoplossing of het grondwater is mede bepalend voor optredende effecten en voor de mobiliteit van stoffen. Het gedrag van reactieve stoffen in de bodem wordt enerzijds bepaald door de samenstelling van de vaste fase van de bodem, onder andere ten aanzien van aard en voorkomen van verschillende reactieve oppervlakken en anderzijds bepaald door milieufactoren zoals pH, zoutgehalte en redoxcondities. De interactie van een stof met de bodem vindt veelal plaats op moleculaire schaal tengevolge van de vorming van een chemische binding met een reactieve oppervlaktegroep. De definiëring van deze interactie met behulp van modellen wordt bemoeilijkt door de heterogeniteit van de reactieve oppervlakken. Heterogeniteit beïnvloedt direct het verband tussen de hoeveelheid geadsorbeerd en de concentratie in oplossing. Het is dus niet juist om een homogeen adsorptiemodel toe te passen met gemiddelde parameters. Momenteel worden in het algemeen empirische of semi-empirische adsorptiemodellen gebruikt. Vooral het geldigheidsgebied van empirische modellen kan zeer gering zijn. Zowel op het gebied van het gedrag van niet geïoniseerde apolaire organische chemicaliën in de bodem als op het gebied van adsorptie van ionen aan metaal(hydr)oxiden worden momenteel

vorderingen gemaakt om het gedrag te voorspellen op basis van de structuur. Ten aanzien van koppeling van chemische modellering en transportmodellering is het nodig te weten welke species mobiel zijn en welke niet. Een grote complicatie hierbij is het transport van stoffen tezamen met colloïden of macromoleculen.

1 INLEIDING

Alvorens op de bodemchemische aspecten van het onderwerp in te gaan is het nodig het terrein van bodem- en grondwater nader aan te duiden en af te bakenen. De kwaliteit ten aanzien van de bodem, het bodemwater, de ondergrond en het grondwater is sterk gerelateerd aan effecten. De kwaliteit is hoog wanneer de samenstelling dusdanig is dat er geen ongewenste effecten optreden en dat aan de gewenste effecten optimaal tegemoet kan worden gekomen. De bodem heeft enerzijds effect op biota, zoals de erop groeiende planten en het bodemleven en anderzijds op de kwaliteit van het grondwater dat een bron kan zijn voor drinkwater of oppervlaktewater.

Wat betreft het effect op biota kan gedacht worden aan de samenstelling en het functioneren van het bodemleven, maar ook aan de groei van een gewas en de kwaliteit (samenstelling) van het geoogste produkt. Het effect dat een stof in de bodem heeft op biota hangt af van de biologische beschikbaarheid van deze stof. Het begrip biologische beschikbaarheid geeft aan dat veelal slechts een deel van de totale hoeveelheid van een stof in staat is om een effect op organismen uit te oefenen. Om de relatie tussen het gehalte van een stof en haar biologische beschikbaarheid te kunnen interpreteren en kwantificeren is het veelal noodzakelijk om het bodemchemisch gedrag van die stof in de bodem goed te kennen. Deze kennis kan dan leiden tot normen op grond waarvan de bodem en grondwaterkwaliteit in de praktijk beoordeeld kan worden. Beoordeling van de bodem en grondwaterkwaliteit wordt in praktische zin vertaald naar normen voor gehalten van stoffen in de bodem. Een norm voor een gehalte in een geoogst produkt kan dan in principe vertaald worden naar een norm voor het gehalte in de bodem. Door een gebrek aan kennis is een dergelijke vertaling momenteel zelden goed mogelijk. In ieder geval kan wel gesteld worden dat een bodem van goede kwaliteit ook kwaliteitsprodukten moet voortbrengen.

De kwaliteit van de bodem kan echter ook beoordeeld worden op basis van het effect op de kwaliteit van het grondwater. De kwaliteit van de ondergrond en het grondwater kan in negatieve zin beïnvloed worden door voeding met bodemwater van inferieure kwaliteit. Ook hier geldt dat een norm voor grondwater of drinkwater in principe vertaald kan worden naar een norm voor bodemkwaliteit. De kwaliteit van de bovengrond is momenteel operationeel gedefinieerd op basis van het totaalgehalte van een stof in de bodem, d.w.z. de hoeveelheid per massa eenheid grond, terwijl de kwaliteit voor de ondergrond operationeel gedefinieerd is op basis van het gehalte van een stof in het grondwater, d.w.z. de hoeveelheid per volume-eenheid grondwater. Voor reactieve stoffen is er een relatie tussen het gehalte in de vaste fase en de vloeistoffase.

Voor een recente brede toelichting op het onderwerp bodemkwaliteit wordt verwezen naar De Haan et al. (1989). In dit rapport wordt de problematiek van de bodemkwaliteit enerzijds belicht vanuit de vakdisciplines bodemfysica, bodemchemie en bodembioïogie en anderzijds vanuit de functies van de bodem: filterfunctie, gewasproductiefunctie en de ecosysteemfunctie.

In het vervolg zal het accent liggen op de factoren welke de relatie tussen het gehalte van een stof in de vaste fase en de concentratie in de oplossing (bodemwater, grondwater) bepalen. Deze relatie is van groot belang voor de interpretatie van de optredende effecten, en dus bij de beoordeling van de kwaliteit. De relatie is ook sterk bepalend voor de mobiliteit van een stof in het bodem/grondwatersysteem.

2 CONCEPTUELE BENADERINGEN TEN AANZIEN VAN HET CHEMISCH STOFGEDRAG IN BODEMSYSTEMEN

2.1 Empirische benadering

De combinatie van het grote aantal stoffen dat een rol kan spelen bij de beïnvloeding van de bodem-water-kwaliteit met de grote variatie in de samenstelling van de bodemmatrix en een grote variatie in milieufactoren zoals pH, zoutgehalte en concentratie van andere stoffen in

het water, maakt dat een volledig empirische benadering van het stofgedrag in een bodemsysteem alleen kan leiden tot uitspraken die een zeer beperkt geldigheidsgebied hebben. In paragraaf drie zal nader worden ingegaan op de heterogeniteitsproblematiek. Een voorbeeld van een eenvoudige empirische benadering is die in het geval dat er een rechtevenredigheid wordt vastgesteld tussen de geadsorbeerde hoeveelheid van een stof en de concentratie in oplossing. Dit leidt tot een lineaire adsorptie isotherm die de relatie weergeeft tussen concentratie in oplossing en het gehalte in de vaste fase:

$$Q_i = K_i C_i \quad (1)$$

waarin Q_i de hoeveelheid geabsorbeerd is van een stof i , c_i de concentratie in oplossing en K_i een evenredigheidsconstante. De helling van de lineaire isotherm (K_i) kan voor sommige stoffen sterk afhangen van de milieucondities. Is de meting gedaan onder afwijkende condities van die in het veld dan leidt het gebruik van het gevonden verband tot verkeerde voorspellingen. Wanneer de meting onder dezelfde milieucondities met dezelfde stof met een andere grond wordt gedaan dan zal in het algemeen een geheel andere waarde voor K_i worden gevonden.

Andere eenvoudige empirische formules voor de beschrijving van de adsorptie zoals de Langmuir of de Freundlich vergelijking hebben ook als bezwaar dat het effect van milieufactoren en bodemfactoren op de adsorptie niet expliciet tot uiting komt in de formulering. De "constanten" van dergelijke formules hebben derhalve vaak een zeer beperkte geldigheid. Dit heeft tot gevolg dat een meting die verricht is ten aanzien van het gedrag van een stof onder bepaalde milieucondities met een bepaald grondmonster niet eenvoudig vertaald kan worden naar het gedrag dat dezelfde stof zou vertonen met hetzelfde grondmonster onder andere milieucondities, laat staan dat het gedrag vertaald kan worden naar een grondmonster van andere herkomst. Deze beperkte geldigheid van de empirische aanpak maakt deze benadering zeker voor het ontwikkelen van meer algemeen geldende concepten ten aanzien van bodem- en grondwaterkwaliteit weinig geschikt.

2.2 Semi-empirische benadering

Wanneer het gedrag van een stof wordt gemeten onder een reeks van goed gedefinieerde milieumstandigheden voor een reeks verschillende gronden met uiteenlopende samenstelling kan geprobeerd worden om het effect van de milieumstandigheden (pH, zoutgehalte, concentratie andere stoffen etc.) en van de variatie in bodemeigenschappen op het stofgedrag te beschrijven met behulp van een relatief eenvoudige semi-empirische relatie. De keuze van te toetsen relaties is idealiter mede gebaseerd op meer algemene kennis die op dat moment beschikbaar is ten aanzien van het gedrag van de bestudeerde stof in bodemsystemen. Op basis van uitvoerig onderzoek (Chardon, 1984) en na enige vereenvoudiging (De Haan et al., 1987) is de volgende semi-empirische formule voor cadmium adsorptie aan aerobe grond afgeleid:

$$Q_{cd} = K_o f_{org} (H^+)^a (Cd^{2+})^b \quad (2)$$

waarin Q_{cd} het cadmiumgehalte van de grond is, K_o , a en b empirische constanten, f_{org} het organisch stofgehalte van de bodem, (H^+) de H^+ activiteit en (Cd^{2+}) de Cd^{2+} activiteit in oplossing. In dit vereenvoudigde verband is de bodemfactor het organische stofgehalte en de milieufactor de H^+ activiteit (pH). Andere bodemmatrix factoren en milieufactoren kunnen zeker het interactiegedrag beïnvloeden maar worden in het hier weergegeven semi-empirisch verband verwaarloosd. Op basis van deze formule kan de variatie in de cadmiumconcentratie in oplossing geschat worden die veroorzaakt wordt door verschillen in pH en organisch stofgehalte bij een gegeven cadmiumgehalte van de grond. Formule (2) kan derhalve gebruikt worden als basis voor een risico-evaluatie van cadmiumuitspoeling uit grond (Van der Zee en Van Riemsdijk, 1987; De Haan et al., 1987) en kan ook van nut zijn voor het ontwikkelen van relaties tussen cadmiumgehalte in de grond en de opname van cadmium door planten (Boekhold en Van der Zee, 1990).

2.3 Chemische evenwichtbenadering

Vaak is een stof betrokken bij een groot aantal verschillende chemische reacties in de bodem en bij evenwicht is deze stof (of element) verdeeld over zeer veel verschillende vormen

(species). Aluminium kan bijvoorbeeld voorkomen in oplossingen als Al^{3+} , $AlOH^{2+}$, $AlOH^+$, $Al(OH)_2^+$, $Al(OH)_3$, $Al(OH)_4^-$, AlF_6^{3-} , AlF_5^{2-} , AlF_4^- , AlF_3 , aluminiumcitraat complexen, en complexen tussen aluminium en opgeloste humus of fulvoren. Aluminium kan echter ook geadsorbeerd voorkomen aan het oppervlak van metaal(hydr)oxiden, klei en aan niet opgeloste organische stof en het kan ingebouwd zijn in mineralen zoals phyllosilicaten en $Al(OH)_3(s)$. In principe kan berekend worden hoe bij evenwicht de verdeling is van aluminium over al zijn verschillende verschijningsvormen. Voorwaarde is dat er voldoende kennis is over de aard van de verschillende species die kunnen voorkomen en over de relaties die hun stabiliteit beschrijven. Voor zuivere minerale fasen en voor relatief eenvoudige moleculen in oplossing is de vereiste informatie in redelijke mate voorhanden (Lindsay, 1979). Deze informatie kan worden gebruikt in combinatie met chemische evenwicht computerprogramma's om de verdeling uit te rekenen van een stof over de verschillende verschijningsvormen. Hiervoor is het vaak nodig dat de totale hoeveelheden van de verschillende elementen bekend zijn.

Wat betreft adsorptiereacties aan reactieve oppervlakken in de bodem ontbreekt momenteel echter de fundamentele kennis om met goed gedefinieerde evenwichts- constanten de verdeling over oppervlak en oplossing te berekenen. Een bijkomend probleem is dat het in de bodem gaat om een mengsel van verschillende reactieve oppervlakken. Belangrijke reactieve oppervlakken in de bodem zijn de metaal(hydr)oxiden van voornamelijk ijzer, aluminium en mangaan, de phyllosilicaten zoals illiet en montmorilloniet en de dode organische stof in de bodem (humus en fulvoren), terwijl in kalkhoudende gronden ook kalk een rol van betekenis kan spelen. Fysisch-chemische karakterisering van de individuele oppervlakken en hun reactieve groepen in een complex systeem als een bodem is momenteel een vrijwel onontgonnen terrein. Een andere vraag is in hoeverre het totale adsorptiecomplex beschouwd mag worden als een optelsom van onafhankelijke deelreacties.

In de huidige praktijk worden de chemische evenwichtsmodellen uitgebreid met empirische of semi-empirische adsorptie of omwisselvergelijkingen. De beperkingen van deze benaderingen zijn deels aangegeven in paragraaf 2.1 en 2.2. Een andere beperking van chemische evenwichtsbenadering is de veronderstelling van chemisch evenwicht. Wanneer deze veronderstelling niet gerechtvaardigd is, dient de modelbeschrijving te worden

uitgebreid met snelheidsvergelijkingen. De theorie over reactiekinetiek van veel bodemprocessen is momenteel ook niet erg ver ontwikkeld. Dat wil zeggen dat veelal empirische reactiesnelheidsvergelijkingen moeten worden gebruikt. Ook bij deze empirische formuleringen doet zich de vraag voor wat het geldigheidsgebied is van een bepaalde benadering.

2.4 QSAR-benadering

De term QSAR is het acroniem van Quantitative Structure Activity Relationship. Het begrip wordt vooral gehanteerd op het gebied van de organische chemicaliën. Omdat het hier gaat om een zeer groot aantal verschillende verbindingen waarvoor inzicht vereist is in het gedrag onder uiteenlopende omstandigheden in het milieu, is er een grote behoefte om het gedrag bij benadering te kunnen schatten op basis van informatie betreffende de chemische structuur van een organische verbinding.

Het gedrag van apolaire niet geïoniseerde organische chemicaliën in de bodem wordt voor een belangrijk deel bepaald door de fysisch-chemische eigenschappen van deze verbindingen zoals de wateroplosbaarheid, de dichtheid en de vluchtigheid. Een andere belangrijke grootte is de verdelingscoëfficiënt voor de concentratie in water en octanol de K_{ow} . De vluchtigheid van een organische verbinding kan van groot belang zijn voor de verspreiding in de bovengrond via transport door de gasfase (Jury et al., 1983; 1984a; 1984b; 1984c).

De adsorptie van apolaire niet geïoniseerde organische verbindingen kan meestal beschreven worden met een lineaire isotherm met een helling die een functie is van het organische stofgehalte van de bodem. De adsorptie kan dan beschreven worden als:

$$Q_i = K_{om,i} \cdot f_{om} \cdot c_i \quad (3)$$

waarin Q_i de hoeveelheid geadsorbeerd is, c_i de concentratie in oplossing, f_{om} het organische stofgehalte van de bodem en $K_{om,i}$ is de verdelingscoëfficiënt organische stof-oplossing voor stof i . De waarde van $K_{om,i}$ varieert enorm voor de verschillende organische verbindingen. De klassieke aanpak is om K_{om} van een stof te relateren aan de K_{ow} (Karickhoff et al., 1979; Chiou et al., 1983). Is zo'n empirische relatie eenmaal

bepaald dan kan de K_{om} waarde van een stof worden geschat op basis van zijn K_{ow} waarde. De QSAR aanpak probeert de K_{om} te voorspellen op basis van de structuur (Sabljić, 1987). De K_{om} van niet geïoniseerde apolaire verbindingen is vermoedelijk ook sterk gerelateerd aan de wateroplosbaarheid of de hydrofobiciteit. Honderdvijfveertig verbindingen zijn gebruikt om een semi-empirische relatie tussen structuur en oplosbaarheid te ontwikkelen (Niermalakhada en Speece, 1989). De relatie is vervolgens getoetst op driehonderd andere verbindingen en gaf goede resultaten.

Wanneer de organische verbinding (variabel) geladen is zal er ook een elektrostatische interactie ontstaan tussen de negatief geladen organische stof van de bodem en het (negatief) geladen organische molecuul. Deze interactie is een functie van pH en zoutgehalte. De mate van inzicht in de adsorptie van (variabel) geladen organische verontreinigingen in de bodem is nog uitermate beperkt.

De reactiviteit van metaal(hydr)oxiden ten opzichte van kat- en anionadsorptie is duidelijk een functie van de structuur van het metaal(hydr)oxide wat betreft de aanwezigheid van verschillende typen kristalvlakken en reactieve groepen. Recent is er een theoretisch model ontwikkeld dat de reactiviteit van de verschillende typen reactieve groepen ten opzichte van de adsorptie van protonen voor verschillende metaal(hydr)oxiden a priori kan voorspellen (Hiemstra et al., 1989a). Op basis van het MUSIC (MUlti SIte Complexation) model kan het variabele ladingsgedrag van metaal(hydr)oxiden voorspeld worden. De voorspellingen blijken redelijk goed overeen te komen met het gemeten gedrag voor een reeks van metaal(hydr)oxiden (Hiemstra et al., 1989b, Hiemstra en Van Riemsdijk, 1990a). Het MUSIC model is inmiddels verder uitgebreid zodat het in staat is de specifieke adsorptie van kat- en anionen te beschrijven (Hiemstra en Van Riemsdijk, 1990b) als functie van milieuocondities (pH, zoutgehalte, effect competitie etc.).

De ontwikkeling van modellen die de mogelijkheid geven om de reactiviteit van een stof aan een oppervlak te voorspellen op basis van de structuur biedt geheel nieuwe perspectieven op het gebied van de beschrijving en voorspelling van het gedrag van stoffen in het milieu.

3 HETEROGENITEITSPROBLEMATIEK

3.1 Variatie in samenstelling van de matrix

Een van de redenen van de complexiteit van het kwaliteitsprobleem is dat bij een en hetzelfde gehalte van een stof in verschillende bodemsystemen ordes van grootte verschillen in de concentratie in de vloeistoffase van deze stof kunnen voorkomen. Dit wordt onder andere veroorzaakt doordat de samenstelling van de bodemmatrix enorm kan variëren. Met name wanneer de relatie tussen het gehalte van een stof in de bodem en de concentratie in oplossing wordt bepaald door adsorptie/desorptie processen is de aard en de grootte van het reactieve oppervlak van de vaste fase in de bodem van belang. Er is een tamelijk grote variatie mogelijk zowel in het totale reactieve oppervlak per volume eenheid bodem als in de onderlinge verhouding.

3.2 Variatie in "milieu"omstandigheden

- Zoutgehalte

Het zoutgehalte van de vloeistoffase kan sterk variëren. De absolute ondergrens wordt bepaald door de samenstelling van het regenwater (10^{-4} M). Tengevolge van evapotranspiratie zal er een verhoging van het zoutgehalte optreden. Het zoutgehalte kan zeer lokaal hoog oplopen onder een urineplek van bijvoorbeeld een weidende koe (0.7 M). Ook tengevolge van zeewater intrusie (≈ 0.5 M) of tengevolge van lekwater van vuilstortplaatsen of overbemesting kunnen plaatselijk relatief hoge zoutgehalten voorkomen. Het zoutgehalte heeft een groot effect op de specifieke adsorptie van anionen in de bodem. Maar ook het gedrag van sommige kationen kan sterk door het zoutgehalte worden beïnvloed (bijv. aluminium). De oplosbaarheid van sommige mineralen is ook een duidelijke functie van het zoutgehalte.

- pH

De pH kan variëren van ca. 3,5, die kan voorkomen in zogenaamde "acid-sulfate soils" tengevolge van de oxidatie van pyriet (FeS_2) waarbij zwavelzuur ontstaat, tot een pH van ca. 10. Een range van pH 4-8 is een zeer normale range. De pH heeft een zeer groot effect op de specifieke adsorptie van zowel kat- als anionen. Ook op de

oplosbaarheid van een groot aantal mineralen en op de oplossnelheid heeft de pH een zeer groot effect.

- Redox

De oxidatietoestand van de bodem kan ook sterk uiteenlopen. In een goed geaereerde bovengrond is zuurstof aanwezig en heerst een relatief hoge redoxpotentiaal van + 0.4 tot + 0.6 volt en in zuurstofloze gronden kan de redoxpotentiaal variëren van + 0.2 tot - 0.4 volt. De redoxtoestand kan het gedrag van sommige stoffen in de bodem sterk beïnvloeden. Onder sterk anaerobe condities wordt sulfaat omgezet in sulfide; vele metalen vormen met sulfide zeer slecht oplosbare verbindingen. Bij het omgekeerde proces, oxidatie van sulfidische afzettingen kunnen deze metalen weer vrijkomen. Ook microbiële processen worden sterk door de redoxtoestand beïnvloed, sommige organische verontreinigingen worden veel sneller afgebroken onder anaerobe condities terwijl andere juist veel sneller afgebroken worden onder aerobe condities.

3.3 Schaalprobleem

- Moleculaire schaal (A)

De interactie van een stof met een reactief oppervlak vindt in het geval van de vorming van een chemische binding met een reactieve groep plaats op moleculaire schaal

- Kristalvlak (nm- μ m)

Op een deeltje kunnen verschillende kristalvlakken voorkomen en op elk vlak kunnen meerdere typen reactieve groepen aanwezig zijn met ieder een verschillende reactiviteit. Het gaat hier om chemische heterogeniteit op de schaal van een kristalvlak. Omdat met name kleine deeltjes een grote bijdrage leveren aan het reactief oppervlak van de bodem is de schaal (nm- μ m)

- Deeltje (nm- μ m)

Omdat er op een deeltje meerdere verschillende kristalvlakken kunnen voorkomen met soms totaal verschillende chemische eigenschappen, denk bijvoorbeeld aan de plaatszijde van een aluminium silicaat kleideeltje ten opzichte van de randvlakken, is er ook sprake van heterogeniteit op de schaal van het deeltje

- Aggregaat (mm-cm)

Verschillende deeltjes zoals klei-, humus- en metaal(hydr)oxidedeeltjes kunnen aan

elkaar katten tot een aggregaat. Door de gemengde samenstelling is er sprake van heterogeniteit maar ook de samenstelling van verschillende aggregaten kan variëren in samenstelling.

- Bodemhorizont (dm)

In de bovengrond kunnen vaak verschillende bodemhorizonten worden onderscheiden die sterk kunnen verschillen in samenstelling en reactiviteit. De dikte van bodemhorizonten is sterk variabel; in het horizontale vlak kan het om grote oppervlakken gaan.

- Profiel (dm-m)

Een doorsnee van de bovengrond is vaak gekenmerkt door verschillende horizonten. In verticale richting kan er dus een grote chemische (en fysische) heterogeniteit zijn.

- Perceelschaal (hm)

De bodemkwaliteit in relatie tot gewasopbrengst of gewaskwaliteit is vaak van belang op perceelschaal. Binnen een perceel kan een relatief grote variatie in samenstelling (bijv. org. stofgehalte) en "milieu"condities (bijv. pH) voorkomen.

- Stroomgebiedschaal (hm-km)

Ten aanzien van kwaliteit van oppervlaktewater en grondwater is de schaal van het stroomgebied van belang. Zowel de heterogeniteit van de bovengrond als die van het watervoerend pakket is van belang voor het effect van een bepaalde stofbelasting in een gebied op de resulterende waterkwaliteit.

3.4 "Middeling"

Hoewel de interactieprocessen op moleculaire schaal plaatsvinden vindt de waarneming in het algemeen plaats op een veel grotere schaal. Bij de bestudering van de interactie van een stof met een bodemcomponent (bijvoorbeeld een metaal(hydr)oxide) vindt de waarneming plaats via de adsorptie aan een verzameling van redelijk uniforme deeltjes. Wanneer het bindingsgedrag van humus of fulvozuren wordt bestudeerd, dan gaat het om een verzameling van verschillende deeltjes of macromoleculen die ieder op zich heterogeen zijn. De waarneming is dus het effect van de verschillende typen heterogeniteit tezamen. Het blijkt dat het gedrag van een dergelijk systeem niet goed beschreven kan worden door een homogeen adsorptiemodel met een bindings- of affiniteitsconstante die het gemiddelde is van

de individuele microscopische constante. Het verband tussen de concentratie in de oplossing en de hoeveelheid geadsorbeerd wordt wezenlijk beïnvloed door de heterogeniteit.

Een voorbeeld van een homogene multicomponent competitieve adsorptievergelijking voor species i is:

$$Q_i = Q_{\max} \frac{K_i c_i}{1 + \sum_{j=1}^n K_j c_j} \quad (4)$$

De totale adsorptie van species i , $Q_{i,t}$, voor een heterogeen systeem wordt verkregen door sommatie in het geval van een discrete verdeling van affiniteitsconstanten, of door integratie in het geval van een continue verdeling, over de verschillende homogene "deelgebiedjes". De integraalvergelijking leidt voor sommige typen distributies tot een analytisch verband tussen adsorptie en concentratie met als extra voorwaarde dat de vorm van de affiniteitsverdelingsfunctie van de verschillende affiniteitsconstanten voor competitieve adsorptie dezelfde is en dat voor elk homogeen deelgebiedje dezelfde "lokale" adsorptie isotherm geldt (Van Riemsdijk et al., 1986; Van Riemsdijk et al., 1990). Voor een "semi-gaussische" verdeling met vergelijking 3 als lokale isotherm resulteert de volgende adsorptievergelijking voor het heterogene systeem:

$$Q_{i,t} = Q_{\max,t} \frac{\tilde{K}_i c_i}{\left\{ 1 + \left(\sum_{j=1}^n K_j c_j \right)^m \right\} \left(\sum_{j=1}^n K_j c_j \right)^{1-m}} \quad (5)$$

waarin \tilde{K}_i de gewogen gemiddelde K -waarde is en de parameter m is een maat voor de breedte van de verdeling ($m \leq 1$) en $Q_{\max,t}$ is het totale adsorptiemaximum dat gelijk is aan de som van de adsorptiemaxima van de homogene deelgebiedjes. Zoals blijkt uit een vergelijking tussen formule (4) en (5) resulteert er een geheel andere adsorptievergelijking voor het heterogene systeem.

Wanneer adsorptie aan een grondmonster wordt bestudeerd dan is de waarneming een gewogen gemiddelde van de verschillende typen reactieve deeltjes. Wanneer slechts één type het bindingsgedrag voornamelijk bepaalt, dan is het probleem van het te gebruiken adsorptiemodel niet verschillend van de ontwikkeling van een adsorptiemodel voor een bodemcomponent.

Wanneer echter meerdere bodemcomponenten bij het gedrag betrokken zijn wordt het probleem complexer. Gezien het zeer verschillende gedrag van de diverse reactieve bodemcomponenten is een integratie tot een nieuwe "bodemadsorptie vergelijking" niet erg voor de hand liggend. Beschrijving als optelsom van deeladsorptiemodellen lijkt dan meer voor de hand te liggen. Zoals reeds eerder aangeduid is er dan wel het probleem om de hoeveelheid van de reactieve componenten in het bodemmengsel en eventuele wederzijdse beïnvloeding vast te stellen. De "middelingenproblematiek" komt voor op alle genoemde schalen en is zowel een belangrijk praktisch als een theoretisch probleem. Zeker op het gebied van risico-evaluatie is het vaak niet geoorloofd om het gedrag te schatten op basis van homogene modellen, met gemiddelde parameters. Ook op het gebied van transport van reactieve chemicaliën speelt de heterogeniteit en de middelingenproblematiek een belangrijke rol.

4 CHEMIE EN TRANSPORT

4.1 Chemisch evenwicht en transport

Wanneer reactieve stoffen met het water getransporteerd worden door de onverzadigde of verzadigde zone is het voor een modelbeschrijving noodzakelijk om de chemische procesmodellering te koppelen aan de fysische transportmodellering. Hier zijn in principe twee mogelijkheden voor. De chemie kan "ingebouwd" worden in de transport- vergelijking en deze kan dan vervolgens worden opgelost. Dit is voor zeer eenvoudige interacties zoals lineaire adsorptie de aangewezen weg. Voor ingewikkelder chemische reacties waarbij interactie bestaat tussen verschillende stoffen (z.g. multicomponent reacties) is deze methode nog beperkt toepasbaar (Van Riemsdijk en Van der Zee, 1989). Een groot nadeel is dat de programmatuur tamelijk specifiek is voor een bepaalde situatie, voor elk nieuw probleem of

bij de introductie van nieuwe species moet de programmatuur worden aangepast. Een andere methode is de chemische interactie als een losse "subroutine module" bij de transportmodellering te gebruiken. De chemie wordt modelmatig "losgekoppeld" van het transport. Deze aanpak heeft als bezwaar dat er een extra numerieke dispersie ontstaat tengevolge van deze loskoppeling (Herzer en Kinzelbach, 1987).

4.2 Schudproef/kolomproef/transport op veldschaal

Schudproeven lenen zich goed om het interactiegedrag van een stof met bodemmonsters te bestuderen. Zoals besproken in hoofdstuk 2 van deze bijdrage kan vervolgens het waargenomen gedrag worden gemodelleerd waarbij het effect van bodemeigenschappen en milieuomstandigheden op het gedrag idealiter in het model verwerkt zijn. Bijzondere aandacht dient te worden besteed aan de reversibiliteit van de reacties. Het kan voorkomen dat de vastlegging de resultante is van verschillende processen met een sterk uiteenlopende reversibiliteit. Met name wanneer ook de uitloging van een stof van belang is, is het essentieel om een goed inzicht te hebben in de mate van reversibiliteit van (deel)reacties. Ook de reactiekinetiek kan hierbij van groot belang zijn. Proeven met homogene grondkolommen in het lab lenen zich goed om vervolgens te toetsen of het ontwikkelde model bruikbare voorspellingen geeft ten aanzien van het transportgedrag van de stof onder verschillende omstandigheden. Bij de vertaling van de resultaten gevonden in het laboratorium naar transport in het veld moet rekening worden gehouden met het feit dat de bodemeigenschappen en de milieuomstandigheden variabel zijn in het veld. De heterogeniteit, d.w.z. de ruimtelijke verdeling van die parameters die het transportgedrag van de stof van interesse het sterkst beïnvloeden, moet vervolgens in het veld worden vastgesteld. Het transportgedrag in het veld kan dan stochastisch worden berekend, gebruikmakend van het interactiemodel, de ruimtelijke verdeling van de parameters van het model in het veld en een transportmodel (Van der Zee en Van Riemsdijk, 1986; 1987).

4.3 Colloidaal transport van stoffen

Bij de koppeling van chemische processen aan transportprocessen is het nodig om te weten

welke verschijningsvormen van een stof mobiel zijn. Mobiele verbindingen lopen mee met het water of verspreiden zich eventueel via de gasfase indien aanwezig. Niet mobiele verbindingen bevinden zich in de vaste matrix van het poreuze medium. Het onderscheid tussen mobiel en immobiel is een minder eenvoudig probleem dan het lijkt. De "bodem" organische stof (humuszuren, fulvozuren) kan zowel voorkomen in de vaste fase als in de oplossing. Wanneer een stof sterk adsorbeert aan de opgeloste bodemorganische stof dan zal deze door middel van deze "carrier" juist goed getransporteerd kunnen worden. Het is dan echter wel van belang om te weten of en als functie waarvan deze opgeloste bodemorganische stof kan adsorberen of precipiteren zodat de eraan geadsorbeerde verontreiniging na enige afstand weer (gedeeltelijk) wordt gemobiliseerd. De concentratie opgeloste bodemorganische stof is onder andere een duidelijke functie van pH en zoutgehalte. Een relatief laag zoutgehalte en een relatief hoge pH geeft een relatief hoge concentratie opgelost organisch materiaal. Het opgelost organisch materiaal in grondwater kan oplopen tot 88 mg C/L (Ivanovich, 1990). Het merendeel van de deeltjes is 1-10 nm groot en de concentratie aan deeltjes wordt geschat op 10^8 tot 10^{17} deeltjes per liter.

Dezelfde problematiek bestaat voor andere colloïde deeltjes waaraan verontreinigingen sterk kunnen adsorberen. Momenteel staat de problematiek van transport door middel van colloïdale deeltjes sterk in de belangstelling. Plutonium en Americium blijken veel verder getransporteerd te worden in een watervoerend pakket dan verwacht op basis van laboratoriumstudies; namelijk over kilometers in plaats van over meters afstand (Penrose et al., 1990). Transport van colloïden speelt hierbij een belangrijke rol (25-450 nm), geleidelijk worden de colloïden verwijderd uit de oplossing. Er zijn ook aanwijzingen dat mobiele colloïden gevormd kunnen worden onder invloed van anaërobie, het ijzeroxide dat eerst als een kitmiddel fungeerde tussen klei en organische stof, lost op onder anaërobe condities en de klei en organische stof worden gedeeltelijk gemobiliseerd (Ryan en Gschwend, 1990). Het is van groot belang om het transportgedrag van colloïden in de bodem beter te begrijpen omdat dit proces onder sommige condities een belangrijke rol kan spelen bij het transport van verontreinigingen.

Met dank aan ir. M.M. Nederlof voor zijn commentaar op een eerdere versie van dit artikel.

REFERENTIES

- BOEKHOLD, A.E. and VAN DER ZEE, S.E.A.T.M.; 1990. Plant uptake of cadmium as affected by variation in sorption parameters. *Plant Nutrition - Physiology and Applications*. Ed. M.L. van Beusichem, pp. 313-316. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands.
- CHARDON, W.J.; 1984. Mobiliteit van cadmium in de bodem. Serie Bodembescherming no. 36. Staatsuitgeverij, 's Gravenhage, 200 pp.
- CHIOU, C.T., PORTER, P.E. and SCHMEDDING, D.W.; 1983. Partition equilibria of nonionic organic compounds between soil organic matter and water. *Environ. Sci. Technol.* 17, 227-231.
- DE HAAN, F.A.M., BOURG, A.C.M., BROOKES, P.C., VERSTRAETE, W., VAN RIEMSDIJK, W.H., VAN DER ZEE, S.E.A.T.M. and GIRALDEZ, J.V.; 1989. Soil Quality Assessment, State of the Art report on Soil Quality. EC Report XII/523/89, 173 pp.
- DE HAAN, F.A.M., VAN DER ZEE, S.E.A.T.M. and VAN RIEMSDIJK, W.H.; 1987. The role of soil chemistry and soil physics in protecting soil quality: variability of sorption and transport of cadmium as an example. *Neth.J.Agric.Sci.* 35: 347-359.
- HERZER, J. and KINZELBACH, W.; 1987. Coupling of transport and chemical processes in numerical transport models, Proc. Int. Conf. Impact of physico-chemistry on the study, design and optimization of processes in natural porous media, 10-12 June, 1987, Nancy.
- HIEMSTRA, T., VAN RIEMSDIJK W.H. and BOLT, G.H.; 1989a. Multi-site proton adsorption modeling at the solid/solution interface of (hydr)oxides: A new approach. I: Model description and evaluation of intrinsic reaction constants. *J. Colloid Interface Sci.* 133: 91-104.
- HIEMSTRA, T., VAN RIEMSDIJK W.H. and DE WIT, J.C.M.; 1989b. Multi-site proton adsorption modeling at the solid/solution interface of (hydr)oxides: A new approach. II: Application to various important (hydr)oxides. *J. Colloid Interface Sci.* 133: 105-117.
- HIEMSTRA, T., and VAN RIEMSDIJK, W.H.; 1990a. Physical chemical interpretation of primary charging behaviour of metal(hydr)oxides. *Colloids and Surfaces* (in press).

- HIEMSTRA, T. and VAN RIEMSDIJK, W.H.; 1990b. Adsorption modelling of cations and anions at the solid/solution interface of metal(hydr)oxides: A new mechanistic multisite approach I: Model description. Report Dept. Soil Sci. Plant Nutrition Agricultural University Wageningen, 16 pp.
- IVANOVICH, M.; 1990. A review of characterization and transport studies of groundwater colloids. Presentation at Geocolloids meeting, Plymouth U.K.
- JURY, W.A., SPENCER, W.F. and FARMER, W.J.; 1983. Behaviour assessment model for trace organics in soil. I. Model description. *J Environ. Qual.* 12: 558-564.
- JURY, W.A., FARMER, W.J. and SPENCER, W.F.; 1984a. Behaviour assessment model for trace organics in soil. II. Chemical classification parameter sensitivity. *J. Environ. Qual.* 13: 467-572.
- JURY, W.A., SPENCER, W.F. and FARMER, W.J.; 1984b. Behaviour assessment model for trace organics in soil. III. Application of screening model. *J. Environ. Qual.* 13: 573-579.
- JURY, W.A., SPENCER, W.F. and FARMER, W.J.; 1984c. Behaviour assessment model for trace organics in soil. IV. Review of experimental evidence. *J. Environ. Qual.* 13: 580-586.
- KARICKHOFF, S.W., BROWN, D.S. and SCOTT, T.A.; 1979. Sorption of hydrophobic pollutants on natural sediments. *Water Res.* 13: 241-248.
- LINDSAY, W.L.; 1979. *Chemical equilibria in soils.* Wiley and Sons, New York, 449 pp.
- NIERMALAKHADA, N.N. and SPEECE, R.E.; 1989. Prediction of aqueous solubility of organic chemicals based on molecular structure 2. Application to PNA's, PCB's, PCDD. *Environ. Sci. Technol.* 23: 708-713.
- PENROSE, W.R., POLZER, W.L., ESSINGTON, E.H., NELSON, P.M. and ORLANDI, K.A.; 1990. Mobility of Plutonium and Americium through a shallow aquifer in a semi-arid region. *Env. Sci. Technol.* 24: 228-234.
- RYAN, J.N. and GSCHWEND, P.M.; 1990. Colloid mobilization in two atlantic coasted plain aquifers: field studies. *Water Resour. Res.* 26: 307-322.
- SABLJIC, A.; 1987. On the prediction of soil sorption coefficients of organic pollutants from molecular structure: Application of molecular topology model. *Environ. Sci. Technol.* 21: 358-366.

- VAN DER ZEE, S.E.A.T.M. and VAN RIEMSDIJK, W.H.; 1986. Transport of phosphate in a heterogeneous field. *Transp. Porous Media* 1: 339-359.
- VAN DER ZEE, S.E.A.T.M. and VAN RIEMSDIJK, W.H.; 1987. Transport of reactive solute in spatially variable soil systems. *Water Resour. Res.* 23: 2059-2069.
- VAN RIEMSDIJK, W.H., BOLT, G.H., KOOPAL L.K. and BLAAKMEER J.; 1986. Electrolyte adsorption on heterogeneous surfaces: Adsorption models. *J. Colloid Interface Sci.* 109: 219-228.
- VAN RIEMSDIJK, W.H.; 1990. Caput college Bodemchemische aspecten van biologische beschikbaarheid. Vakgroep Bodemkunde en Plantevoeding, Landbouwuniversiteit Wageningen, 13 pp.
- VAN RIEMSDIJK, W.H., BOLT, G.H. and KOOPAL, L.K.; 1990. The electrified interface of the soil solid phase. B. Effect of surface heterogeneity. In: G.H. Bolt (Ed.). *Interactions at the solid colloid - soil solution interface* (in press).
- VAN RIEMSDIJK, W.H. and VAN DER ZEE, S.E.A.T.M.; 1989. Multicomponent transport modelling of enhanced metal leaching using synthetic ligands. *Geoderma* 44: 143-158.

DE INVLOED VAN GEOCHEMISCHE PROCESSEN OP BODEMWATERKWALITEIT; TOEPASSINGEN

N.M. de Rooij

1 INLEIDING

De bodemwaterkwaliteit wordt bepaald door de aanvoer van water, regenwater, grondwater, irrigatiewater en de daarbij behorende kwaliteit en de wisselwerking tussen vaste stof en water. Indien de vaste stof wordt opgesplitst in organisch en anorganisch materiaal kan deze wisselwerking nader worden gespecificeerd als:

- Organisch materiaal: afbraak, met opname van oxydatoren (O_2 , NO_3^- , SO_4^{2-} of methanogenese), en afgifte van CO_2 en nutriënten.
 - Anorganisch materiaal: uitwisseling met het adsorptiecomplex, verwerking en precipitatie.
- Sturende variabelen bij deze processen, met name bij de interactie tussen water en anorganisch materiaal, zijn zuurgraad (pH) en redox potentiaal (E_h).

De aanvoer van water en de interactie tussen vast en vloeistof hebben invloed zowel op de macrochemische variabelen (O_2 , alkaliteit, Na, K, Ca, Si, Al etc.), als op de microchemische variabelen (zware metalen etc.). Omdat het gedrag van de microchemische variabelen ook door de macrochemie wordt gestuurd, is het in de praktijk onmogelijk het gedrag van de microchemie te beschrijven zonder de macrochemie in de beschouwing te betrekken.

De voorbeelden waarbij adsorptieformuleringen worden gegeven als functie van pH,

organisch stofgehalte, kleigehalte, Cl^- gehalte etc. zijn legio. Dergelijke, veelal empirische, formuleringen zijn overigens alleen bruikbaar in situaties waar pH, Cl^- etc. bekend zijn, en zelf niet variëren, of waarbij de variatie anderszins beschreven kan worden.

Bovenstaande betekent dat een beschrijving van de bodemwaterkwaliteit in termen van microverontreinigingen automatisch inhoudt dat het gehele systeem, inclusief macrochemie, beschreven moet worden.

In het hierna volgende zal worden ingegaan op aspecten die hierbij een rol spelen (paragraaf 2), ervaringen opgedaan (paragraaf 3) en conclusies (paragraaf 4).

2 BESCHRIJVING CHEMISCHE PROCESSEN BODEMWATERKWALITEIT

Vanuit chemisch oogpunt kan de bodem worden beschreven als een aantal fasen waar tussen stof kan worden uitgewisseld, voor zover het het anorganische deel betreft. Het organische deel verbruikt oxydator en levert CO_2 en nutriënten. Daarnaast levert het organische deel adsorptiecapaciteit. De afbraak van kinetiek organische stof wordt veelal met 0^e, 1^e of 2^e orde kinetiek (b.v. afhankelijk van Oxydator concentratie) beschreven. Hierop zal in dit kader niet nader worden ingegaan.

Het anorganische deel van de bodem bestaat uit een aantal fasen: de verschillende mineralen, adsorptiefasen, waterfase, gasfase. De speciatie (i.e. de verdeling van componenten over verschillende verbindingen) in de waterfase kan met chemische evenwichtsmodellen veelal goed worden beschreven. De principes van deze modellen:

- wet van behoud van massa
- minimalisatie Gibbs energie, of een set van evenwichtsvergelijkingen, lijken niet omstreden (De Rooij, 1990).

Dit betekent dat bij gegeven totaalconcentratie van een component in oplossing zijn activiteit (thermodynamische potentiaal) ook goed beschreven kan worden. Dit is een hoopgevende conclusie, aangezien er steeds meer aanwijzingen (Di Toro e.a. 1990) zijn dat de toxiciteit van stoffen afhankelijk is van de thermodynamische potentiaal.

De activiteit van Cd in water wordt in sterke mate beïnvloedt door de Cl^- concentratie (Comans, 1988). De activiteit van PO_4^{3-} door pH, en dus door CO_2 en alkaliteit.

Zoals echter reeds in de inleiding is opgemerkt houdt dit wel in dat het gehele macrochemische systeem beschreven moet worden.

Bij bodemwaterkwaliteit speelt echter de speciatie tussen opgeloste stof en vaste stof een overheersende rol. Voor de vaste fasen moet onderscheid gemaakt worden tussen adsorptiefasen en precipitatiefasen.

Voor adsorptiefasen geldt (lineaire benadering):

$$C_o = K_a C_v \quad (1)$$

met:

C_o = concentratie in oplossing (Massa/Volume)

K_a = verdelingscoëfficiënt (Volume/Massa)

C_v = concentratie vast (Massa/Massa)

waarin K_a een functie is van de Thermodynamische potentiaal.

Voor preprecipitatiefasen geldt

$$C_o = K_p \quad (2)$$

indien de vast fase aanwezig is, met wederom K_p als functie van de thermodynamische potentiaal.

Een bekend voorbeeld is Cd, wat in oxische omstandigheden vooral in de adsorptiefase voorkomt (oxiden en hydroxiden, kleimineralen) en in anoxische omstandigheden als CdS voorkomt (Gemeente Rotterdam, 1984, Zwolsman, 1990, Di Toro, 1990).

Dit verschil in vaste stof gedrag is zeer relevant. Bij precipitatiefasen is de thermodynamische potentiaal onafhankelijk van de vaste stof concentratie (dus bijvoorbeeld onafhankelijk van de mate van verontreiniging). Dit betekent anderszins dat de beschrijving van de macrochemische omstandigheden (wel of niet anoxisch) noodzakelijk is. Hoewel beschrijving van de macrochemie uitsluitel geeft over de vraag of vergelijking (1) dan wel (2) bepalend is, en hoewel zelfs de invloed van het macrochemische systeem op de waarde

van deze K's kan worden beschreven (bijvoorbeeld complexatie Cd^{2+} aan Cl^-) is de absolute waarde van de K veelal onduidelijk (De waarde van K bij standaard activiteit). Dit wordt veroorzaakt door het slecht gedefinieerd zijn voor vaste fasen. De thermodynamische literatuur biedt een veelheid aan oplosbaarheidsproducten voor bijvoorbeeld ijzerhydroxiden en CdS, die factoren verschillen. De enige wetmatigheid is dat anorfe, ("verse") verbindingen oplosbaarder zijn dan kristallijne verbindingen. Dit betekent dat voor praktisch gebruik deze constanten in het systeem dat men wil beschrijven moeten worden bepaald of dat deze stoffeigenschappen op grond van theoretische beschouwingen (QSAR, zie ook Van Riemsdijk, deze publikatie) kunnen worden vastgesteld.

3 ERVARINGEN BESCHRIJVINGEN WATERKWALITEIT

De ervaringen bij het Waterloopkundig Laboratorium in de geochemische procesbeschrijvingen betreffen slechts gedeeltelijk de bodemwaterkwaliteit. Ervaringen liggen meer op verzadigd grondwaterkwaliteitsterrein en oppervlaktewater. Anderzijds zijn de processen: interactie vastvloeistof identiek, zodat waarschijnlijk de conclusies breder geïnterpreteerd kunnen worden.

a Oplosbaarheid precipitaten

De oplosbaarheidsproducten worden altijd gekalibreerd aan de hand van metingen. In het IJsselmeer (De Rooij, 1982) precipiteert en sedimenteert Calciet. De concentratie Ca totaal in het bij de Afsluitdijk uitstromende water is ca 20 gr/m^3 lager dan die van het bij de Ketelbrug instromende water. Het tijdsafhankelijke gedrag van zowel Ca als alkaliteit kan beschreven worden met een oplosbaarheidsproduct van $10^{-7.9}$.

(N.B. dit is het oplosbaarheidsproduct in termen van een activiteitenproduct, geen conditioneel oplosbaarheidsproduct).

Dit zou er op kunnen wijzen dat een zekere oververzadiging nodig is alvorens precipitatie ontstaat.

De kalibratie van oplosbaarheden van sulfides in baggerspecie (Gemeente Rotterdam, 1982) laat een soortgelijk beeld zien. Binnen de reeks van literatuurwaarden liggen de gevonden

waarden aan de "oplosbare" kant.

b Adsorptie

In het kader van diverse onderzoeken uitgevoerd door of in opdracht van Rijkswaterstaat zijn metingen uitgevoerd in oppervlaktewater aan gehalten van zware metalen in oplossing en geadsorbeerd aan zwevende stof. Daarnaast zijn diverse laboratoriumstudies gedaan naar ad- en desorptie van zware metalen aan zwevende stof, onder verschillende macrochemische condities. Hoewel het duidelijk zal zijn dat kalibratieresultaten niet volledig met de metingen overeen stemmen, kan wel geconcludeerd worden dat de macrochemische afhankelijkheid voor ieder van de datasets individueel kan worden gereproduceerd.

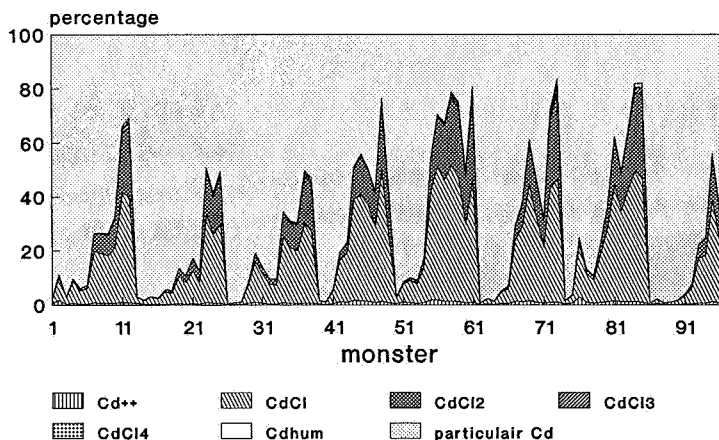
Dit betreft afhankelijkheid van pH, alkaliteit, Cl^- , zwevend stof gehalte etc. Ieder van de datasets levert echter een eigen constante voor de adsorptie bij standaardomstandigheden (activiteit metaal = 1), die onderling een factor 100 verschillen. De hoogste adsorptie wordt gevonden in de meetdataset van de Westerschelde (Zwolsman, 1990), de laagste in de laboratoriumadsorptie dataset van zwevende stof uit de Rijn bij Lobith (Comans, 1980).

Twee mogelijke verklaringen kunnen worden gegeven:

- Bij adsorptieproeven in het laboratorium wordt minder geadsorbeerd, dan in werkelijkheid in het veld.
- Het materiaal waaraan geadsorbeerd wordt ("zwevende stof") heeft verschillende eigenschappen.

Het vermoeden bestaat dat in de Westerschelde vers FeOOH wordt gevormd, als het anoxische Belgische Scheldewater oxisch wordt. Hiermee zou de hoge adsorptie constante voor de Westerschelde kwalitatief verklaard kunnen worden.

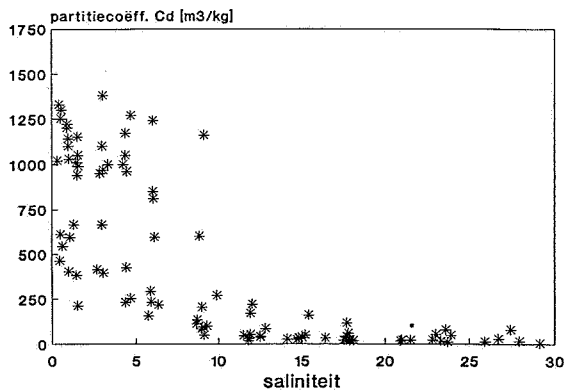
speciatie Cadmium in percentages 97 monsters, 8 vaartochten



Dataset Zwolsman, berekeningen CHARON

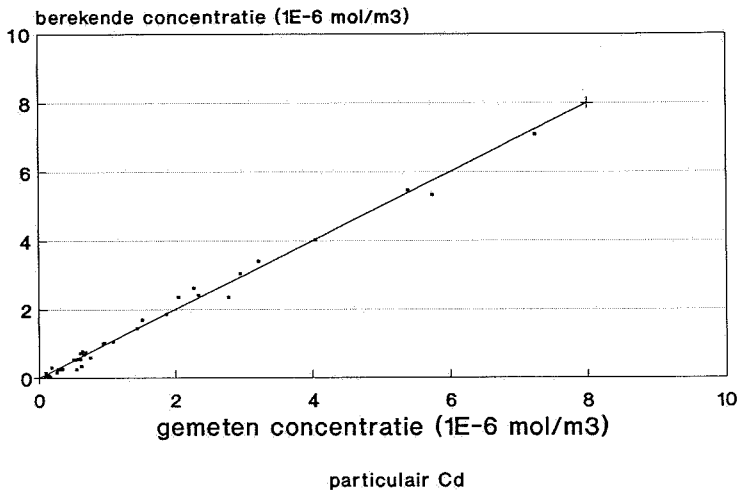
Figuur 1 Cadmium in de Westerschelde

In figuur 1 is de berekende speciatie van in de Westerschelde dataset gegeven, in figuur 2 staat de gemeten K_d tegen de saliniteit en in figuur 3 staat het gemeten gehalte particulier Cd tegen het berekende gehalte uitgezet. Uit deze figuren is duidelijk te concluderen dat een juiste beschrijving van de speciatie in oplossing een goede adsorptiebeschrijving geeft bij een bekende adsorptie constante onder standaardomstandigheden.



dataset GertJan Zwolsman

Figuur 2 Gemeten K_d uitgezet tegen de saliniteit



Figuur 3 Gemeten gehalte particulier Cd uitgezet tegen het berekende gehalte

4 CONCLUSIES

a Toepasbaarheid

Het beschrijven van interacties tussen vast en vloeistof vindt zijn beperkingen in het onbekend zijn van de eigenschappen van de vaste fasen (zowel qua adsorptie als precipitatie).

b Validatie

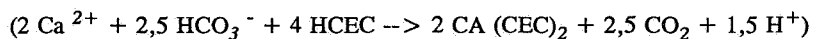
Er zijn een aantal aspecten waardoor validatie van modellen ernstig bemoeilijkt wordt:

- Heterogeniteit in de bodem, zodat "onduidelijk" is waar precies gemeten wordt.
- Het ontbreken van voldoende gegevens in tijd en ruimte.

Het is wel mogelijk om (theoretische gefundeerde) modellen op deelaspecten te toetsen. Een

compleet geochemisch model kan getoetst worden op juistheid t.a.v. berekening van thermodynamische potentialen.

Een model moet en kan ook conceptueel getoetst worden. Bij een onderzoek t.b.v. de Studiecommissie: Waterhuishouding, Natuur, Bos en Landschap (Wesseling, 1985) werd door het model een pH verlaging in een zandbodem berekend van 5 naar 4,5 bij een irrigatie met Rijnwater.



Of een dergelijk fenomeen optreedt kan door metingen in grondwaterinfiltratiesystemen en/of laboratoriumexperimenten worden nagegaan.

(N.B. het fenomeen treedt op).

Tenslotte kan worden opgemerkt dat een geslaagde validatie in principe nog niets zegt over de toepasbaarheid op andere systemen of in andere situaties. Als na sanering van zuurstof verbruikende stoffen in België het oostelijk deel van de Westerschelde niet meer anoxisch is, zou daarmee (als de hypothese van adsorptie aan vers FeOOH correct is) de adsorptiebeschrijving in geheel oxische omstandigheden wel eens geheel fout kunnen zijn.

REFERENTIES

- COMANS, R.N.J., VAN DIJK, C.P.J.; 1988. Role of complexation processes in Cadmium mobilization during estuarine mixing, *Nature* 336, p.p. 151-154.
- DI TORO, D., MAHONEY, J.D., HANSEN, D.J., SCOTT, K.J., CARLSON, A.R., ANKLEY, G.T.; 1990. Acid Volabile sulfide predicts the acute toxicity of Cadmium and Nickel in Sediments. Submitted to Science.
- GEMEENTE ROTTERDAM, e.a.; 1984. Grootschalige locatie voor de berging van baggerspecie uit het Benedenrivierengebied. Gemeentedrukkerij Rotterdam.
- DE ROOIJ, N.M.; 1982. Waterkwaliteitsmodel IJsselmeer. Waterlooppkundig Laboratorium R1552.

- DE ROOIJ, N.M.; 1990. Mathematical Simulation of bio-chemical processes in natural waters by the model CHARON. Waterloopkundig Laboratorium, R1310.
- WESSELING, J.W., BRIL, J.; 1985. Modelling Ca^{2+} in groundwater, fase I. Waterloopkundig Laboratorium, R2134.
- ZWOLSMAN, J.J.G., VAN DER WEIJDEN, C.H. and VAN ECK, G.Th.M.; 1990. Influence of redox conditions and phytoplankton activity on the transport of dissolved Cd, Cu and Zn through the Scheldt estuary. Submitted to Geochimica. Cosmochim. Acta.

DE INVLOED VAN BIOLOGISCHE PROCESSEN OP DE BODEMWATERKWALITEIT

P. van Beelen en J. Notenboom

SAMENVATTING

In hoofdlijnen worden de verschillende aspecten besproken die de biologische, vooral microbiologische, processen in de bodem beïnvloeden en zodanig een invloed hebben op de chemische bodemwaterkwaliteit. Bij de omzetting van natuurlijke en milieuvreemde stoffen is de aanwezigheid van een diverse microflora, de temperatuur, de zuurstof- en redoxcondities en de pH van groot belang. Daarnaast speelt de concentratie waarin een milieuvreemde stof in de bodem voorkomt een rol alsmede biologische beschikbaarheid en de adaptatie van de microflora. Biologische afbreekbaarheid is geen stofeigenschap maar een combinatie van milieu- en stofeigenschappen.

1 INLEIDING

Wanneer we over waterkwaliteit spreken dan worden daar in het algemeen twee aspecten onder verstaan, namelijk de chemische waterkwaliteit en de microbiologische waterkwaliteit. De bodemwaterkwaliteit wordt beïnvloed door vele directe en indirecte factoren. Biologische processen vormen een hecht netwerk van onderlinge relaties waardoor het meestal niet mogelijk is om een bepaald proces te veranderen zonder dat effecten elders in het ecosysteem optreden. Om te voorkomen dat hier de hele bodembiologie behandeld zou

moeten worden beperkt deze bijdrage zich tot de directe invloed van biologische processen op de bodemwaterkwaliteit. Wij zijn ons er echter van bewust dat de indirecte effecten in bepaalde gevallen een zeer grote invloed kunnen hebben. Als voorbeeld hiervan kan de introductie van vossen in de duinen genoemd worden, die de konijnenstand kan verminderen waardoor de vegetatie zou kunnen toenemen. De toename van de vegetatie heeft dan weer invloed op de hoeveelheid organisch materiaal in de bodem en op de bodemwaterkwaliteit.

2 DE MICROBIOLOGISCHE BODEMWATERKWALITEIT

Ons waterleidingsysteem is vroeger opgezet omdat de microbiologische bodemwaterkwaliteit door verontreiniging met menselijke faecaliën of dierlijke mest sterk achteruit gegaan was zodat men niet meer uit de open put naast het huis kon drinken. Wat betreft de vervuiling door menselijke uitwerpselen is de situatie sindsdien verbeterd maar de hoeveelheid over de bodem uitgespreide dierlijke mest is sterk toegenomen. Micro-organismen die bijvoorbeeld maag-darmstoornissen veroorzaken worden in grote aantallen uitgescheiden in de uitwerpselen (bacteriën 10^5 - 10^6 /g; virussen 10^6 - 10^9 /g; protozoa 10^5 /g) (Medema, 1990). De overleving van ziekteverwekkende micro-organismen in de bodem wordt sterk bepaald door de activiteit van de autochtone micro-organismen ter plaatse. Door predatie van Protozoa, Nematoda of andere organismen kunnen pathogene micro-organismen direct verwijderd worden. Daarnaast verhongeren pathogenen doordat de autochtone microflora veel van de noodzakelijke voedingsstoffen wegneemt. Tenslotte kunnen stoffen met antimicrobiële activiteit gevormd worden door schimmels, actinomyceten en andere micro-organismen [Gerba and Bitton, 1984]. In de praktijk blijkt dat de overleving van ziekteverwekkers in bodem en grondwater het kortst is onder omstandigheden waarbij de micro-organismen het best gedijen, zoals een hoge temperatuur, een goede vochtigheid en een goede aeratie van de bodem. Voor *Escherichia coli* bijvoorbeeld, varieert de tijd nodig voor een afname met 90% van 3 dagen 's zomers tot 20 dagen in de winter (Medema, 1990). Hierdoor kan het maanden duren eer de bacteriën in zodanig lage aantallen aanwezig zijn dat er geen besmetting meer kan optreden.

3.1 Omzettingen van natuurlijke verbindingen

Zowel natuurlijke verbindingen als milieuvreemde verbindingen kunnen de chemische waterkwaliteit negatief beïnvloeden. De bodemmicroflora kan een grote verscheidenheid aan natuurlijke en milieuvreemde verbindingen afbreken. Een grote diversiteit van deze levensgemeenschap, opgebouwd uit populaties van verschillende soorten micro-organismen is van doorslaggevend belang voor de bodemwaterkwaliteit omdat alleen dan de afbraak van zeer veel verschillende verbindingen mogelijk is. De enorme fysiologische verschillen tussen de micro-organismen onderling, maken het mogelijk dat biotransformatie kan plaats vinden onder een groot aantal verschillende omstandigheden. Cruciale afbraakprocessen zoals bijvoorbeeld: de hydrolyse van cellulose (Ljungdahl and Eriksson, 1985), de oxydatie van lignine (Kadamand and Drew, 1986), de oxydatie van ammonia (Hankinson and Schmidt, 1984; Lang and Jagnow, 1987; Lettl, 1985; Stroo et al., 1986), of de oxydatie van methaan (Nichols, et al., 1987), kunnen slechts door een zeer klein gedeelte van de totale microflora worden uitgevoerd. Wanneer de soorten nodig voor dit proces vergiftigd zijn dan stopt de stofkringloop.

In koude klimaten vindt vaak een sterk verhoogde uitspoeling van organische verbindingen plaats bij het smelten van de sneeuw. Door de lage temperatuur van het smeltwater kunnen de organische verbindingen niet snel genoeg afbreken en bereiken deze het grondwater. Eenmaal in het grondwater komt de afbraak van organisch materiaal wel op gang door de relatief hogere temperatuur en de lange verblijftijd, de aanwezige zuurstof wordt dan snel gebruikt waardoor anaeroob grondwater ontstaat (Ghiorse and Wilson, 1988). Het uitrijden van vloeibare mest in de winter zou ook op Nederlandse zandgronden anaerobe condities in het grondwater kunnen veroorzaken hetgeen consequenties heeft voor de biodegradatie en voor de overleving van de daar aanwezige grondwaterfauna. Wanneer enige tijd na het uitrijden van de mest het grondwater weer aerob geworden is zal het lang duren voordat rekolonisatie van de grondwaterfauna plaats vindt. De stofkringlopen, bijvoorbeeld van koolstof, stikstof, zwavel en fosfor worden door biologische processen in stand gehouden en kunnen ontregeld raken wanneer een stap door menselijke invloed verstoord wordt. Dat

natuurlijke verbindingen ook effecten kunnen hebben op de bodemwaterkwaliteit blijkt duidelijk uit de problematiek van de overbemesting. Door gespecialiseerde micro-organismen worden stikstofhoudende organische stoffen zoals ureum in varkensmest of urinezuur in kippemest omgezet in ammoniak. Deze ammoniak verdampt en slaat elders weer neer op de bodem. Het basische ammoniak wordt door nitrificerende bacteriën en in zure bodems ook door schimmels, omgezet in salpeterzuur dat voor ongeveer 23% van de verzuring van de Nederlandse bodem verantwoordelijk is (Langeweg, 1988). Het nitraat uit het salpeterzuur wordt opgenomen door planten, spoelt uit naar het grondwater of wordt onder anaerobe omstandigheden omgezet naar stikstofgas. Bij dit denitrificatieproces kan N_2O gevormd worden waarvan het gehalte in de atmosfeer aan het toenemen is en dat een bijdrage zou kunnen leveren aan de aantasting van de ozonlaag (Alexander, 1989) en aan het broeikas-effect (Langeweg, 1988). Nitraat in groente en drinkwater is vooral een probleem omdat nitraat door bacteriën in de menselijke darm weer omgezet kan worden tot het giftige nitriet dat weer aanleiding kan geven tot de vorming van kankerverwekkende nitrosaminen.

Een ander voorbeeld van een natuurlijk proces dat aanleiding kan geven tot milieuproblemen is de oxidatie van pyriet. Wanneer een anaerobe (water)bodem in aanraking komt met zuurstof of nitraat kan het sulfide uit het pyriet geoxideerd worden tot zwavelzuur (Gottfreund et al., 1985; Van Bennekom and Kruihof, 1988). Dit kan leiden tot een ernstige verzuring van de bodem en het uitspoelen van zware metalen doordat metaalzouten oplossen door het zuur.

3.2 Vorming en afbraak van organisch materiaal

Het organisch materiaal in de bodem wordt voortdurend gevormd uit plantaardig en dierlijk materiaal dat op de bodem valt en daar afgebroken wordt. Het uiteindelijke gehalte aan organisch materiaal in de bodem wordt dus bepaald door de primaire produktie en de consumptie door de microflora en de fauna.

Veel milieuvreemde verbindingen kunnen sorberen aan het organisch materiaal in de bodem. De sterk sorberende verbindingen met een grote octanol-water verdelingscoëfficiënt zijn over het algemeen giftig omdat ze ook sterk aan het organisch materiaal van levende

organismen sorberen en zich ophopen in vetweefsel (van Gestel et al., 1985). Er is dan ook een lineaire relatie tussen de logaritme van de octanol-water verdelingscoëfficiënt en de logaritme uit de lethale concentratie aan gif in het water (Hermens, 1989). Dit geldt uitsluitend voor stoffen met de zogenaamde minimum toxiciteit die geen specifiek werkingsmechanisme vertonen.

Naast het gewone sorptieproces kunnen veel milieuvreemde organische stoffen tijdens het biodegradatieproces gedeeltelijk worden vastgelegd in het organisch bodemmateriaal door de vorming van het zogenaamde grondgebonden residu. Deze sorptieprocessen maken bodems met veel organisch materiaal minder kwetsbaar voor verontreiniging van het bodemwater. Zowel het gehalte aan organisch koolstof als de pH en de redox condities in de bodem worden in hoge mate bepaald door de activiteit van bodemorganismen. Daarnaast beïnvloeden de bovenstaande factoren op hun beurt in hoge mate de bodembioologische processen. We zien dan ook dat in bodems waar de biologische activiteit beperkt is vaak een ophoping van organisch materiaal plaatsvindt. De bodems in koude klimaatzones bevatten dan ook meer organisch materiaal dan die in de tropen.

Een ander voorbeeld zijn de veengronden waar de afbraak van organisch materiaal stopt door de afwezigheid van zuurstof en de lage pH. Onder anaerobe omstandigheden wordt organisch materiaal afgebroken tot organische zuren zoals azijnzuur en mierzuur waardoor de bodem in principe steeds zuurder wordt. Wanneer methaanvormende bacteriën aanwezig zijn kunnen deze zuren verder afgebroken worden tot methaan waardoor geen ophoping van zuren plaatsvindt en dus geen verzuring optreedt. Wanneer de bodem al verzuurd is kunnen methaanvormende bacteriën niet functioneren omdat deze organismen zonder uitzondering gevoelig zijn voor een lage pH (Williams and Crawford, 1985). Op deze manier kan een tijdelijke vergiftiging van een anaerobe bodem, waardoor de methaanvormende bacteriën verdwijnen, leiden tot een irreversibele verzuring.

3.3 Bodemstructuur

De structuur van de bodem wordt in belangrijke mate beïnvloed door de activiteit van bodemorganismen. De fragmentatie van de strooisellaag wordt vooral door verschillende bodemdieren zoals mijten, springstaarten, insectenlarven, miljoenpoten, pissebedden en

regenwormen uitgevoerd. Daarnaast zorgen vooral wormen voor het mengen van de bovenste laag waardoor het organische materiaal beter verspreid wordt en het sorptievermogen juist vergroot wordt. Bodemdieren en plantewortels maken verticale gangen waardoor, met name in kleigronden, kleine voorkeurstroombanen kunnen ontstaan waardoor het regenwater snel naar het grondwater kan stromen zonder dat er belangrijke sorptie van verontreinigingen optreedt (Kooistra, 1986). Het organisch materiaal in de bodem zorgt ook voor het aaneenkleven van bodemdeeltjes waardoor een kruimelige structuur ontstaat die goede aeratie mogelijk maakt.

3.4 Biodegradatie milieuvreemde verbindingen

De afbraak van milieuvreemde verbindingen vraagt vaak om de aanwezigheid van zeer gespecialiseerde micro-organismen die alleen of in onderlinge samenwerking een stof geheel kunnen afbreken. Bepaalde hooggechloreerde organische verbindingen kunnen in afwezigheid van zuurstof en nitraat in het grondwater afgebroken worden tot moleculen met minder chlooratomen via de zogenaamde reductieve dehalogenering (Van Beelen, 1990). Deze lager gechloreerde verbindingen kunnen onder aerobe omstandigheden afgebroken worden waarbij de overeenkomstige hooggechloreerde verbindingen vaak persistent zijn. Wanneer een verbinding onder bepaalde bodemcondities (bijv. 's winters in een zure grond) niet meer afgebroken wordt dan kan dat aanleiding geven tot een verhoogde uitspoeling.

3.5 Concentratie milieuvreemde verbindingen

Voor de afbraak van xenobiotische organische verbindingen in bodem en grondwater is de concentratie van de stof van groot belang. Bij zeer hoge concentraties van een verontreiniging kunnen toxische effecten de afbraak van een goed afbreekbare stof vele jaren vertragen (Pignatello, 1987). Ook kan de groei van de voor de afbraak noodzakelijke microflora beperkt worden doordat zuurstof, stikstof, sulfaat, fosfaat, ijzer of andere noodzakelijke nutriënten volledig verbruikt worden. Daarnaast vormt de beschikbaarheid van de stof vaak een probleem doordat grote klonten van een stof slechts langzaam in het bodemwater oplossen en dus ook slechts langzaam afgebroken kunnen worden. Bij landfarming projecten probeert men deze factoren te verbeteren door ploegen, bijmesten en

het uitspreiden van de bodem over een groter oppervlak voor een betere beluchting.

Bij lagere concentraties van biologisch afbreekbare verbindingen in het bodemwater kan in principe een snelle afbraak plaats vinden wanneer de bodem geadapteerd is aan de verontreiniging. Na een adaptatieperiode die enige uren tot zelfs vele maanden kan duren groeit er een populatie die de stof snel kan afbreken (Wiggins, et al., 1987; Spain and Van Veld, 1983; Pfaender, et al., 1985). Dit heeft tot gevolg dat de afbraak van dezelfde stof in dezelfde bodem onder identieke omstandigheden enige maanden kan duren of enige uren afhankelijk van het feit of er al een eerdere blootstelling aan de stof heeft plaats gevonden.

Bij concentraties lager dan nodig voor de groei van micro-organismen (ongeveer 0,1 mg/l, afhankelijk van de stof en de microflora), kan geen adaptatie meer optreden (Kobayashi and Rittmann, 1982). Immers een organisme dat de specifieke stof kan afbreken heeft dan geen selectief voordeel meer boven andere organismen die dat niet kunnen. Onder deze omstandigheden is de afbraak dan ook afhankelijk van de aanwezigheid en de capaciteit van de aanwezige autochtone microflora (Van Beelen, 1990). De afbraak volgt dan vaak de zogenaamde eerste orde kinetiek waarbij de stof met een bepaalde halfwaardetijd wordt afgebroken. Dit heeft tot gevolg dat de absolute afbraaksnelheid steeds verder afneemt naarmate de concentratie lager wordt (Simkins and Alexander, 1984). Om deze reden zijn heel veel, in principe goed afbreekbare, verbindingen toch met een lage concentratie meetbaar in bodem en water.

Daarnaast worden veel xenobiotische stoffen gesorbeerd aan de vaste fase van de bodem waardoor de concentratie in de bodem wel groot kan zijn maar de concentratie in het bodemwater juist erg klein.

Resumerend kan gesteld worden dat biologische afbreekbaarheid geen stoffeigenschap is maar een combinatie van milieu- en stoffeigenschappen. Er moet dan ook voor gewaakt worden om een QSAR voor de biodegradatie van stoffen te gebruiken voor andere bodems of voor andere omstandigheden dan waarvoor de QSAR is opgesteld.

Peter Doelman zal in zijn lezing het directe effect van de microflora op de bodemwaterkwaliteit aan de hand van enkele "case studies" verder toelichten.

REFERENTIES

- ALEXANDER, M.; 1989. Microbial ecology in a world under environmental stress. In: Hattori, T., Ishida, Y., Maruyama, Y., Morita, R. and Uchida, A. (eds.). Recent advances in microbial ecology: 3-10. Japan Sci. Soc. Press.
- VAN BEELEN, P.; 1990. Degradation of organic pollutants in groundwater. *Stylogia* (in press).
- VAN BENNEKOM, C.A. and KRUIHOF J.C.; 1988. Kwantificering van verzurende processen in het grondwater. *H₂O* 21: 252-274.
- VAN GESTEL, C.A.M., OTERMANN, K. and CANTON J.H.; 1985. Relation between water solubility, octanol/water partition coefficients, and bioconcentration of organic chemicals in fish: a review. *Regul. Tox. and Pharmacol.* 5: 422-431.
- GERBA, C.P. and BITTON, G.; 1984. Microbial pollutants: their survival and transport pattern to groundwater. In: BITTON, G. and GERBA, C. P. (eds.). *Groundwater pollution microbiology*: 65-88. John Wiley and sons New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore.
- GHIORSE, W.C. and WILSON, J.T.; 1988. Microbial ecology of the terrestrial subsurface. *Advan. Appl. Microbiol.* 33: 107-172.
- GOTTFREUND, E., GOTTFREUND, J., GERBER, I., SCHMITT, G., and SCHWEISFURTH, R.; 1985. Occurrence and activities of bacteria in the unsaturated and saturated underground in relation to the removal of iron and manganese. *Wat. Supply*, 3: 109-115.
- HANKINSON, T.R. and SCHMIDT, E.L.; 1984. Examination of acid forest soil for ammonia- and nitrite-oxidizing autotrophic bacteria. *Can. J. Microbiol.* 30: 1125-1132.
- HERMENS, J. L. M.; 1989. Quantitative structure-activity relationships of environmental pollutants. In: Hutzinger, O. (ed.). *Handbook of environmental chemistry*, vol 2E; Reactions and Processes: 111-162. Springer Verlag Berlin.
- KADAM, K.L. and DREW, S.W.; 1986. Study of lignin biotransformation by *Aspergillus fumigatus* and white-rot fungi using C-labeled and unlabeled kraft lignins. *Biotechnol. Bioengineer.* 28: 394-404.
- KOBAYASHI, H. and RITTMANN, B.E.; 1982. Microbial removal of hazardous organic compounds. *Environ. Sci. Technol.* 16: 171-183.

- KOOISTRA, M.J.; 1986. Invloed van de bodemfauna op de bodemkwaliteit; een micromorfologische benadering. *Vakbl. Biol.* 66: 74-77.
- LANG, E. and JAGNOW, G.; 1987. Fungi of a forest soil nitrifying at low pH values. *FEMS Microbiol.Ecol.* 38: 257-265.
- LANGEWEG, F. (ed.); 1988. *Zorgen voor morgen: 1-456.* Samsom H. D. Tjeenk Willink Alphen aan de Rijn.
- LETTL, A.; 1985. Heterophic nitrifying bacteria in acid forest soils polluted by atmospheric SO. *Folia Microbiol.* 30: 509-516.
- LJUNGDAHL, L.G. and ERIKSSON, K-E; 1985. Ecology of microbial cellulose degradation. In: Marshall, K C. (ed.). *Avances in Microbial ecology* 8: 237-279. Plenum Press New York and London.
- MEDEMA, G.J.; 1990. *Handboek voor milieubeheer. Deel 4 bodembescherming. H. 4.5.1. Ziekteverwekkende micro-organismen in bodem en grondwater. (in druk).*
- NICHOLS, P.D., HENSON, J.M., ANTWORTH, C.P., PARSONS J., WILSON, J.T., and WHITE, D.C.; 1987. Detection of a microbial consortium, including type II methanotrophs, by use of phospholipid fatty acids in an aerobic halogenated hydrocarbon-degrading soil column enriched with natural gas. *Environ. Tox. Chem.* 6: 89-97.
- PFAENDER, F.K., SHIMP, R.J. and LARSON, R.J.; 1985. Adaptation of estuarine ecosystems to the biodegradation of nitrilotriacetic acid: effects of preexposure. *Environ. toxicol. chem.* 4: 587-593.
- PIGNATELLO, J.J.; 1987. Microbial degradation of 1:2-dibromoethane in shallow aquifer materials. *J. Environ. Qual.* 16: 307-312.
- SIMKINS, S. and ALEXANDER, M.; 1984. Models for mineralization kinetic with the variables of substrate concentration and population density. *Appl. Environ. Microbiol.* 47: 1299-1306.
- SPAIN, J.C. and VAN VELD, P.A.; 1983. Adaptation of natural microbial communities to degradation of xenobiotic compounds. Effects of concentration, exposure time, inoculum and chemical structure. *Appl. Environm. Microbiol.* 45: 428- 435.
- STROO, H.F., KLEIN, T.H. and ALEXANDER, M.; 1986. Heterotrophic nitrification in an acid forest soil and by an acid-tolerant fungus. *Appl. Environ. Microbiol.* 52: 1107-1111.

- WIGGINS, B.A., JONES, S.H. and ALEXANDER, M.; 1987. Explanations for the acclimation period preceding the mineralization of organic chemicals in aquatic environments. *Appl. Environ. Microbiol.* 53: 791-796.
- WILLIAMS, R.T. and CRAWFORD R.L.; 1985. Methanogenic bacteria, including an acid-tolerant strain from peatlands. *Appl. Environ. Microbiol.* 50: 1542-1544.

MICROBIAL DEGRADATION OF HEXACHLOROCYCLOHEXANE ISOMERS IN MINERAL SOIL AND OF ENDOSULFAN ISOMERS IN ORGANIC SOIL IN CONNECTION WITH SOIL AND WATER QUALITY; ECOTOXICOLOGICAL RESEARCH

P. Doelman

ABSTRACT

Pollution of soils and sediments with chlorinated organic compounds contains an environmental risk to human health but at an earlier stage towards the biotic part of those soil and sediment ecosystems. As pilot-study a field experiment was carried out to establish whether in temperate climates the microbial degradation of hexachlorocyclohexane isomers in mineral soil occurs at a rate suitable for the practical application of soil sanitation. Simultaneously the development, or recovery, of the microbial soil community was studied by measuring microbial biomass, respiration and glutamic acid decomposition. Under laboratory conditions, as feasibility study, the decomposition and detoxification of endosulfan pollution in organic sediment was investigated under aerobic and anaerobic conditions. The detoxification of the sediment ecosystem was determined by chemical analysis of endosulfan metabolites and by studying the toxicity towards biological parameters of the solid and the liquid phase separately. In the solid phase the mortality and weight loss of an earthworm population, soil respiration and glutamic acid decomposition was studied. In the liquid phase the mortality of fishes and waterfleas was studied.

From the approximately 10.000 sites of soil contaminated with organic chemicals in the Netherlands about 100 are known to be polluted with mainly isomers of hexachlorocyclohexane (HCH). During manufacture only 14% of the HCH formed was the γ isomer (lindane). The remaining 86%, consisting of mainly α -HCH (ca 70%), β -HCH (circa 7%) and δ -HCH (circa 7%), was often illegally dumped, sometimes at depths of 6 meters, at several locations.

At low concentrations Jagnow et al. (1977) reported fast degradation of the γ and α isomer and slight degradation of the β and δ isomer at high temperature (25°C) under anaerobic conditions. Degradation was also found under aerobic and semi-aerobic conditions. Literature data on degradation of HCH at extremely high concentration, as occurs in waste dump situations, were not available.

Earlier studies within the framework of investigations into the possible microbial degradation of the industrial waste included laboratory experiments (Doelman et al., 1985; Bachmann et al., 1988), small scale glasshouse experiments (Doelman et al., 1988a) and field experiments (Doelman et al., 1988b). In this pilot-study the main aim was to test whether conclusions from earlier investigations were applicable to scaled-up field experiments. Since Bachmann et al., (1988b), studying the same soil, showed a much faster mineralization of α -HCH in slurry systems we applied a concrete mixer (betonmolen) for scaling up thin soil-slurry experiments and plastic containers for thick soil-slurry experiments. In addition to the disappearance of the chemical compounds we were interested in the biological recovery during that process; in this stage restricted towards microbiological features. Therefore during the course of the study the total microbial community, soil respiration as mirror of the general microbial activity and glutamic acid decomposition was determined. The latter since it was a sensitive measure of heavy metal pollution in soil (Haanstra and Doelman, 1984). Here it was checked whether this test was also useful for soils polluted with chlorinated organic compounds. Furthermore the size of the α -HCH degrading microbial community was determined since quantitative data on this were not available in literature.

The other case-study concerns endosulfan pollution. The intensive use of pesticides in culturing *Agaricus bisporus* mushrooms ultimately resulted in an endosulfan concentration above the legally accepted level; the value of 10 mg/kg soil has been defined as the limit. Above that level research has to be carried out whether this soil should be treated for cleaning (sanitation). So the question was raised whether this polluted organic ditch-sludge could be sanitized by the autochthonous microbial soil community; can microbial degradation of endosulfan be an option for detoxification of this organic ditch-sediment (Doelman et al., 1988c).

Soil and water pollution with endosulfan had been recorded before. A massive fish kill taking place in the Rhine river, recorded by the Dutch authorities on June 23, 1969, due to endosulfan (Greve and Wit, 1971) inspired Martens (1976, 1977) to study the microbial decomposition of endosulfan in 7 mineral soils from which the pH varied between 4,2 and 5,7 while the organic matter contents varied between 0,3 and 4%. Under aerobic as well as under anaerobic conditions the half life time of α - and β -endosulfan varied between 10 and 175 days and 400 and 800 days respectively. Similar results in similar soil types were obtained by Miles and Moy (1979). Data on microbial degradation in soils with a high organic matter content (79% in this study) have not been published. Moreover no literature data is available on the simultaneous toxicity of metabolites in soil or sediment. Therefore we fancy to provide new data. The toxicity of the solid and the liquid phase was studied separately at the same time. The former was studied by testing the development of earthworm population *Eisenia foetida* and the activity of microbial soil community by respiring glutamic acid, as done in the HCH experiments. The latter was studied by measuring the mortality of fishes (*Poecilia reticulatus*) and waterfleas (*Daphnia magna*). Functioning of a restricted number terrestrial and aquatic parameters does not necessarily imply riskless and natural functioning of an ecosystem; it is a tentative approach towards ultimately measuring its function with a broad spectrum of parameters.

2 MATERIALS AND METHODS

The soil for the HCH experiments was collected from a HCH-polluted site (Oldenzaal, the

Netherlands), where it had been stored for six years wrapped in plastic foil and covered by a 30 cm layer of soil. The HCH was very heterogeneous in the soil, therefore the soil (6 m³) was sieved through a mechanical 10 mm sieve. Watercontent at fieldcapacity is 14-18%.

The endosulfan polluted sediment was derived from the bottom of ditches in "De Bommelerwaard" (the Netherlands). The water saturated sediment was collected while the water temperature was 5° C. This sediment was spread out on plastic foil and gradually dried till a moisture content of 50%, which is about field capacity. The soil (circa 100 kg) was sieved through a 5 mm sieve and homogenized. Physico/chemical properties of the soils are given in Table 1.

Due to the poor nutritional status the HCH soil was enriched with NPK fertilizer (20 kg). The soil was placed on thick PVC foil (0,45 mm) in concrete containers (140 x 110 x 40 cm). A part of the soil was placed in PVC tubes (110 x 90 cm dia); this soil was called slurry since the moisture content was brought to 50%.

The factors studied in the HCH experiments were aeration, temperature and cultivation. The following treatments were made: 1) soil, untreated; 2) soil, covered with black plastic foil; 3) soil, cultivated; 4) soil, cultivated and covered; 5) soil, aerated; 6) soil, electric heated and aerated; 7) slurry, untreated; 8) slurry, aerated; 9) slurry, aerated and stirred; 10) slurry, aerated, stirred and covered.

Sampling took place at the start of the experiment, after 4, 7(8), 11, 14(15), 18 and 22 (23) weeks. From the samples the α - and β -HCH content was determined as well as the total number of micro-organisms, the number degrading α -HCH in the presence and absence of yeast extract, the number degrading benzoic acid, soil respiration and the glutamic acid decomposition rate. The procedure of these measurements were earlier described (Doelman et al., 1990).

The thin-slurry experiment was performed in a concrete mixer (betonmolen), placed in a greenhouse within a wooden box to avoid noise disturbance for the neighbourhood. The slurry temperature varied between 17 and 24° C. 3 kg of soil and 27 l water enriched

Table 1 Physico/chemical properties of the soils studied.

	HCH-soil	Endosulfan-sediment
pH-H ₂ O	7,6	7,1
Organic matter content (% of d.w.)	1,0	46,1
CaCO ₃ content (% of d.w.)	30,0	8,0
Nitrogen (total % of d.w.)	0,04	2,8
Phosphorus (total % of d.w.)	0,002	3,6
K-total (mg/kg of d.w.)	2,58	2200
Alpha HCH (mg/kg of d.w.)	367	n.d
Beta HCH (mg/kg of d.w.)	280	n.d
Alpha Endosulfan (mg/kg of d.w.)	n.d.	15,0
Beta Endosulfan (mg/kg of d.w.)	n.d.	12,5
Extrac. org. chlorides (mg/kg of d.w.)	n.d.	50,0

n.d. = not determined

d.w. = dry weight

with mineral salts (Bachmann et al., 1988a) were continuously in motion due to the rotation (20 rpm) of the mixer. Daily samples were taken, treated and stored for chloride measurements as carried out by Bachmann et al., (1988b).

The experimental factors studied in the endosulfan sediment were temperature, aeration, glucose, urea, norbornene anhydride, Winogradsky solution and sterilization (Doelman et al., 1988c). Except for sterilization the factors hardly discriminated. Therefore the main factor described in this presentation will be aeration and sterilization. The latter was done by gamma-radiation at 2,5 M rad (Gammaster, B.V., Ede, the Netherlands). The experiments were carried out in 1,5 l glasscontainers. Unless stated otherwise every set of experiments has been started in 12-fold. Every 2 weeks a duplicate set was analyzed on α -endosulfan (AE), β -endosulfan (BE), endosulfan-sulphate (ES), endosulfan-ether (EE), endosulfan-lactone (EL). In the solid phase the development of the earthworm *Eisenia foetida*, after a residence time of 6 weeks in the soil investigated, was determined as described by Gestel

and Ma (1988) and the glutamic acid decomposition rate (the moment at which the respiration rate is maximal) as described by Haanstra and Doelman (1984). From the liquid phase the mortality of *Poecilia reticulatus* and *Daphnia magna* was determined as suggested by OECD procedure. The former test was carried out by four weeks old fishes, incubating for 96 hours in the liquid investigated. The latter was done by young (age less than 24 hours) waterfleas, incubating for 48 hours in the liquid (or diluted with a Taub-solution) studied.

To determine the endosulfan isomers 5 g of soil (d.w.) plus 5 ml NH₄Cl (250 g/l) plus 20 ml hexane/acetone (1 : 1) was shaken for 4 hours. The hexane/acetone fraction was used for determination in the GC. Endosulfan determination in the waterfraction was determined by shaking for 2 minutes 10 ml solution plus 5 ml NH₄Cl solution plus 5 ml hexane. Relevant gas-chromatographic conditions are: glass column 3 m, dia 4 mm with 2% OV-17, 5% QF-1 on GC-Q, temperature of oven 225° C, carrier gas N₂ (45 ml/min.) make up N₂ (15 ml/min.). Soil and water samples were mostly diluted with hexane, respectively 400 and 10 x.

3 RESULTS AND DISCUSSION

Immediately after digging and sieving the soil the β -HCH concentration was 280 ± 25 mg/kg. During the course of the experiment in all treatments the β -HCH concentration remained relatively constant. The α -HCH concentration was 367 ± 60 mg/kg and decreased in the soil systems to circa 100 mg/kg in 23 weeks (Fig 1). Aeration nor cultivation contributed to further degradation. The differences between the various soil treatments were small. In general the soil temperature did not differ much between covered and uncovered soil.

The degradation of α -HCH in the aerated slurries was similar as in soil but gradually continued towards circa 60 mg/kg (Fig. 2). In the anaerobic slurry degradation of the α -component did not occur as experienced earlier (Doelman et al., 1988a; Bachmann et al., 1988a).

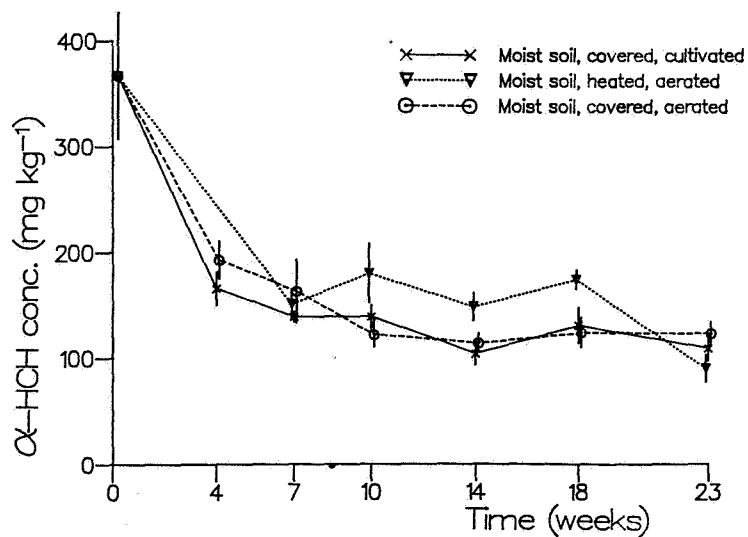
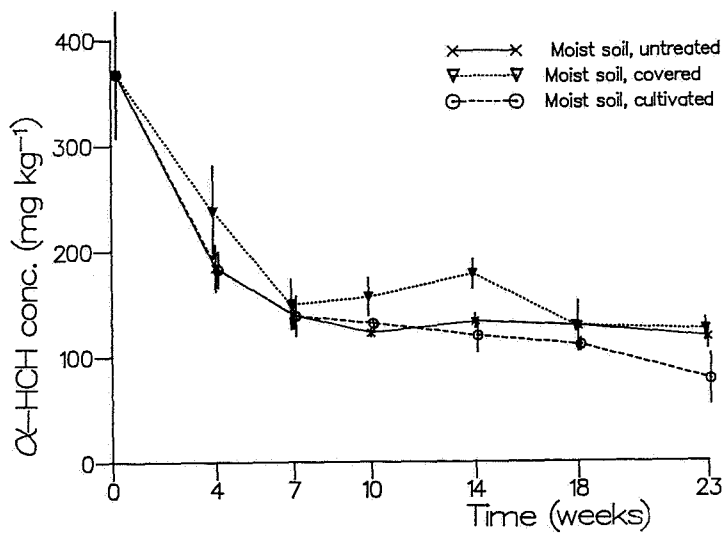


Figure 1 Effect of field incubation on α -HCH concentrations in six different soil treatments

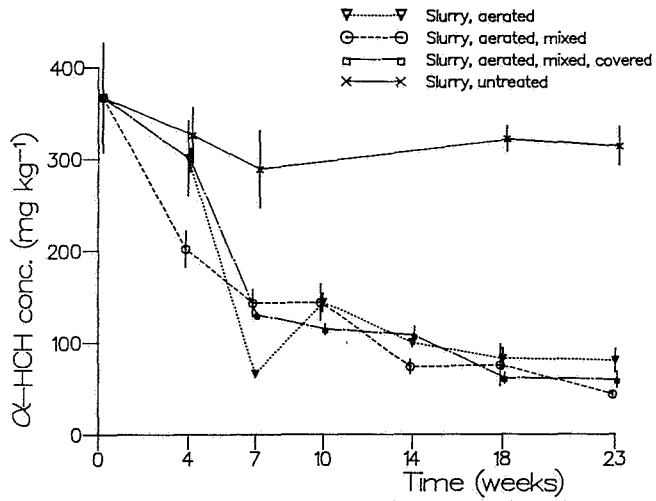


Figure 2 Effect of field incubation on α -HCH concentrations in four different slurry treatments

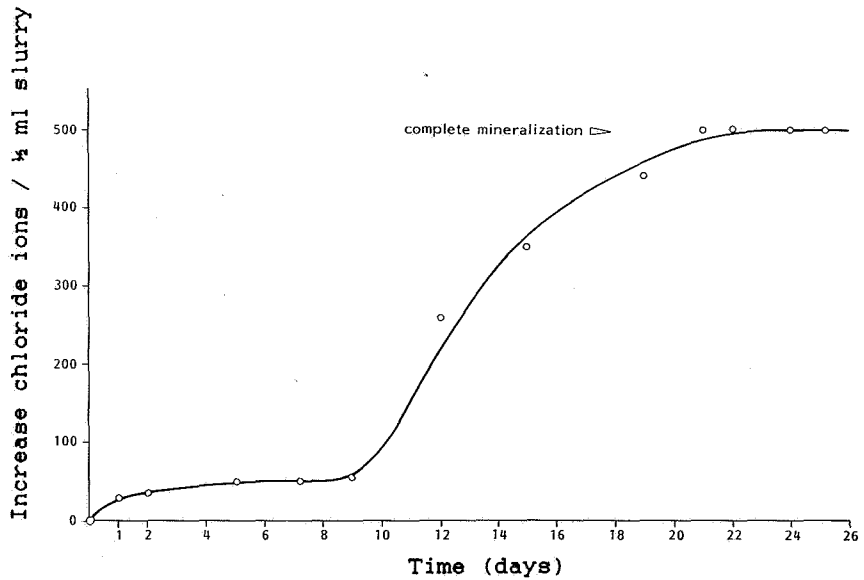


Figure 3 The mineralization of α -HCH, measured by an increase of chloride ions in the solutions, in a concrete mixer (betonmolen)

The degradation of α -HCH in the concrete mixer was complete, according to the number of chlorides freed by dehalogenation (Figure 3). This was confirmed by measuring at the end of the experiment the HCH concentration of the isomers α -, β -, γ - and δ -HCH being 5, 260, 3 and 13 mg/kg respectively. From an engineering point of view the concrete mixer is most feasible for cleaning up soil polluted with α -HCH, due to homogeneity, oxygen and nutrient.

In Figure 4 (soil) and 5 (slurry) the total number of micro-organisms (T), the number of aromatic compound decomposers (A) and the number of HCH decomposers in absence (H) and in the presence of yeast extract (HY) are given. The total number of micro-organisms hardly varied, neither in soil nor in slurry, during the experiment ($4 \cdot 10^7$ - $5 \cdot 10^8$ /g.). The number growing on benzoic acid also remained more or less constant ($4 \cdot 10^6$ - $2 \cdot 10^7$). So the total HCH concentration did not affect the numbers of micro-organisms. The number of α -HCH degraders increased from 10^3 (more or less the autochthonous or adapted community during storage) to 10^7 /g. More α -HCH degrading organisms were counted in the absence of yeast extract, which was also observed by Bachmann et al., (1988b). The numbers mainly increased during the first 8 weeks of the experiment in which the degradation was strongest. For slurry similar results were produced.

In Figure 6 soil respiration as the average and over-all activity of the soil microflora is given. Due to degradation of HCH we expected an increase in respiration, which slightly shows. In Figure 7 glutamic acid decomposition is given in relation to the α -HCH decrease in the soils. After 4 weeks the microflora needed 70-80 hours to reach the maximal respiration rate of glutamic acid decomposition. After 11 weeks this time was reduced to ca 40 hours. So the decomposition rate increased, reflecting a detoxification towards this microbial community. In the concrete mixer these data were not determined.

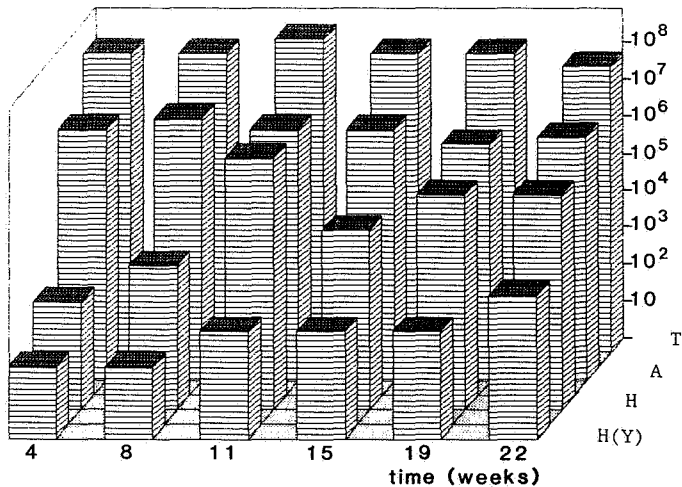


Figure 4 Total number of micro-organisms, number of aromatic and number of α -HCH decomposers in soil during time (T = total number; A = number aromatic decomposers; H = number α -HCH decomposers on mineral medium + α -HCH; H(Y) = number α -HCH decomposers on mineral medium + yeast extract + α -HCH)

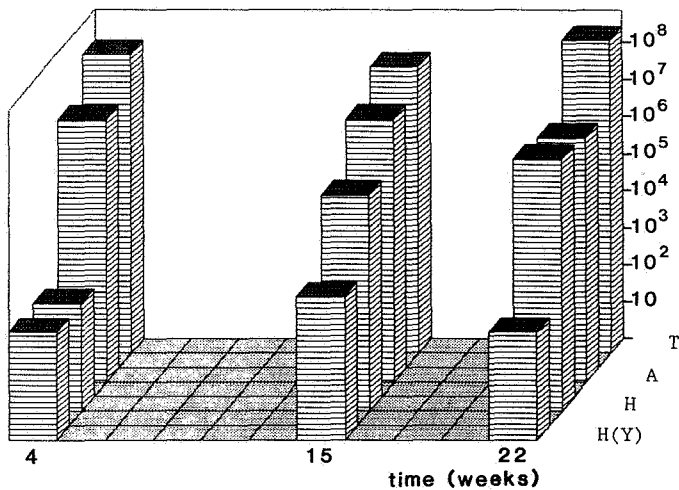


Figure 5 Total number of micro-organisms and number of aromatic and α -HCH decomposers in slurry during time (T = total number; A = number aromatic decomposers; H = number α -HCH decomposers on mineral medium + α -HCH; H(Y) = number α -HCH decomposers on mineral medium + yeast extract + α -HCH)

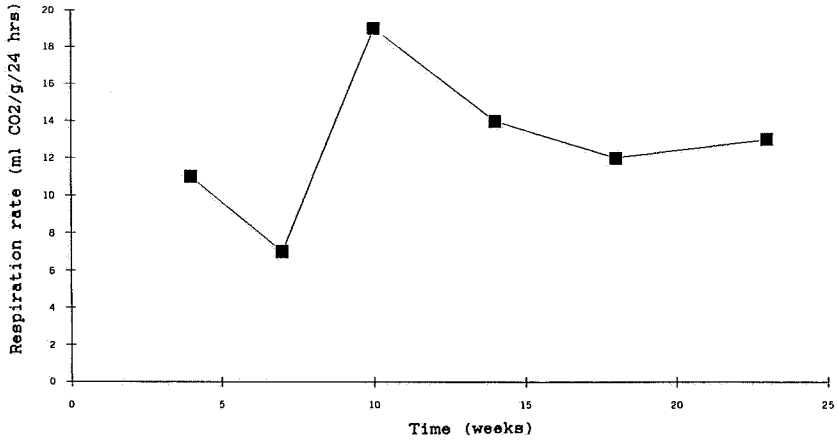


Figure 6 Effect of field incubation on the average respiration rate (ml CO₂/g/24 hrs) of the soil treatments

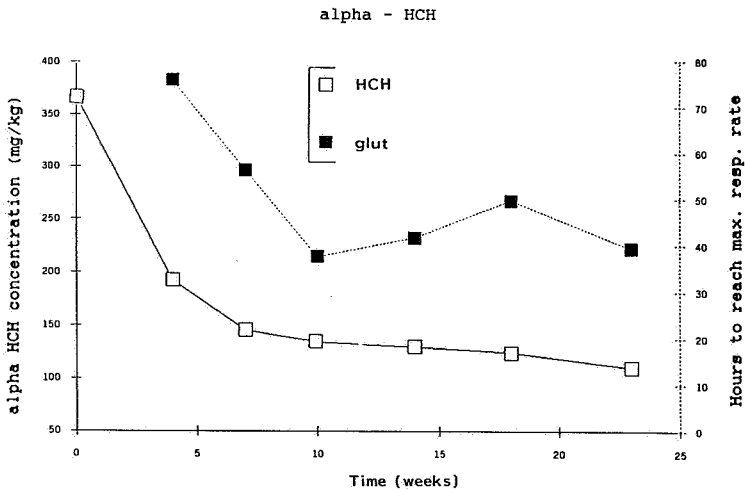


Figure 7 Effect of field incubation on the time the maximal respiration rate is obtained after addition of glutamic acid to soil treatments, in relation to the average α -HCH decrease

From sterilization experiments on the endosulfan soil it could be derived that during a period of 12 weeks chemical hydrolysis and possibly photolysis may account for ca 20% of the disappearance of α - and β -endosulfan.

In Figure 8 is given the course of the various endosulfan isomers, under aerobic conditions at a temperature of 25° C. The decrease of α - and β -endosulfan corresponds with an increase in endosulfan sulphate.

In Table 2 is given the reaction of the earthworm population *Eisenia foetida*, after a residence time of six weeks in that soil, and of the microbial community, respiring glutamic acid.

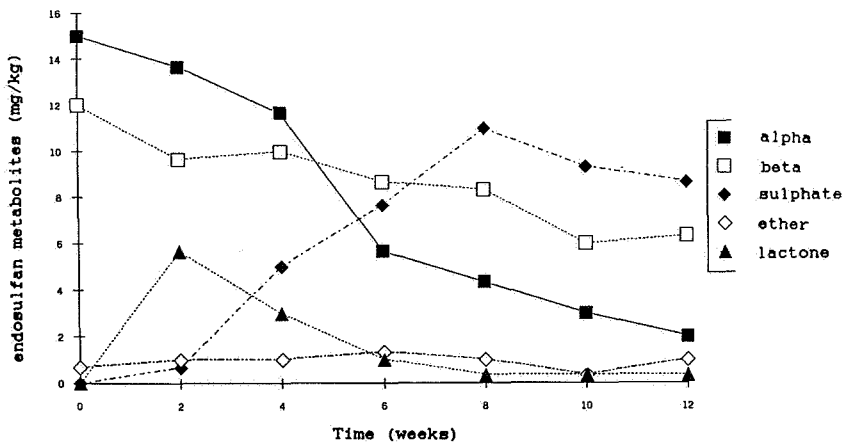


Figure 8 Effect of time on the aerobic decomposition of endosulfan

Table 2 The influence of the aerobic incubation on the toxicity of the soil towards mortality and weight loss of the earthworm population *Eisenia foetida* and the time of the maximal respiration rate after addition of glutamic acid.

Weeks	0	2	4	6	8	10	12
Earthworms							
Mortality (%)	12	6	0	0	6	16	6
Weight loss (%)	29	22	3	19	11	14	5
Microflora							
Max. resp. rate (hr)	16	nd	nd	nd	20	18	20

For the earthworm population the toxicity of the solid phase was high in the beginning: mortality of 12% and also a weight loss of 29% of the survivors, while in the control (a similar soil, but unpolluted) no mortality occurred and the average weight gain was 6%. The toxicity reaction towards the earthworm population is irregular: no mortality after 4 and 6 weeks decomposition time but 16% mortality after 10 weeks. After 10 weeks the concentration α - and β - endosulfan has been reduced from 15 till 4 and from 12 till circa 7 mg/kg respectively; the endosulfan sulphate concentration increased during that period to ca 10 mg/kg. The combination of the metabolites apparently causes a significant mortality. For the microbial community no visible toxicity seems to exist. The decomposition rate of glutamic acid is extremely fast, apparently to the high nutrient status of this polluted soil.

In Figure 9 is given the decomposition of endosulfan under anaerobic conditions at 25° C. The results are similar as under aerobic conditions although the endosulfan sulphate production is lower.

In Table 3 is given the reaction of the earthworm population and the microbial community in the solid phase of that soil and of *Pecilia reticulatus* (after a residence time of 96 hours) and of *Daphnia magna* (residence time of 48 hours) in the liquid phase of that soil.

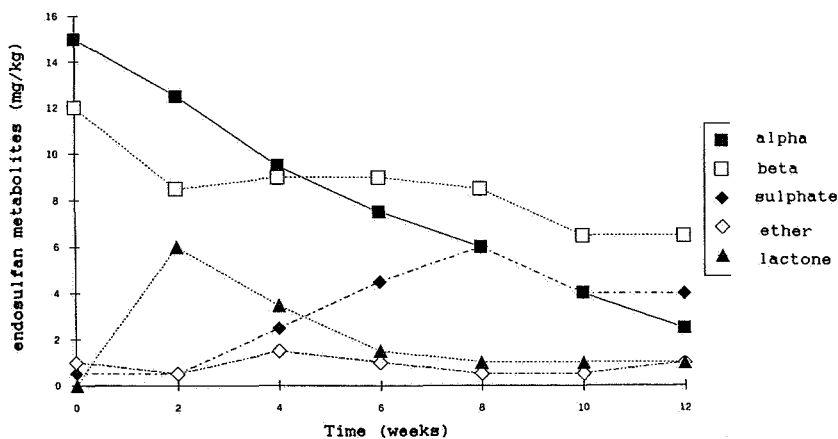


Figure 9 Effect of time on the anaerobic decomposition of endosulfan

Also after decomposition under anaerobic condition the toxicity towards the earthworm population is irregular; a low mortality in the fourth and tenth week of incubation and a distinct higher mortality before and the second and eighth week of incubation, while the chemical disappearance of AE and BE and appearance of ES is rather regular. For the microflora endosulfan toxicity does not seem to exist. Considering the mortality of fishes and fleas after 12 weeks of decomposition the toxicity is significantly higher than before anaerobic incubation.

In Figure 10 is given the decomposition pattern of endosulfan in slurry in the concrete mixer. Both AE and BE decrease to circa 1 mg/kg in that period of seven weeks. ES and EE increase from 0 to 8 and 4 mg/kg respectively. The toxicity towards the earthworm population was only measured in the beginning and at the end of this experiment.

Table 3 The influence of anaerobic incubation on the toxicity of the solid and liquid phase towards on one side an earthworm population and the microbial community and on the other side the mortality of fishes and waterfleas.

Week	0	2	4	6	8	10	12
Solid phase							
Earthworms							
Mortality (%)	12	14	3	nd	12	6	9
Weight loss (%)	29	21	9	nd	19	nd	21
Microflora							
Max. resp. rate (hr)	16	17	nd	nd	19	nd	21
Liquid phase							
Fishes							
Mortality (%)	50	0	50	nd	75	nd	100
Waterfleas							
Mortality (%)	20	60	nd	60	nd	20	60

The mortality decreased from 13 to 6%, while the weight loss was 29% in the beginning and 23% at the end.

In Figure 11 is given the chemical status, in part pro billion, of endosulfan metabolites, of the liquid phase in the concrete mixer. AE and BE have been disappeared after 4 weeks, while EL increased and decreased within 4 weeks; ES increased to 11 ppb after 5 weeks and remained at that level; EE strongly increased to 25 ppb after six weeks.

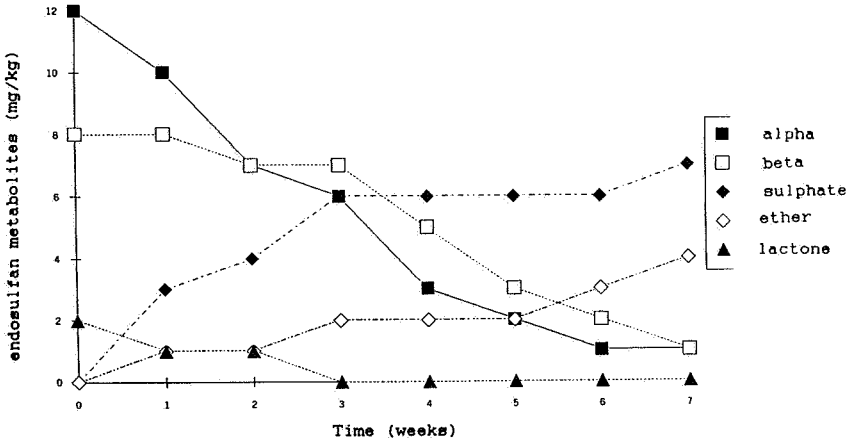


Figure 10 Decomposition of endosulfan in the concrete mixer; concentrations in the solid phase.

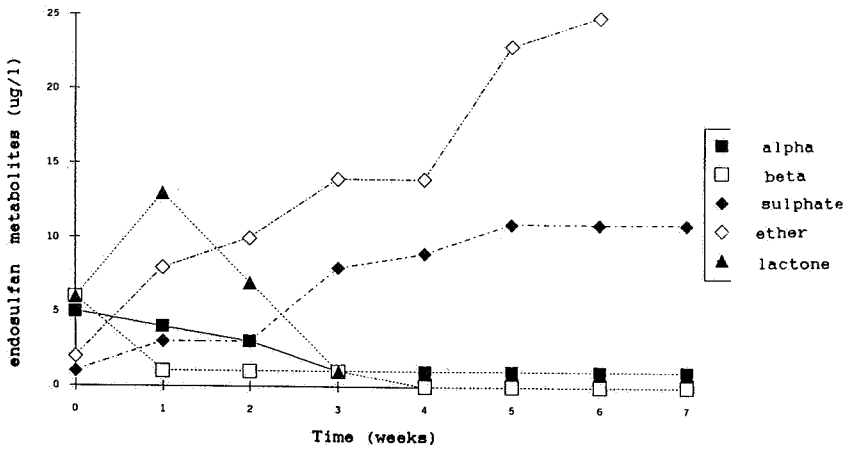


Figure 11 Decomposition of endosulfan in the concrete mixer; concentrations in the liquid phase.

The toxicity of the solid phase towards earthworms was only determined in the beginning and at the end of the experiment. The mortality has been decreased from 29 to 6%, while the average weight loss remained more or less similar (29 versus 26%).

The toxicity of the water phase, chemically defined as presented in Figure 11, was determined in the beginning, after 3 and 7 weeks. The mortality of the fishes was 50, 75 and 100% respectively, while that of the waterfleas was 20, 0 and 0% respectively. So an increase in toxicity towards the fish population and a decrease towards the flea population.

4 CONCLUDING REMARKS

The field experiment on HCH degradation did not show a degradation of β -HCH under any conditions. The α -HCH concentration did not come down to 10 mg/kg at which the soil could be regarded as clean. The glutamic acid degradation test shows a distinct recovery of the soil microbial community with regard to the glutamic acid decomposition.

The concrete mixer experiment did show a complete cleaning for α - but not for β -HCH. Going thin-slurry is the solution for α -HCH contaminated soil.

The feasibility study on endosulfan polluted organic sediment on a temperature of 25° C do show disappearance of both α - and β -endosulfan but not a disappearance of the toxicity. Although the glutamic acid decomposing community was not affected by endosulfan mortality and weight loss affected the earthworm population. Under anaerobic conditions the toxicity of the liquid phase was higher than under aerobic conditions. In the former a mortality of fishes and waterfleas of 100 and 60% respectively after 12 weeks of decomposition. In the latter a mortality of 100 and 0% respectively after 7 weeks of incubation.

The chemical analysis do show a rather regular course of the compounds measured: decrease of α - and β -endosulfan and an increase of endosulfan sulphate and in the concrete mixer of endosulfan ether. The large variety in toxicity reaction of both terrestrial and aquatic representatives appeals for many questions. Is the test material always equally sensitive? What is the toxicity of the various metabolites? In this respect it is known that for example for mice endosulfan sulfate is more toxic than α - or β -endosulfan, while endosulfan ether is much less toxic (Dorough and Gibson 1972). The simultaneous presence of the

metabolites do they act additional, antagonistic or synergistic?

A well defined and more extensive set of biological parameters seems to be necessary to check whether a soil or sediment ecosystem has been detoxified.

For the microflora also nitrification and nitrogen fixation seem well promising. For the soilfauna besides earthworms nematodes, protozoa and certain insects may be useful. For vegetation seed germination, growth and photosynthesis should be considered, while mortality, reproduction and growth are good features for soil vertebrates.

REFERENCES

- BACHMANN, A., WALET, P., WIJNEN, W., BRUIN, W. DE, HUNTJENS, J.L.M., ROELOFSEN, W. and ZEHNDER, A.J.B.; 1988a. Biodegradation of alpha- and beta-hexachlorocyclohexane in a soil slurry under different redox conditions. *Appl. Env. Microbiol.* 54: 143-149.
- BACHMANN, A., BRUIN, W. DE, JUMELET, J.C., RYNAERD, H.N.N. and ZEHNDER, A.J.B.; 1988b. Aerobic biomineralization of alpha hexachlorocyclohexane in contaminated soil. *Appl. Env. Microbiol.* 54: 548-554.
- DOELMAN, P., HAANSTRA, L. and VOS, A.; 1988a. Microbial degradation by the autochthonous soil population of alpha- and beta-HCH under anaerobic field conditions in temperate regions. *Chemosphere* 17: 481-487.
- DOELMAN, P., HAANSTRA, L. and VOS, A.; 1988b. Microbial sanitation of soil with alpha- and beta-HCH under aerobic glasshouse conditions. *Chemosphere* 17: 489-492.
- DOELMAN, P., LOONEN, H. and VOS, A.; 1988c. Ecotoxicologisch onderzoek in met endosulfan verontreinigde grond: toxiciteit en sanering. RIN rapport 88/39.
- DOELMAN, P., HAANSTRA, L., LOONEN, H. and VOS, A.; 1990. Decomposition of α - and β - hexachlorocyclohexane in soil under field conditions in a temperate climate. *Soil Biol. Biochem.* (in press!).
- DOROUGH, H.W. and GIBSON, J.R.; 1972. Chlorinated insecticide residues in cigarettes purchased in 1970-72. *Environ. Entomol.* 1: 739.

- GESTEL, C.A.M. DE and MA, WEI-CHUN; 1988. Toxicity and bio-accumulation of chlorophenols in earthworms in relation to bio-availability in soil. *Ecotox. Environ. Safety* 15: 289-297.
- GREVE, P.A. and WIT, S.L.; 1971. Endosulfan in the Rhine river. *J. Water Poll. Control Fed.* 43: 2338-2348.
- HAANSTRA, L. and DOELMAN, P.; 1984. Glutamic acid decomposition as a sensitive measure of heavy metal pollution in soil. *Soil Biol. Biochem.* 16: 595-600.
- JAGNOW, G., HAIDER, K and ELLWARDT, P.C.; 1977. Anaerobic dechlorination and degradation of hexachlorocyclohexane isomers by anaerobic and facultative anaerobic bacteria. *Arch. Microbiol.* 115: 285-292.
- MARTENS, R.; 1976. Degradation of Endosulfan by soil micro-organisms. *Appl. Env. Microbiol.* 31: 853-858.
- MARTENS, R.; 1977. Degradation of Endosulfan in soil under different conditions. *Bull. Env. Cont. Tox.* 17: 438-447.
- MILES, J.R.W. and MOY, P.; 1979. Degradation of Endosulfan and its metabolites by a mixed culture of soil micro-organisms. *Bull. Env. Cont. Tox.* 23: 13-19.

SAMENVATTING VAN DE DISCUSSIE

Door de deelnemers aan de 8e CHO-studiebijeenkomst is van te voren een veertigtal stellingen ingediend. Daar slechts 120 minuten voor de discussie beschikbaar waren en om de discussie zo veel mogelijk te structureren, heeft de discussieleider, Prof. dr. G.H. Bolt, deze stellingen samengevat tot 15 stellingen, waarin is verwerkt hetgeen door de deelnemers is aangeleverd.

Op de volgende bladzijden treft u aan de samengevatte stellingen en de samenvatting van de gevoerde discussie. Wegens tijdgebrek zijn de stellingen VIII tot en met XI tijdens de discussie niet expliciet aan de orde gesteld. De onderliggende stellingen van de deelnemers vindt u terug in de schriftelijke bijdragen - waar relevant is een verwijzing gegeven.

Tijdens de discussie is niet gestreefd naar consensus van de deelnemers met betrekking tot de beantwoording van de stellingen. Veeleer dient de weergegeven tekst te worden beschouwd als een scala van opvattingen zoals die tijdens de studiebijeenkomst naar voren kwamen. In veel gevallen lagen ze niet tegenover elkaar, maar verschilden deze opvattingen van accent.

STELLING I:

Bodemwaterkwaliteit is niet voldoende gedefinieerd als specificatie (in tijd en plaats) van $C_{s,i}$. (concentratie van de solutes in de waterige fase kan zich uitstrekken over i componenten)

In de praktijk wordt erg veel met deze specificatie gewerkt. Vaak is men al blij als concentraties als functie van tijd en plaats vastgesteld kunnen worden.

Er moet gekeken worden naar het effect dat een bepaalde bodemwaterkwaliteit heeft. Dit kan het beste worden gemeten op een biologische manier, met organismen kan bodemkwaliteit bepaald worden. Bodemwaterkwaliteit heeft zowel betrekking op het voorkomen van chemische stoffen als van organismen.

De bodemchemische waterkwaliteit geeft onvoldoende "handvatten" waarom bepaalde organismen doodgaan. Het zou kunnen zijn dat onvoldoende is vastgelegd welke chemische stoffen bepalend zijn voor deze organismen. Aangeraden wordt om ecotoxicologische toetsen te gebruiken in situaties waar weinig bekend is over welke stoffen bepalend zijn. Ecotoxicologische toetsen kunnen een relatief snelle indicator zijn.

De normstelling die het Ministerie VROM voor de bodem en het bodemwater hanteert, is niet gerelateerd aan een bepaalde doelstelling/gebruik. Het effect van bepaalde concentraties of ratio's aan stoffen op bijvoorbeeld de vegetatie/wortelstelsel na piekbelastingen is onvoldoende bekend. Het is dus moeilijk om de kritische grenzen vast te stellen van de bodemwaterkwaliteitsparameters.

Het is onmogelijk om precies de chemische samenstelling te definiëren. Er zijn zoveel metaboliëten/stoffen die nauwelijks in het water zijn te detecteren. Bovendien is de samenstelling van bodemwater een dynamisch geheel en worden er voortdurend nieuwe stoffen gemaakt. Plant, dier en mens pathogenen kunnen de bodemwaterkwaliteit beïnvloeden.

De modelbouwers richten zich bijna exclusief op het voorspellen van hoe de concentraties

van opgeloste stoffen als functie van tijd en plaats zullen variëren.

Bodemwater is in dit kader de affiltreerbare hoeveelheid water. Kwaliteit is een "interpretatie". Het is zinvol om de meetgegevens en de "interpretatie" ervan te scheiden.

STELLING II:

Inzicht en kennis van de bodemchemische processen op moleculaire en micro-schaal zijn onmisbaar voor een succesvolle aanpak van het grootschalig transport van reactieve stoffen door de bodem.

STELLING III:

Bij het onderzoek van transport van reactieve stoffen in de bodem houdt men onvoldoende rekening met het schaalprobleem.

Vaak wordt een probleem als een 'black box' aangepakt omdat er niet meer van bekend is. De eerste benadering is meestal semi-empirisch, naarmate er meer geëxtrapoléerd wordt, moet er meer bekend zijn. Al was het alleen maar om te weten, waarop gelet moet worden.

Naarmate een model gedetailleerder is, dient het steeds meer gebaseerd te worden op procesmatige kennis. De parameterisering wordt dan echter problematischer.

Op het gebied van de onzekerheidsanalyse zijn studies gedaan, waarbij men een drietal modellen heeft vergeleken, namelijk van een vrij eenvoudig tot een zeer complex model. Hieruit bleek dat de onzekerheden in het gedetailleerde model door het probleem van de parameterisering in bepaalde gevallen groter was dan in het algemene model. Brede onzekerheidsbanden zeggen nog niet alles. Onzekerheidsbanden zeggen iets van de processen zoals ze in het model zijn opgenomen en het effect van de parameters daarop. Als weinig parameters en processen worden meegenomen, dan gaat de zogenaamde onzekerheid naar beneden. Dat wil echter niet zeggen dat een simpel model met smalle onzekerheidsbanden beter is dan een complex model met brede onzekerheidsbanden.

Tijdens deze discussie staat de bodem centraal. Het is natuurlijk duidelijk dat bij vraagstukken zoals overbemesting en zure depositie niet alleen de variabiliteit van de bodem een rol speelt, maar ook de variabiliteit van de input, van de vegetatie, van de nutriënten, van de uitloogprocessen enz. Deskundigen t.a.v. elk van deze aspecten zullen zeggen dat, als er gebruik wordt gemaakt van een sterk vereenvoudigde beschrijving van een proces, dit veel te simpel is. Bijvoorbeeld in het verzuringsmodel zou elk proces nauwkeuriger beschreven kunnen worden. Er ontstaat dan echter een "monster" met duizenden parameters. Dat is niet hanteerbaar! De wetenschapper dient echter de relatieve detaillering in acht te nemen en nooit bepaalde zaken sterk te detailleren, terwijl andere zaken grof worden benaderd.

Voor alle processen, chemisch, biologisch en hydrologisch is de micro- en moleculaire schaal onmisbaar.

Er zijn ook voorbeelden waarbij detaillering op de ene schaal, eenvoudig is op de volgende schaal. In de sfeer van dispersiecoëfficiënten in geaggregeerde media gaat het om ruwweg de grootte van de elementen. Men komt echter pas tot deze veralgemenisering nadat er eerst microscopisch inzicht bestaat. In de praktijk wordt te weinig rekening gehouden met de microscopische schaal en de variabiliteit.

In stelling II staan bodemchemische processen. Hetzelfde geldt met betrekking tot andersoortige processen zoals bodembiochemische en hydrologische processen. Wel is het zo dat men bij hydrologische processen op een andere manier moet middelen dan bij bijvoorbeeld chemische processen.

In eerste instantie is kennis nodig, dan komt men tot inzicht. Vervolgens kan men de zaak gaan vereenvoudigen en of middelen.

STELLING IV:

*Er is een grote behoefte aan een algemeen toe- en ook aanpasbare ad/
desorptievergelijking voor de beschrijving van reactief transport.*

Voor modellen zijn invoergegevens noodzakelijk. Vaak zijn deze parameters niet

beschikbaar, iets algemeen toepasbaars zou dan gemakkelijk zijn. De vraag is of het concept van adsorptie en desorptie gemakkelijk algemeen toepasbaar is.

In de modellen CHARON en NIMTEK zijn 1000 coëfficiënten ingevoerd door chemici. De kunst is om aan te geven wat de relevante invloed is van elk van die coëfficiënten.

In de "Slufter" zijn berekeningen uitgevoerd t.a.v. mobiliteitsveranderingen van zware metalen onder invloed van toevoeging van sulfaat. Gevolg van de resultaten van deze berekeningen is dat er een formele beslissing is genomen om geen sulfaat te storten.

In sommige gevallen is men afhankelijk van één parameter, zonder dat men beschikt over een validatie methode of de validatie is nog niet uitgevoerd. Bij het onderzoek ten behoeve van kerncentrales is zeer veel geld gestopt in het verkrijgen van de transportparameters radionucliden.

Een ander voorbeeld is cadmium in de Westerschelde. Er zijn veel metingen verricht, o.a. wat betreft chloride-gehalten en pH's. Het theoretisch concept wordt getoetst. Voor chloride bestaat een viertal complexen van cadmium met vier stabiliteitsconstanten. De vraag is kloppen deze en zijn vervolgens de metingen te verklaren. Dit blijkt te werken. In principe zijn deze zaken goed bekend. Wat echter niet goed bekend is, is de interactie met organische stoffen e.d. Toch worden hiervoor ook coëfficiënten ingevoerd en wordt er mee gerekend. Verder is elk oplosbaarheidsprodukt wat in het laboratorium wordt gevonden veel groter dan dat in het veld. Ook blijken processen in een steriel systeem af te wijken van het werkelijke systeem. Zo blijkt in een systeem met microbiologische activiteiten dat de beweeglijkheid van zink en cadmium veel groter is.

De essentie van veel processen is nog niet voldoende gedefinieerd en onderzocht. Alle thermodynamische constanten t.a.v. vaste stof en vloeistofinteracties geven hoogstens een indicatie wat eraan de hand is.

Er is een model om de tijdsduur van de sanering en de verontreiniging van het water mee te bepalen. Dit is een grof model. Kolomproeven zijn echter te duur om die bij elke sanering toe te passen. Er is behoefte aan een classificatie van modelvergelijkingen. Dit bepaalt hoe succesvol een bepaalde saneringsaanpak is.

Nabeschuwing

Freundlich-type adsorptievergelijkingen met bijvoorbeeld twee, aan omstandigheden (zoals pH), aanpasbare parameters blijken redelijk bruikbaar voor veel situaties.

STELLING V:

Het gebruik van labmonsters van gering volume is een onbetrouwbare basis voor de parameterisatie van macrotransport vergelijkingen.

(Zie ook de discussie over stelling III).

Monsters dienen zo groot te zijn dat het schaalprobleem wordt meegenomen. Het zogenaamde "representative specific volume". In het verleden hebben bodemkundigen dit te weinig getoetst. De bodemvariabiliteit dient ook te worden meegenomen. De grootte van het bodemmonster is afhankelijk van de grondsoort. Er is dus geen standaard monstergrootte, deze is afhankelijk van de soort grond en de processen die daarin spelen etc., waarbij de bodemhorizonten en genese meegenomen dienen te worden.

Het gebruik van kolomproeven zonder de chemie in het veld te kennen, is niet verantwoord. Er zijn nauwelijks kolomproeven bekend waarbij onderzoek heeft plaats gevonden aan meer dan twee stoffen.

Nabeschuwing

Dit alles neemt niet weg dat, na een veldinspectie, de laboratorium kolomproef vaak schattingswaarden geeft die bruikbaar blijken.

STELLING VI:

*Heterogeniteit en variabiliteit van de bodem(parameters) adient te worden onderkend als basis voor interpretatie van gedrag in het veld (hoe?) en voor de invoer van parameterwaarden in modellen.
bkan mede worden verwerkt door het uitdrukken van voorspellingen in de vorm van 'range-waarden'.*

c kan worden ingeschat op basis van morfologische technieken.

Er wordt gewerkt met 'probabilities' voor het transportmodel van N en pesticiden. Er worden allerlei combinaties doorgewerkt en nu wordt ook gebruik gemaakt van Monte Carlo simulaties. Dit levert uitkomsten op over de kans van optreden van Een iteratief proces is natuurlijk ook mogelijk waarbij na verkenning van de processen nagegaan wordt, welke parameters doorslaggevend zijn. Vervolgens vindt middeling plaats en wordt het gebied afgegrensd.

STELLING VII:

De beschrijving van reactief transport in de bodem wordt logischer wijze gebaseerd op het carrier-geïnduceerd transport zoals dit wordt bepaald door hydrologische processen en wordt beïnvloed door lokale chemische en biologische processen.

Opsplitsen in de volgende facetten: hydrologisch-chemisch-biologisch?

Onderlinge terugkoppeling is hierbij van belang. De interactie tussen de hydrologie en de chemie is er, alleen de koppeling met de biologie is moeilijk. Toch dienen biologische activiteiten in relatie gebracht te worden met andere aspecten; zo dient nagegaan te worden of deze bijvoorbeeld correleren met de nutriënten, vocht en temperatuur. Aldus komt men tot een meer geïntegreerde benadering. De sequentie is hydrologie, chemie, biologie met een samenhangende benadering. Bij die sequentie dient de schaal in de gaten gehouden te worden.

Aan de andere kant wordt voorgesteld om juist aan de biologische kant te beginnen. Op één lokatie kan er een sterke variatie in ruimte en tijd zijn. Het is belangrijk om de biologische factoren tegelijkertijd te meten met de chemische en fysische factoren.

Bij de kansverdeling van parameters dient goed in de gaten te worden gehouden dat er vaak onderlinge correlaties tussen die parameters bestaat.

STELLING VIII:

De influx aan het bodemoppervlak wordt ten onrechte dikwijls gebaseerd op historische tijdreeksen; voor water dienen neerslag reeksen te worden gecorrigeerd voor bovengrondse interceptie.

Niet verder besproken (zie: Bouten en Van Grinsven).

STELLING IX:

De bepaling van C_s in situ is nog steeds problematisch.

Niet verder besproken (zie: Van Grinsven).

STELLING X:

De berekening van een lokale solute-flux uit de gemiddelde carrier-flux en de gemiddelde C_s leidt veelal tot een over/onder-schatting.

Niet verder besproken (zie: De Boer, Bouten en Van der Zee).

STELLING XI:

Het blijft zeer moeilijk om algemene regels te stellen voor validatie van rekenmodellen m.b.t. solute transport onder veldomstandigheden.

Niet verder besproken.

STELLING XII:

Populatiodynamica, met name in de modellering van N-transport, wordt onderbelicht.

Dit is een belangrijk punt bijvoorbeeld bij ammoniakvervluchtiging, waarbij er een competitie is tussen diverse processen. Belangrijk is om te weten hoe snel concurrerende processen verlopen en hoe lang de opstartfase is.

Het komt soms voor dat de leefomstandigheden voor micro-organismen goed, maar er toch onvoldoende micro-organismen zijn om het proces snel te kunnen uitvoeren.

Onder populatiedynamica wordt in deze stelling verstaan de groei van één soort bacteriestam. Bijvoorbeeld als er na een droge periode een regenbui valt, zal er eerst een periode nodig zijn, waarin de bacteriepopulatie aangroeit, voordat het proces (b.v. denitrificatie) weer goed loopt. Dat kan zeker wel een dag duren en dit is ook afhankelijk van de temperatuur. De temperatuur zit op twee manieren in zo'n systeem verwerkt, namelijk het beïnvloedt de snelheid van chemische processen en het is van invloed op de adaptatietijd. De adaptatietijd is alleen van belang voor afbraak van xenobiotica.

Bij alle xenobiotica kan ook de populatiebeperking vooralsnog een grote rol spelen. Adaptatie kan maanden tot jaren duren.

STELLING XIII:

Er is behoefte aan nadere specificatie van de omstandigheden waaronder (de)nitricatie-processen optreden in de bodem; veldonderzoek in deze dient te worden voortgezet.

Belangrijk, ook in verband met de voorgaande stellingen, is de wisselwerking tussen de processen. Hoe kan men met chemisch/fysisch werk aansluiten op de biologische waarnemingen? Dit hangt sterk van de vraagstelling af.

Er wordt opgemerkt alleen veldwerk te doen als de zaak goed is te definiëren. Anders niet doen!

Specificatie van processen moet in principe niet op veldschaal gebeuren, maar op bijvoorbeeld kolom- of laboratoriumschaal onder geconditioneerde omstandigheden. Daarna kan eventueel via lysimeters worden nagegaan of het in het veld klopt en tot een parameterisering kan worden gekomen. De vraag is of men aan die laatste stap toekomt. Bijvoorbeeld in het geval van vermesting; als men wil weten wat er na het groeiseizoen nog in de grond zit, kan het zinvol zijn om gedurende het groeiseizoen een in de grond geplaatste tensiometer af te lezen. Misschien is het in dit geval het gemakkelijkst om direct de temperatuurprofielen en de vochtprofielen te monitoren in het milieu waarin de chemische

reacties en biologische processen plaatsvinden. Vaak is dat niet genoeg. Het modelleren van de bodemfysische zaken is nodig om te begrijpen wat daar geproduceerd wordt en wat daar uitspoelt. De toestand waarin het systeem verkeert, is tegenwoordig goed te meten met tensiometers enz.

Bij ecologische bodemtypologie werd door bodemkundigen aan biologen gevraagd: "Wat is het eisenpatroon abiotisch gezien van uw biota?" Hierop kunnen de biologen geen voldoende antwoord geven. Sommige organismen stellen heel specifieke eisen aan hun abiotische milieu.

Stel het geval van een stoffenbalans in een landbouwkundig gebied in het groeiseizoen. De vraag is wat erin gebracht is aan stoffen en hoe deze verdwijnen door vervluchtiging, via opname door de plant, wat resteert enz. . In zo'n geval is het volgen van de fysische/chemische toestand noodzakelijk.

Nitrificatie bepaalt bij een bos sterk de bodem-waterkwaliteit. Nitrificatie wordt beïnvloedt door de pH. Als men in een laboratorium verschillende pH's induceert en nagaat wat de gevolgen zijn voor het nitrificatieproces, wijkt dit sterk af van de situatie in het veld. Veldonderzoek blijft daarom altijd belangrijk.

Om diverse zaken beter te begrijpen moet men gebruik maken van de kennis van de variabiliteit in het veld. Het is echter moeilijk om in het veld achter wetmatigheden te komen. Wel is het mogelijk om te proberen een ongestoord monster in het veld te nemen en dit onder laboratoriumomstandigheden te testen. Vaak zijn echter jaren metingen nodig om tot uitspraken te komen. Het zeer keurig methodisch uitzoeken kost zoveel tijd en geld, dat het 'snelle probeersel' soms toch lonend is.

Voor de waterbodem zou het zeer zinnig zijn als de omvang van het denitrificatieproces op zich bekend is. Het is gebleken dat er een groot verschil bestaat tussen wat er aan nitraat wordt gevonden in het oppervlaktewater en het nitraat dat uit het terrestrische milieu onderweg is naar het oppervlaktewater. Voor de waterbodem geldt dat een nadere specificatie nodig is van denitrificatieprocessen. Het opzetten van onder andere veldonderzoek wat betreft de waterbodem is aan te bevelen.

STELLING XIV:

Er is een grote behoefte aan de opstelling van een praktische leidraad t.b.v. bodemsaneringsmaatregelen.

De bodemsanering is sterk in opmars. In het geval van een bepaalde bodemverontreiniging wil men weten:

- hoe krijgen we de betreffende stof er uit
- wat voor verbinding hebben we, waar zit het aan, wat is het type verbinding en hoe kan ik dat beïnvloeden, wat gaat dat kosten en wat moet erop gegoooid worden enz.

Voor de ondernemingen zullen algemene regels zinvol kunnen zijn.

In het kader van de Interim Wet Bodemsanering is er een leidraad voor oriënterend en nader onderzoek. Daar is de eis in opgenomen dat voor toekomstige saneringen de kosten maximaal 20% de begroting mogen overschrijden. Dat wil zeggen dat men een goed inzicht moet hebben in de fysica van zo'n gebied. Dus praktische richtlijnen zijn zeker zinvol. Er is steeds meer informatie nodig voordat tot sanering kan worden overgegaan. Naast een leidraad is er een overzicht nodig dat in brede kring gebruikt kan worden en niet alleen bij bodemkundigen, maar dat ook van belang is voor beleidsbepalende instellingen.

In het kader van grondwatersaneringen lijkt dat de berekeningen in eerste instantie vaak een ongunstiger beeld geven dan in de werkelijkheid optreedt. In de berekeningen gaat men uit van momentane desorptie, daaruit blijkt dat men vrij lang moet pompen. Vervolgens gaat men het veld in en wanneer men gaat pompen blijkt dat het water veel sneller schoon wordt. Men bouwt de zaak dan af, terwijl na verloop van tijd het water toch weer vuil blijkt te zijn.

STELLING XV:

Er is behoefte aan effectspecificatie en aan prioritering van gesuggereerde maatregelen voor de bestrijding van eutrofiering.

Deze stelling is eigenlijk wat betreft effectspecificatie voornamelijk van toepassing op de Noordzee. Wat de binnenwateren betreft, daar is een redelijke beschrijving van effecten

aanwezig. Wel zijn de toxicologische effecten minder goed bekend. In de 3e Nota Waterhuishouding staan, wat betreft de prioritering, maatregelen voor de verschillende maatschappelijke groepen. Dat wil niet zeggen dat de goedkoopste het eerste moet worden uitgevoerd. Er is duidelijk een prioritering.

INGEZONDEN SCHRIFTELIJKE BIJDAGEN VAN DE DEELNEMERS

NITRIFICATIE IN ZURE BOS- EN HEIDEBODEMS: MECHANISMEN EN EFFECTEN VAN BIOTISCHE EN ABIOTISCHE FACTOREN

W. de Boer, Instituut voor Oecologisch Onderzoek te Heteren

In een gezamenlijk onderzoeksproject van UvA (Tietema) en IOO (de Boer) wordt beoogd kennis te vergaren over de regulatie van nitrificatie in bos- en heidebodems. De resultaten van het onderzoek kunnen o.a. worden gebruikt voor een inschatting van de verdere verzuring van genoemde bodems ten gevolge van nitrificatie. Met betrekking tot de bodemwaterkwaliteit betekent dit, dat een beter inzicht zal worden verkregen in de mogelijke verontreiniging van het bodemwater onder bos en hei met o.a. nitraat en aluminium. Hoewel het project pas medio 1992 zal zijn afgerond kunnen reeds enige voorlopige conclusies worden getrokken:

- 1 Nitrificatie in de Nederlandse zure bos- en heidebodems is eerder regel dan uitzondering. Aangezien de meeste bosbodems en veel heidebodems zich in een toestand van stikstof-verzadiging bevinden moet worden gevreesd dat het gevormde nitraat (deels) uitspoelt naar het grondwater. Op 4 boslocaties waar fluxen van minerale stikstof worden bepaald wordt inderdaad uitspoeling van nitraat vastgesteld.
- 2 Zuur-tolerante, chemolithotrofe bacteriën zijn waarschijnlijk de belangrijkste nitraat-producenten in zure bos- en heidebodems. Deze bacteriën zijn in een zuur milieu in staat om ammonium te oxyderen. Ze zijn voor hun groei niet afhankelijk van organische substraten zoals dat bij heterotrofe nitrificerende micro-organismen het geval is. Indien er geen sprake is van beperkende factoren (gebreekige O_2 -voorziening, lage temperatuur, droogte, aanwezigheid van allelochemische remmers) moeten zuur-tolerante chemolithotrofe bacteriën in staat worden geacht om stikstof-verzadigde bodems sterk te verzuren. De onderste pH-limiet waarbij zuur-tolerante nitrificatie kan optreden is ongeveer pH 3.

3 In bos- en heidebodems zijn ook zuur-gevoelige chemolithotrofe bacteriën aanwezig. Deze bacteriën zijn voor de *in situ* nitraatvorming waarschijnlijk van weinig belang, omdat ze afhankelijk zijn van lokaal gunstige omstandigheden (hoge pH). Het valt te verwachten dat een pH-verhogende maatregel, zoals bekalking van bossen, zal leiden tot een toename van de stikstof-mineralisatie en van de activiteit van zuur-gevoelige nitrificerende bacteriën. Hierdoor zullen de totale nitrificatie en de uitspoeling van nitraat naar het bodemwater toenemen.

Stellingen

- Zonder een beter inzicht in de horizontale heterogeniteit van nitrificatie in bosbodems en de factoren die de heterogeniteit bepalen zijn metingen van nitraatuitspoeling niet te extrapoleren naar nitraatuitspoeling op hectare-schaal.
- Alvorens er een uitgebreid onderzoek is gedaan naar de effecten van bosbekalking op nitraatuitspoeling kunnen bossen binnen waterwingebieden beter niet voor bekalking in aanmerking komen.

NEMATODEN EN BODEMWATERKWALITEIT

A.M.T. Bongers, Vakgroep Nematologie, LU Wageningen

Hoewel de toestand van het bodemwater in principe objectief beschreven zou kunnen worden, is de kwaliteit een subjectief begrip en wordt in de eerste plaats bepaald door de norm die men aan het bodemwater stelt. Een hoog chloridegehalte in het bodemwater in wegbermen typeert het bodemwater als slecht; in duinzand is hetzelfde gehalte tolerabel. Bodemwater met een hoog kalk- of ijzergehalte hoeft evenmin van slechte kwaliteit te zijn. De kwaliteit van de bodem en kwaliteit van het bodemwater zijn onlosmakelijk met elkaar verbonden. Van de verschillende functies van de bodem worden de ecologische functies als meest kwetsbaar beschouwd. Vanuit deze optiek is de kwaliteit van het bodemwater slecht als de ecologische functies van deze bodem verstoord of bedreigd worden. Met andere woorden: de kwaliteit van bodemwater is slecht als het een negatief effect heeft op het functioneren van het bodemwater of de bodem in het algemeen. Het beleid ten aanzien van de bodembescherming zou, voor zover dat al niet zo is, ook moeten gelden voor het bodemwater. Dit zou dan inhouden dat de kwaliteit van het bodemwater primair afgelezen zou dienen te worden aan het effect op kwetsbare functies zoals mineralisatie en opname van nutriënten door planten. Raken deze functies verstoord dan volgt ophoping van organisch materiaal of uitspoeling van nutriënten.

Een essentiële vraag is hoe men de kwaliteit van het bodemwater kan bepalen of nauwkeuriger: hoe bepaalt men of de eigenschappen van het bodemwater een negatief effect hebben op het bodemleven. Analytische technieken, voor zover die al uitvoerbaar zijn, hebben een aantal nadelen.

Men weet a priori niet welke xenobiotica in het bodemwater van een verdachte bodem voorkomen. In het geval dat men in een monitoringsysteem routinematig 30 verschillende analyses uitvoert dan nog kan de kwaliteit slecht zijn als gevolg van de aanwezigheid van een stof die niet routinematig geanalyseerd wordt. Biologische beoordeling is niet stofgericht, alleen het uiteindelijke effect op bodemorganismen komt tot uiting.

De structuur van de leefgemeenschap in het bodemwater of bodem geeft informatie over

eventueel effect. Een chemische analyse geeft een momentopname. In droogtegevoelige bodems wordt het effect op het bodemleven bepaald door de meest extreme situatie zoals tijdens dehydratiepieken als de concentratie aan xenobiotica het hoogst is. Het bodemleven in het capillaire water geeft ook informatie over verstoringen die in het verleden plaatsgevonden hebben. Daarnaast reageert het bodemleven op interacties en synergistische effecten. Indien stof A, B en C net onder de norm zitten dan is het niet uitgesloten dat ze gezamenlijk wel een toxisch effect vertonen. Daarnaast gaan analytische technieken voorbij aan de biologische beschikbaarheid van een stof, toxiciteit is niet analytisch te bepalen.

Nematoden leven in het bodemwater, door hun permeabele cuticula staan ze in direct contact met de daarin opgeloste stoffen. Mede hierdoor biedt een biologisch beoordelingssysteem op basis van de structuur van de nematodengemeenschap en afgeleide parameters perspectieven voor het bepalen van de kwaliteit van het bodemwater.

Discussiepunten

Wat is bodemwaterkwaliteit? Hoe kan de kwaliteit bepaald worden?

Van een zandgrond met 20% vocht werd de pH bepaald na aanvulling met water (1:5). Het vochtvolume werd aldus 25 maal zo groot. Het verdunde bodemwater had een pH van 3.6. Dat wil natuurlijk niet zeggen dat de oorspronkelijke pH van het bodemwater dan in de buurt van de 2.2 gelegen moet hebben maar roept wel vragen op. Kan de pH van bodemwater met enige betrouwbaarheid bepaald worden? Heeft het überhaupt nog wel zin om de pH op deze wijze te bepalen om het leefmilieu te karakteriseren?

Als de bodemwaterkwaliteit gebaseerd is op de concentratie xenobiotica en/of nutriënten in het bodemwater kan een regenbui de kwaliteit sterk beïnvloeden. Het is daarom meer voor de hand liggend de kwaliteit te beoordelen op de concentratie aan xenobiotica in de meest ongunstige omstandigheden, dus tijdens perioden van droogte.

SPEERPUNTPROGRAMMA BODEMONDERZOEK

T.N.P. Bosma, Programmabureau Speerpuntprogramma Bodemonderzoek

Achtergrond: Bij programmabureau belast met werkzaamheden in het kader van het zogenaamde integratieproject. Dit project heeft als doel een synthese tot stand te brengen van de diverse resultaten uit het onderzoek, teneinde daadwerkelijk invulling te geven aan de doelstelling van het Speerpuntprogramma Bodemonderzoek: "het onderbouwen van het bodembeschermingsbeleid op de (middel)lange termijn".

Tevens betrokken bij onderzoek naar biologische omzetting van organische microverontreinigingen, o.a. tijdens duininfiltratie.

In laatstgenoemd onderzoek was een belangrijke vraag in hoeverre resultaten verkregen in het laboratorium uit experimenten met kolommen gepakt met materiaal uit het duininfiltratiegebied, extrapoleerbaar zijn naar de veldsituatie, zowel in kwalitatief als kwantitatief opzicht. Het voorspellen van het wel of niet optreden van omzettingen van organische verbindingen in de laboratoriumsituatie bleek moeilijk te zijn: de aerobe omzetting van dichloorbenzenen bleek afhankelijk te zijn van de precieze lokatie (c.q. milieu-omstandigheden?) en tijdstip van monsternamen in het infiltratiegebied. De variatie gold zowel het wel of niet omgezet worden van bepaalde isomeren, als de acclimatisatieperiode die optrad voordat omzetting kon worden waargenomen. Deze varieerde van minder dan een week tot drie maanden. Voorspellen van omzettingen in het veld lijkt nog moeilijker. Een eerste punt is daarom of het denkbaar is om een algemeen geldende uitspraak te doen over de biologische afbreekbaarheid van organische verontreinigingen in bodem en grondwater. Of als stelling: "Gezien de grote variatie in ruimte en tijd van de biologische afbreekbaarheid van organische verbindingen, dient deze variatie altijd als differentiërende factor in voorspellingen hierover te worden opgenomen".

Een tweede punt betreft de wijze waarop bodemwaterkwaliteit moet worden bepaald. Is dit uitsluitend een kwestie van gehalten van bepaalde stoffen of moeten ook het voorkomen van bepaalde organismen of de kwaliteit van een ecosysteem als kwaliteitsbepalende factoren worden meegenomen? Zo ja, hoe bepaal je dan de kwaliteit? Stelling zou kunnen zijn:

"Bodemwaterkwaliteit dient te worden gedefinieerd zowel aan de hand van stofgehaltenes als aan de hand van ecosysteemparameters".

Een derde punt betreft de beoordeling van de kwaliteit van het bodemwater. Welke eisen moeten aan de kwaliteit worden gesteld? Moeten aan het bodemwater in een industriegebied dezelfde eisen worden gesteld, als aan het bodemwater in De Biesbosch? Als stelling: "De beoordeling van bodemwaterkwaliteit kan niet los worden gezien van omgevingsfactoren zoals bodemgebruik".

OPMERKINGEN EN VRAAGPUNTEN

J. Bouma, LUW, Bodemkunde en Geologie

Het voor deze studiebijeenkomst gekozen onderwerp is uitermate actueel, niet alleen in Nederland maar ook daarbuiten. In de USA, bijvoorbeeld, heeft "Water Quality" als onderzoeksthema de hoogste prioriteit zowel bij USDA als de US-EPA.

Mijn commentaar vat ik samen in drie punten die ieder uitmonden in een stelling.

1 De studie van biologische, chemische en hydrologische processen was en is verschillend van karakter. Accenten liggen op het voorkomen van organismen, chemische evenwichtsreacties en watertransport op gebiedsniveau. Hoe zou een geïntegreerde benadering vorm moeten krijgen? Een sequentiële benadering lijkt me het meest realistisch: Eerst de hydrologische processen karakteriseren, dan de chemische inbrengen en vervolgens de biologische als functie van fysico-chemische condities. Daarbij moet het niveau van detaillering van de drie processen op hetzelfde niveau plaatsvinden. Wat bepaalt het gewenste c.q. haalbare niveau van detaillering?

Stelling 1: Een geïntegreerde benadering van de bodemwaterkwaliteitsproblematiek is gediend met een sequentiële benadering op basis van hydrologische processen, daarop geïntegreerde chemische processen en biologische processen als functie van de fysico-chemische processen.

2 Processen moeten worden gekarakteriseerd op basis van meetgegevens, zowel in de onverzadigde als in de verzadigde zone. Meetgegevens zijn zeer variabel, zelfs wanneer waarnemingen op hetzelfde tijdstip op korte afstand worden verricht. Het verdient daarom aanbeveling om zowel meetwaarden als voorspelde waarden weer te geven in termen van waarschijnlijkheid van voorkomen. Stratificatie van waarnemingen per bodemtype of bodemgebruikstype kan de waargenomen variabiliteit sterk verminderen.

Stelling 2: Gezien de grote variabiliteit van meetwaarden verdient het aanbeveling deze uit te drukken in termen van waarschijnlijkheid van voorkomen. Stratificatie van waarnemingen per bodemeenheid en per bodemgebruikstype kan de schijnbare variabiliteit verlagen.

3 Het besef is groeiende dat bodemheterogeniteit een grote invloed heeft op bodemwaterkwaliteit. Processtudies dienen in toenemende mate uit te gaan van natuurlijk voorkomende bodemstructuren die vaak niet kunnen worden voorgesteld als varianten van homogene poreuze media.

Stelling 3: Processtudies dienen uit te gaan van de natuurlijke bodemheterogeniteit zoals deze, bijvoorbeeld, met morfologische technieken kan worden gekarakteriseerd.

BODEMKUNDIG PROCESONDERZOEK

W. Bouten, Fysisch Geografisch en Bodemkundig Laboratorium
van de Universiteit van Amsterdam

Het Fysisch Geografisch en Bodemkundig Laboratorium van de Universiteit van Amsterdam houdt zich onder andere bezig met bodemkundig procesonderzoek in natuurlijke systemen. In dit onderzoek wordt vooral aandacht geschonken aan organische stof. Lopende onderzoekprojecten zijn: Humusprofiel ontwikkeling, zuurbuffering door de strooisellaag, biodegradatie van organische stof en de stikstof dynamiek in de bodem. Bij processtudies worden metingen in het algemeen zo veel mogelijk in het veld uitgevoerd om effecten van verstoring te voorkomen. De metingen worden afgestemd op de databehoeftes voor calibratie en validatie van de gebruikte modellen. Deze modellen zijn in het algemeen macroscopisch van aard en voor zover het transport betreft een-dimensionaal.

Stellingen

De vermenigvuldiging van waterfluxen met element concentraties, zoals die in het bodemvocht in de onverzadigde zone worden gemeten met gevacumeerde cups, geven een overschatting van elementfluxen doordat ook water wordt onttrokken dat slechts een geringe bijdrage levert aan het transport.

Voor de berekening van de jaarlijkse aanvoer van water naar het grondwater is de interceptiefractie de belangrijkste, maar ook een gemakkelijk meetbare parameter.

Bij de interactie tussen biologische, chemische en hydrologische processen speelt de ruimtelijke en temporele variabiliteit vaak een belangrijke rol. Deze dynamiek dient niet als "lastig" bestempeld te worden maar kan juist de nodige inzichten verschaffen. Het gebrek aan geschikte meetmethoden, om de variabiliteit in ongestoorde systemen te kunnen bestuderen, belemmert echter vooralsnog de voortgang van het onderzoek.

ERVARINGEN EN IDEEEN VAN DHV MET BETREKKING TOT HET ONDERWERP

G.J.H. Bröerken, DHV

1 Grondwaterreiniging

- ervaringen met bovengrondse reiniging van grondwater in biologische en fysische-chemische systemen; knelpunten bij grondwatersanering liggen meestal in het gedrag van stoffen in de bodem:

adsorptie/desorptie, transport van stoffen in de bodem, onbekendheid met effect van toevoegingen aan het grondwater op dit gedrag;

- ontwikkelingen in samenwerkingsverband DHV/LUW: bioreactor voor de reiniging van grondwater in een up-flow, fixed-bed reactor; goede resultaten op lab. schaal, binnenkort zal worden gestart met veldproef op semi-technische schaal; project is in ontwikkelingsstadium; vanwege vertrouwelijkheid zullen weinig detailgegevens bekend kunnen worden gemaakt; milieuhygiënisch en vaak ook kostentechnisch hebben biologische reinigingssystemen de voorkeur boven het fysisch-chemisch reinigen van grondwater;

2 Geohydrologie en grondwaterkwaliteit

- ervaringen met geohydrologische aspecten bij grondwatersaneringen: optimalisatie van plaatsing van onttrekkings- en infiltratiefilters; bij saneringen wordt veelal nog gewerkt volgens de aloude "bemalingstechniek", terwijl door optimalisatie van het onttrekkingssysteem een verkorting van de saneringsduur kan worden bewerkstelligd; modellering van grondwatersaneringen met behulp van het model SORTRAN: een voorspellingsmodel voor grondwatersaneringen; toepassing van diverse geohydrologische modellen voor het voorspellen van verspreidingsrisico's, bemalingen e.d., plaatsing onttrekkingsfilters etc; divers onderzoek naar normstelling bodem/water, samenhang en inconsistentie toetsingswaarden.

Stellingen

- 1 Door optimalisatie van de plaats van het onttrekkings- en eventueel infiltratiesysteem, van het onttrekkingsdebiet, en door toevoeging van desorptiebevorderende stoffen kan een grondwatersaneringsduur aanmerkelijk worden verkort en kunnen de kosten worden verlaagd.
- 2 Bij de toepassing van geohydrologische voorspellingsmodellen wordt het desorptiegedrag beschreven met behulp van gegevens, verkregen door het uitvoeren van (dure) kolomproeven als benadering van de praktijksituatie. Het verdient aanbeveling te werken met een algemeen toepasbaar desorptiemodel. De vraag is echter of in een theoretisch model alle parameters zijn onder te brengen, die een rol spelen in de sorptie-processen in de bodem.
- 3 Huidige kwaliteitseisen en saneringsdoelstellingen voor bodem (vaste fase) en grondwater zijn soms inconsistent.

MODELLERING VAN TRANSPORT EN ACCUMULATIE BODEM

J.J.M. van Grinsven, RIVM

1 Bodemvochtbemonstering

Er bestaan grote problemen bij het vergelijken van resultaten van laboratorium en simulatie experimenten met veldwaarnemingen. Een deel van de problemen wordt veroorzaakt doordat bemonstering van bodemvocht niet altijd mogelijk is of doordat niet representatief water wordt verzameld. Er worden op dit moment voornamelijk vier technieken gebruikt om bodemvocht te bemonsteren t.w. poreuze cups, centrifugering, hoge druk persen en extractie. Geen van deze technieken is optimaal. Welke techniek verdient de voorkeur.

2 De lengte van periode voor monitoring van bodemvocht kwaliteit

Aangezien veel monitoring-onderzoeken op projectbasis geschieden en de bodembemonstering arbeidsintensief is, beslaan de meeste meetreeksen van bodemwaterkwaliteit zelden een periode langer dan zes jaar. Gezien de veelheid van processen welke invloed uitoefenen op bodemwaterkwaliteit, zijn meetreeksen over enkele jaren niet afdoende om de respons op wisselende omgevingsfactoren in het veld te onderzoeken.

3 Stochastiek

Voor de prognose van bodemwaterkwaliteit bij veranderende omgevingsfactoren (scenario-analyse) wordt vaak voor de niet aan structurele verandering onderhevig geachte randvoorwaarden (tot voor kort neerslag, temperatuur, natuurlijke depositie van voedingsstoffen) aangenomen dat de stochastiek in het verleden representatief is voor de toekomst. Dit leidt tot gebruik van bestaande tijdreeksen voor simulatie. Er zijn sterke aanwijzingen dat de prognose sterk beïnvloed kan worden door de volgorde van korte (dag) en lange (meerdere jaren) omgevingsomstandigheden.

Hierdoor kan prognose van bodemwaterkwaliteit met deels historische tijdreeksen als randvoorwaarde tot grote systematische fouten leiden. Is deze constatering juist en hoe kan de prognose verbeterd worden? Zelf experimenteer ik met procedures om neerslag en

temperatuurreksen te genereren, als (tevens handzamer) alternatief van (omvangrijke) historische reeksen.

4 Populatie-dynamiek

Het ligt zeer voor de hand om de waargenomen bodemvochtkwaliteit te koppelen aan al dan niet wenselijke omgevingsfactoren. Een alom bekend probleem is de vertraging die optreedt tussen blootstelling en effect. De vertraging door transport en accumulatie wordt reeds lange tijd d.m.v. modellering kwantitatief onderzocht. Anders ligt het voor de vertraging die optreedt doordat de waargenomen kwaliteit met name gevolg is van een microbiologische omzetting, en dus van de "microbiologische kwaliteit" i.e. de aard, omvang en activiteit van de omzeters. De populatie van de omzeters stelt zich met vertraging in op de veranderende omgeving en bijgevolg ook de waterkwaliteit. Dit kan leiden tot zeer ondoorzichtige relaties tussen bodemwaterkwaliteit en omgeving. Een voorbeeld is de relatie tussen denitrificatie en omgevingsfactoren. Mijs inziens wordt populatiedynamica, met name in de modellering, van N-transport onderbelicht. Is dit juist en zo ja hoe kan dit verbeterd worden.

O. Oenema, NMI

In 'natuurlijke' systemen wordt de bodemwaterkwaliteit in sterke mate bepaald door de samenstelling van de bodem, aanvoer van afbreekbare organischestof, kationen- en anionenopneming door het gewas, atmosferische depositie van kationen en anionen, hydraulische potentiaal, zuurstofspanning en temperatuur. In Nederland is de oppervlakte van 'natuurgronden' echter gering; een zeer groot deel is in gebruik als landbouwgrond.

De bodemwaterkwaliteit van landbouwgronden wordt, naast de hierboven voor 'natuurlijke' systemen genoemde factoren, in sterke mate bepaald door bemesting en bedrijfsvoering. Bemesting heeft tot doel de concentratie van opgeloste en gemakkelijk oplosbare zouten, of nutriënten, in de bodem dermate te verhogen dat een optimale opbrengst wordt verkregen. Hierbij dient te worden opgemerkt dat het toedienen van grote hoeveelheden dierlijke mest, zoals in de praktijk plaatselijk gebeurt, meestal niets met 'bemesting' te maken heeft maar met 'afvalverwerking'. Toediening van grote hoeveelheden dierlijke mest op bouw- en grasland vergroot de bodemvruchtbaarheid en daardoor ook de samenstelling van het bodemwater.

Stelling

Instelling van een gemengd landbouwbedrijf kan een bijdrage leveren tot een betere kwaliteit van het bodemwater in Nederland.

BODEMWATERKWALITEIT

P.J. Stuyfzand, KIWA N.V.

Enige ervaringen:

- In duinen met kunstmatige infiltratie van oppervlaktewater, hoopt de grootste hoeveelheid zware metalen zich niet in het bodemslib in infiltratiegeulen op, maar in de daaronder liggende meter duinzand. De concentratie-niveaus in slib zijn natuurlijk wel het hoogst.
- De atmosfeer kan een grote bijdrage leveren aan de samenstelling van bodemslib in duinen met kunstmatige infiltratie, vooral t.a.v. PAKs en Pb.
- De samenstelling van oevergrondwater langs Rijntakken is relatief (t.o.v. de Rijn) gunstig, door aanvulling via de diepe vaargeul waar weinig slib bezinkt. In haven-inhammen bezinkt veel meer en wordt de samenstelling van oevergrondwater nadelig beïnvloed.

Enkele discussiepunten:

- Hoe diep en snel penetreert zich ophopend bodemslib in infiltratiegebieden (brede betekenis) in de onderliggende zandlaag, onder welke omstandigheden.
- Wat is het effect van temperatuursfluctuaties (0-25 °C) op sorptie-evenwichten tussen water en verschillende soorten slib (qua organische stof-, kei- en kalkgehalte b.v.).
- Welke omstandigheden bevorderen de mobilisatie van colloïdale deeltjes vanuit slib en welke stoffen profiteren hier dan van.

BODEMWATERKWALITEIT IN WISSELWERKING MET BIOLOGISCHE, CHEMISCHE EN HYDROLOGISCHE PROCESSEN; GEZIEN VANUIT HET ONDERZOEK NAAR DE EUTROFIERING VAN OPPERVLAKTEWATEREN.

E.J.B. Uunk, RWS-Dienst Binnenwateren/RIZA

Vanuit het eutrofiëringsonderzoek zijn er 2 aanknopingspunten met het thema bodemwaterkwaliteit:

- 1 de eutrofe waterbodems, en
- 2 de uitspoeling van meststoffen vanuit landbodems.

Ik zal proberen om in het onderstaande beide kort te belichten.

1 De eutrofe waterbodems

- accent sterk op fosfaat (P), want: eutrofiëeringsbestrijding vooral langs P-spoor, P-nalevering uit waterbodem (vaak) hoog;
- hoge P-nalevering in het algemeen veroorzaakt door hoog opgelost P-gehalte in waterbodem;
- hoog opgelost P-gehalte in waterbodem gevolg van slechts gedeeltelijke anorganische vastlegging van het door afbraakprocessen uit organisch materiaal vrijgekomen P. De eutrofe waterbodems ontvangen een zeer hoge belasting met organisch materiaal (vooral uit algen en, soms, waterplanten);
- bij de anorganische fosfaatbinding spelen, net als bij de fosfaatbinding in landbodems, zowel reversibele processen (sorptie aan m.n. ijzer- en, wellicht, aluminiumverbindingen) als irreversibele processen (precipitatie, inbouw in mineralen) een rol. Het waterbodemmilieu wijkt wel sterk af van het landbodemmilieu (o.a. vrijwel geen aerobe zone);
- het lijkt sinds kort haalbaar om de P-nalevering in een meer na een ingreep in externe P-belasting te voorspellen op basis van bodemsamenstelling (fosfaatgehalte, korrelgrootteverdeling, organisch stof- en eventueel ijzergehalte). Hieruit kan een fosfaatsnorm voor eutrofe waterbodems worden afgeleid;

- proeven met het behandelen van eutrofe waterbodems met ijzerzouten zijn tot dusver, ook op praktijkschaal, succesvol;
- de komende jaren meer aandacht voor de stikstofnalevering vanuit waterbodems, daar zich duidelijk een stikstofspoor in de eutrofiëringsbestrijding begint af te tekenen (zie ook onder).

2 Uitspoeling P en N vanuit landbodems (afspoeling is gering)

- uitkomsten modelberekeningen t.b.v. 3e Nota Waterhuishouding:
de P-uitspoeling (nu ca. 20% van P-belasting opp.water) zal bij voortzetting huidig mestbeleid gaan toenemen (t.g.v. bodemoplading), de N-uitspoeling (nu 2/3 van N-belasting opp.water) neemt af (t.g.v. lagere bemestingsniveau's);
de P-uitspoeling wordt nog flink onderschat, omdat onvoldoende rekening kon worden gehouden met de uitspoeling vanuit kwetsbare zandgronden in de mestoverschotgebieden;
- het areaal fosfaatverzadigde gronden is veel groter dan vroeger gedacht. Dit maakt niet alleen de uitvoerbaarheid van de regeling fosfaatverzadigde gronden moeilijker, maar ook aanvullend, effectgericht beleid nodig (vgl. waterbodems!);
- N reageert op mestbeleid-> ook in het "zoete" mogelijkheden voor N-spoor eutrofiëringsbestrijding (m.n. landelijk gebied?)

Vraagpunt (1) en stelling (2) ten behoeve van discussie

- 1a Welke is de meest veelbelovende aanpak om te voorkómen, dat het fosfaat, dat uitspoelt uit met fosfaat opgeladen of zelfs verzadigde bodems, het oppervlaktewater bereikt? Stopzetting van bemesting lijkt onvoldoende om effect te sorteren, hydrologische (peilbeheersings)maatregelen conflicteren met terrestrische natuurbelangen en ijzerdosering langs waterlopen lijkt onbetaalbaar!
- 1b Welk onderzoek is met voorrang nodig om de bovengevraagde aanpak voor te bereiden?

- 2 Een N-beleid met betrekking tot de eutrofiëringsbestrijding biedt niet alleen in de Noordzee, maar ook in vele binnenwateren perspectief. Dit geldt met name voor die gebieden in laag Nederland, waar een P-aanpak minder kansrijk is door het optreden van fosfaatrijke kwel en de aanvoer van Rijnwater.

DE WATERBALANS VAN DE ONVERZADIGDE ZONE VAN DE BODEM IN RELATIE TOT BODEMWATERKWALITEIT

J.A. de Vos, Instituut voor Bodemvruchtbaarheid, Haren

Het kwantificeren van fluxen van water en opgeloste stoffen op macroscopische schaal is van groot belang. Directe metingen van deze fluxen is moeilijk. Met behulp van een deterministisch waterbalansmodel (bijv. SWATRE) is het mogelijk de flux van het bodemwater te simuleren. Hierdoor dienen echter de waterretentie- en waterdoorlatendheidskarakteristiek van de bodem bekend zijn. Met name de waterdoorlatendheidskarakteristiek is moeilijk te meten, wat resulteert in een grote onbetrouwbaarheid in de meetresultaten. Dit wordt nog erger in gestructureerde gronden. Voor waterbalansmodellen zijn randvoorwaarden nodig, bijv. grondwaterstand, meteorologische gegevens en gewaseigenschappen. Ook hier zijn er onzekerheden in de meetresultaten.

Bij landbouwkundige toepassingen is het van groot belang dat het gewas goed groeit. Hierbij speelt de opname van water en opgeloste stoffen door de plantewortels een essentiële rol. Een goede beschrijving van deze opname is dus noodzakelijk. Zeker zo belangrijk is het gedeelte van de nutriënten en andere stoffen die niet door de plant worden onttrokken. Deze stoffen kunnen in principe het grondwater bereiken en de kwaliteit hiervan beïnvloeden.

Gezien alle problemen en onzekerheden in de modellering van de water- en stoffenbalans is het volgen van de actuele toestand in het veld wenselijk. Zo kunnen bijvoorbeeld watergehalten en concentraties kwantitatief vastgelegd worden en kunnen de modellen gevalideerd worden. Wat de waterbalans van de onverzadigde zone betreft, lijkt het monitoren van de drukhoogte met behulp van tensiometers met individuele drukopnemers en het monitoren van het volumetrisch watergehalte met Time Domain Reflectometry goede mogelijkheden te bieden.

Voor het kwantitatief goed beschrijven van de waterbalans liggen mogelijkheden in het gebruik van Kalman-filters. Hierbij wordt gebruik gemaakt van een combinatie van een deterministisch model en (veld)metingen, inclusief hun statistische eigenschappen, om zo tot een statistisch gezien optimale uitspraak over de toestand van het systeem te komen. Het sterk niet-lineaire karakter van de bodemfysische eigenschappen als functie van het watergehalte, en de interpretatie van de ruimtelijke variabiliteit zullen de toepassing van

Kalman-filters echter bemoeilijken.

De schaal waarop transportprocessen bestudeerd kunnen worden, varieert van de individuele porie ("micro-schaal") tot en met de veldschaal ("mega-schaal"). Op de micro-schaal spelen zich de meeste bodembioologische processen af. De processen rond een individuele wortel ("meso-schaal") kunnen gebruikt worden om processen op "macro-schaal" (1 m², één plant) te begrijpen. De macro-schaal is de schaal waarvoor reeds veel bodemfysische modellen zijn ontwikkeld.

Tevens vinden bodemfysische (veld)metingen meestal op deze schaal plaats. De "mega-schaal" (= veldschaal) wordt belangrijk als processen op veldschaal wezenlijk anders verlopen dan op macro-schaal. Het effect van drains op de uitspoeling van nitraat en andere opgeloste stoffen is hiervan een voorbeeld. Vooral bij geïntegreerde bodembioologische en bodemfysische studies is de keuze van de schaal van belang.

Stelling 1

Voor zover bodemwaterklimaat in relatie tot gewasproductie bestudeerd wordt, is het van belang het functioneren van plantewortels goed te begrijpen en te beschrijven, met name het opnamepatroon voor water en nutriënten.

Stelling 2

Macroscopische bodemfysische veldmetingen (bijv. watergehaltemetingen) kunnen een goed inzicht geven in de actuele toestand van de bodem, en hieruit kan afgeleid worden of aeratieproblemen en denitrificatie zouden kunnen optreden.

BODEMWATERKWALITEIT IN RELATIE TOT BIOLOGISCHE, CHEMISCHE EN HYDROLOGISCHE PROCESSEN

W. de Vries, Staring Centrum, Wageningen

Ervaringen met bovengenoemd onderwerp zijn op het Staring Centrum o.a. aanwezig in relatie tot de verzuringsproblematiek in bosgronden. Hierbij gaat het om veld-, model- en laboratoriumonderzoek naar de effecten van atmosferische depositie op de bodemvochtsamenstelling in samenhang met bovengenoemde processen. Uit dit onderzoek (en elders verricht onderzoek in Nederland) blijkt dat de invloed van hydrologische, biologische en chemische processen voor verschillende (groepen van) elementen verschilt zoals aangegeven in onderstaande tabel:

Element	Hydrologie	Biologie	Chemie
Cl, SO ₄ , Na	x	-	-
NH ₄ , NO ₃	x	x	-
Al, Fe	x	-	x
Ca, Mg, K	x	x	(x)

Cl, SO₄ en Na vertonen vrijwel geen interactie met de bodem, N en basische kationconcentraties worden naast de depositie vrijwel volledig gereguleerd door de nutriëntenkringloop terwijl bij Al en Fe de kinetiek van verwerking uit amorphe Al- en Fe hydroxiden een grote invloed heeft op het concentratieverloop met de diepte. De invloed van geochemische reacties als verwerking en kationen-wisseling op basische kation concentraties blijkt in onze bossen gering vanwege de lage verwerkingssnelheid en de daarmee gecorreleerde lage basenbezetting.

Bovenstaand staatje is gesimplificeerd omdat Al zeer sterk gecorreleerd blijkt met de NO₃ (en SO₄) concentratie en die NO₃ concentratie wordt met name beïnvloed door het nitrificatieproces (biologisch proces).

Stellingen

- Kennis van de (de invloed van omgevingsfactoren op) het nitrificatieproces is van essentieel belang bij het maken van lange termijn voorspellingen van de invloed van atmosferische depositie op de bodemvochtsamenstelling.
- Het gedetailleerde biogeochemische onderzoek op enkele boslokaties waar het afgelopen decennium door is gekenmerkt zal in de 90'er jaren aangevuld moeten worden met een globaal regionaal (landelijk) overzicht van de bodemvochtsamenstelling in relatie tot depositie en bosvitaliteit.
- Onderzoek naar de ruimtelijke en temporele variaties in bodemvochtsamenstelling in relatie tot effecten op de vegetatie vereist meer aandacht dan daar tot nu toe aan is besteed.

TRANSPORT IN HETEROGENE BODEMSYSTEMEN

S.E.A.T.M. van der Zee, Bodemkunde en Plantevoeding, LUW

De bodem is een intrinsiek heterogeen systeem, voor fysische, chemische en biologische grootheden. Omdat transport doorgaans beschreven wordt op het macroscopische niveau (bijv. kolomschaal), terwijl grootheden gemeten worden op andere schaalniveaus (microscopisch voor fysische, chemische, (micro)biologische grootheden, megascopisch voor hydrologische/meteorologische randvoorwaarden) is er een discrepantie tussen modelschaal en de schaal van invoerdata. Voor het correct middelen op macroscopische schaal, als dit al mogelijk is, moet dan ook vaak gebruik gemaakt worden van *ad hoc* formuleringen. Voorbeelden zijn de beschrijving van hysteresis in hydraulisch gedrag, van dispersie, het gebruik van empirische monocomponent chemie (in plaats van mechanistische multicomponent chemie), en de ruimtelijke middeling van microbiële of wortelactiviteit.

Dergelijke *ad hoc* formuleringen leiden tot gebrekkig inzicht, en onzinnige resultaten buiten het geldigheidsgebied van gemaakte veronderstellingen. Een dergelijk probleem doet zich voor bij de extrapolatie van modelresultaten van de macroscopische naar de megascopische (bijv. regionale) schaal. Doorgaans neemt heterogeniteit toe als de schaal toeneemt. Voor dispersie betekent dit dat de op macroscopische schaal relevante porie-schaal dispersie niet meer maatgevend is voor het (megascopische) schaal gemiddeld gedrag. Maatgevend blijkt dan de ruimtelijke variabiliteit te zijn in bijvoorbeeld fysische grootheden (doorlatendheid), chemische grootheden (vastleggend vermogen en affiniteit van reacties, bijv. gereguleerd door variaties in pH, org. stof gehalte, lutumgehalte), biologische activiteit, en randvoorwaarden (netto-precipitatie, evapotranspiratie, freatisch niveau), etc. (Van der Zee en Van Riemsdijk, 1987, Van Ommen e.a., 1989). Hierbij valt op dat een groot aantal parameters gekwantificeerd worden op de hier microscopisch genoemde schaal. Dit geeft het conceptuele en methodologische probleem weer op welke schaal gemeten moet worden, dan wel hoe data correct gemiddeld moeten worden. In genoemde artikelen wordt geïllustreerd dat op megascopische schaal in geval van 1-dimensionaal netto neerwaarts transport middeling kan geschieden op basis van een stochastische beschrijving van de transport vergelijking. Terwijl voor het schaal gemiddeld front gebruik gemaakt kan worden van resident concentraties, is voor uitspoeling het gebruik van flux-concentraties vereist (Van der

Zee, unpubl., 1990). Alvorens succesvol een dergelijke stochastische beschrijving te kunnen uitvoeren, moet met een deterministische beschrijving op zowel kleinere schaal als de schaal van interesse vastgesteld worden welke processen of grootheden maatgevend zijn. Dit kan bijvoorbeeld een aanpak vereisen waarbij niet-stationaire stroming of multicomponent chemie in rekening wordt gebracht. Op de schaal van interesse kunnen dergelijke nuances van secundair belang zijn. Er zijn echter legio situaties te verzinnen waarbij dit niet het geval is.

Referenties

- S.E.A.T.M. van der Zee and W.H. van Riemsdijk, 1987, Transport of reactieve solute in spatially variable soil systems, *Water Resour. Res.* 23, 1059-2069
- H.C. van Ommen, J.W. Hopmans, and S.E.A.T.M. van der Zee, 1989, Prediction of solute breakthrough from scaled soil physical properties, *J. Hydrol.* 105, 263-273

Stellingen

S.E.A.T.M. van der Zee, LUW

- 1 Conceptueel en methodologisch is het schaalprobleem van groot belang voor het onderzoek t.a.v. transport in de bodem. Voor zover dit al onderkend wordt, wordt er onvoldoende rekening mee gehouden.
 - 1a Transport berekeningen voor een aan het veld equivalente bodemkolom doen geen recht aan de horizontale variabiliteit van de bodem zoals deze in de bodemkaarten schematisch tot uitdrukking komt.
 - 1b Transport berekeningen op basis van homogene bodemeenheden zijn ten onrechte gebaseerd op homogeniteit. Voor dergelijke voorspellingen zou de schaal van het onderzoeksgebied gerelateerd moeten worden aan de heterogeniteit binnen en tussen de uiteenlopende bodemeenheden.

- 2 Er is geen reden om aan te nemen dat chemische parameters gemeten voor een paar cc grond een eenduidige relatie hebben met de door chemie gecontroleerde beschikbaarheid van bepaalde componenten voor gewassen en vegetaties met een doorworteld bodemvolume van de orde van grootte van liters of groter.

- 3 Fluxconcentraties zijn maatgevend voor de uitspoeling van chemicaliën in het grondwater. Wanneer de hydraulische parameters van plaats tot plaats variëren geven voorspellingen gebaseerd op resident concentraties vermenigvuldigd met het gemiddeld specifiek debiet op een bepaalde diepte een onjuist beeld van de uitspoeling (een onderschatting). Deze fout is kleiner naarmate bijv. de retardatie groter is en tevens ruimtelijk sterk variabel.

DEELNEMERSLIJST

DEELNEMERS

Naam	Instantie/adres	Telefoonnummer
P. van Beelen	RIVM Postbus 1 3720 BA BILTHOVEN	030-749111
R.H. Boekelman	TU-Delft, Vakgr. Gezondheidstechniek & Waterbeheersing Postbus 5048 2600 GA DELFT	015-784901
W. de Boer	Instituut voor Oecologisch Onderzoek Boterhoeksestraat 22 6666 GA HETEREN	08306-91306
G.H. Bolt	Englaan 26 6703 EX WAGENINGEN	08370-13496
A.M.T. Bongers	LUW, Vakgr. Nematologie Postbus 8123 6700 ES WAGENINGEN	08370-83350
T.N.P. Bosma	Programmabureau Bodemonderzoek Postbus 37 6700 AA WAGENINGEN	08370-84170
J. Bouma	LUW, Afd. Bodemkunde/Geologie Postbus 37 6700 AB WAGENINGEN	08370-84438
W. Bouten	UvA, Fysisch Geografisch en Bodemkundig Lab. Dapperstraat 115 1093 BS AMSTERDAM	020-5257412
A. Breeuwsma	Staring Centrum Postbus 125 6700 AC WAGENINGEN	08370-19100
G.J.H. Broerken	DHV Raadgevend Ingenieursbureau Postbus 85 3800 AB AMERSFOORT	033-682943

DEELNEMERS

Naam	Instantie/adres	Telefoonnummer
L. Brussaard	Instituut voor Bodemvruchtbaarheid Postbus 30003 9750 RA Haren	050-337777
J.C. van Dam	TU-Delft, Vakgr. Gezondheidstechniek & Waterbeheersing Postbus 5048 2600 GA DELFT	015-781377
P. Doelman	RIN Postbus 9201 6800 HB ARNHEM DHV (per 1 juni 1990) Postbus 85 3800 AB AMERSFOORT	085-452991 033-689111
R.A. Feddes	LUW, Vakgr. Hydrologie, Bodemnatuurkunde en Hydraulica Nieuwe Kanaal 11 6709 PA WAGENINGEN	08370-82875
J.J.M. van Grinsven	RIVM/LBG Postbus 1 3720 BA BILTHOVEN	030-743397
J. Hoeks	Staring Centrum Postbus 125 6700 AC WAGENINGEN	08370-19100
J.C. Hooghart	CHO-TNO Postbus 297 2501 BD S GRAVENHAGE	070-3496540
L. Lijklema	LUW, Vakgr. Natuurbeheer Postbus 8080 6700 DD WAGENINGEN	08370-84039
J. Notenboom	RIVM Postbus 1 3720 BA BILTHOVEN	030-749111

DEELNEMERS

Naam	Instantie/adres	Telefoonnummer
O. Oenema	Nederlands Meststoffen Instituut Postbus 30003 9750 RA HAREN	050-337317
H.C. van Ommen	Grontmij NV Postbus 203 3730 AE DE BILT	030-207911
P.A.C. Raats	Instituut voor Bodemvruchtbaarheid Oosterweg 92 9751 PK HAREN	050-337352
L.H. van Riemsdijk	LUW, Vakgr. Bodemkunde en Plantevoeding Postbus 8005 6700 EC WAGENINGEN	08370-82339
N.M. de Rooij	Waterloopkundig Laboratorium Postbus 177 2600 MH DELFT	015-569353
W. Salomons	Instituut voor Bodemvruchtbaarheid Oosterweg 92 9751 PK HAREN	050-337777
R.J. Stuurman	DGV-TNO Postbus 285 2600 AG DELFT	015-696010
P.J. Stuyfzand	KIWA N.V. Postbus 1072 3430 BB NIEUWEGEIN	03402-69552
E.J.B. Uunk	RWS-Dienst Binnenwateren/RIZA Postbus 17 8200 AA LELYSTAD	03200-70433
J.A. de Vos	Instituut voor Bodemvruchtbaarheid Oosterweg 92 9751 PK HAREN	050- 337365

DEELNEMERS

Naam	Instantie/adres	Telefoonnummer
W. de Vries	Staring Centrum Postbus 125 6700 AC WAGENINGEN	08370-19100
S.E.A.T.M. van der Zee	LUW, Afd. Bodemkunde & Plantevoeding, Dreijenplein 10 6703 HB WAGENINGEN	08370-82103

Programma

8e CHO-Studiebijeenkomst

BODEMWATERKWALITEIT IN WISSELWERKING MET BIOLOGISCHE, CHEMISCHE EN
HYDROLOGISCHE PROCESSEN

Datum : 8 mei 1990

Plaats : IAC, Lawickse Allee 11, Wageningen

Zaal : G+H

- 09.15 uur Aanmelden (koffie)
- 09.45 uur Opening door de voorzitter van de CHO-TNO,
Prof. dr. ir. J.C. van Dam
- 09.55 uur Inleiding van de dag,
Prof. dr. G.H. Bolt, dagleider
- 10.15 uur HYDROLOGIE
- Inleiding
 Dr. J. Hoeks, Staring Centrum
- Toepassing
 Dr. H.C. van Ommen, Grontmij N.V.
- 10.55 uur Koffie
- 11.30 uur (GEO)CHEMIE:
- Inleiding
 Prof. dr. W.H. van Riemsdijk, LUW, Vakgroep Bodemkunde en
 Plantevoeding
- Toepassing
 Ir. N.M. de Rooy, Waterloopkundig Laboratorium
- 12.10 uur BIOLOGIE
- Inleiding
 Dr. P. van Beelen en Dr. ir. J. Notenboom, RIVM
- Toepassing
 Dr. ir. P. Doelman, RIN
- 12.50 uur Lunch
- 14.00 uur Discussie aan de hand van stellingen, ingedeeld in rubrieken
- 15.15 uur Thee
- 15.30 uur Voortzetting discussie
- 16.15 uur Afronding:
Prof. dr. G.H. Bolt, dagleider
- 16.30 uur Sluiting door de voorzitter van de CHO-TNO,
Prof. dr. ir. J.C. van Dam

COMMISSIE VOOR HYDROLOGISCH ONDERZOEK TNO

RAPPORTEN EN NOTA'S

- No. 1. Tweede rapport en aanbevelingen van de Contactgroep Archivering en Automatische Verwerking van hydrologische gegevens TNO.
Januari 1977.
- No. 2. Verslag en aanbevelingen van de ad hoc-Groep Grondwatermodellen en Computerprogrammatuur TNO.
Juli 1978.
- No. 3. De droogte in 1976.
Een samenvatting en overzicht van de over de droogte van 1976 verschenen literatuur - P.K.M. v.d. Heijde.
Augustus 1978.
- No. 4. Nederlandse activiteiten in internationaal hydrologisch verband.
Lezingserie, gehouden op 25 april 1978 te Delft, aangevuld met (schematische) overzichten van internationale organisaties en een overzicht van hun vertegenwoordigers in Nederland.
Augustus 1978.
- No. 5. Waterkwaliteit in grondwaterstromingsstelsels.
Verslag van de Workshop op 1 en 2 april 1980 te Wageningen - (red. J.C. Hooghart), aangevuld met discussiebijdragen en een inventarisatie van het onderzoek in Nederland.
Augustus 1980.
- No. 6. Derde rapport en aanbevelingen van de Contactgroep Archivering en Automatische verwerking van hydrologische gegevens TNO.
Februari 1981.
- No. 7. Overzicht van de wensen van hydrologen en waterbeheerders ten aanzien van het operationele regenwaarnemingennet van het KNMI - J.C. Hooghart.
Oktober 1981.
- No. 8.*) Verklarende Hydrologische Woordenlijst van de Gespreksgroep Hydrologische Terminologie.
- 8a. I. Water in de onverzadigde zone
 - II. Water in de verzadigde zone
 - Januari 1982.
 - 8b. III. Atmosferisch water
 - Juni 1983.
 - 8c. IV. Oppervlaktewater
 - Maart 1985.

*) Verouderd: vervangen door Rapporten + Nota's no. 16.

- No. 9. Waterkwaliteit en waterkwantiteit in het IJsselmeergebied.
Verslag van de 2e CHO-studiebijeenkomst op 2 en 3 november 1981, De Eemhof, Zuidelijk Flevoland - (red. J.C. Hooghart), aangevuld met discussiebijdragen.
Februari 1982.
- No. 10. Rapport en aanbevelingen
van de Contactgroep Grondwatermodellen, CHO-TNO.
April 1982.
- No. 11. Inventarisatie Grondwaterkwaliteitsmodellen.
L.J.M. Boumans.
Oktober 1982.
- No. 12. Grondwaterkwaliteit in relatie met onderzoek en beleid.
Verslag van de 3e CHO-studiebijeenkomst op 15 maart 1983 te Wageningen -
(red. J.C. Hooghart), aangevuld met discussiebijdragen.
Juni 1983.
- No. 12a. Voorlopig overzicht van inventarisaties waarin grondwater(kwaliteits)modellen
voorkomen of hiermee in verband staan.
J.C. Hooghart.
Januari 1984.
- No. 13. Vergelijking van modellen voor het onverzadigd grondwatersysteem en de
verdamping.
Verslag van de 4e CHO-studiebijeenkomst op 24 oktober 1984, georganiseerd in
samenwerking met de Studiegroep Hupselse Beek - (red. J.C. Hooghart).
Maart 1985.
- No. 14. Meten, meetnetten en optimale meetnetontwerpen ten dienste van het
waterbeheer.
Verslag van:
- Voorjaarsbijeenkomst van de KIVI Sectie Waterbeheer:
"Meten voor waterbeheer", mei 1984.
- Colloquium van de Studiegroep Statistiek in de hydrologie CHO-TNO:
"Meetontwerp en optimalisatie", november 1984.
(red. P. v.d. Kloet en J.C. Hooghart).
Januari 1986.
- No. 15. Het hydrologisch systeem in het grensgebied Luik-Maasbracht.
Le système hydrologique dans la région frontalière Liège- Maasbracht.
Verslag van de 5e CHO-studiebijeenkomst op 13 december 1985, georganiseerd
in samenwerking met de Nationale IHP-comité's van België en Nederland en de
Contactgroep Hydrologie van het Nationaal Fonds voor Wetenschappelijk
Onderzoek uit België.
(red. J.C. Hooghart).
April 1986.

- No. 16. Verklarende Hydrologische Woordenlijst van de Gespreksgroep Hydrologische Terminologie, waarin opgenomen de hoofdstukken:
I Algemene termen
II Atmosferisch Water
III Water in de onverzadigde zone
IV Water in de verzadigde zone
V Oppervlaktewater
Oktober 1986, hernieuwde uitgave.
- No. 17.*) Duurzaamheid rioolleidingen; een literatuurstudie naar aantastingsmechanismen.
R.B. Polder.
Februari 1987.
*) Uitverkocht.
- No. 18. Ruimtelijke variabiliteit van bodem en water.
Verslag van de 6e CHO-studiebijeenkomst op 22 oktober 1986.
(red. J.C. Hooghart).
Februari 1987.
- No. 19. Van Penman naar Makkink; een nieuwe berekeningswijze voor de klimatologische verdampingsgetallen.
Eindrapport van de KNMI-Projectgroep en de CHO-Begeleidingsgroep Verdampingsberekeningen.
(red. J.C. Hooghart en W.N. Lablans).
December 1988.
- No. 20. Tijdreeksen in bodem en water.
Inleidingen van de lezingendag van de NRLO-Werkgroep Ruimtelijke Variabiliteit in Bodem en Water en de CHO-Studiegroep Statistiek in de Hydrologie op 25 januari 1989.
December 1988.
- No. 21. Neerslagmeting en -voorspelling; toepassing van modern technieken, zoals radar- en satellietwaarnemingen.
Verslag van de 7e CHO-studiebijeenkomst, georganiseerd in samenwerking met SAMWAT, op 16 november 1988.
(red. J.C. Hooghart).
Februari 1989.
- No. 22. Integraal Waterbeheer in het Goois/Utrechts stuwwallen- en plassen gebied.
Verslag van de op 7 april 1989 in Bussum gehouden themadag, georganiseerd door het Zuiveringschap Amstel en Gooiland en de Provincie Utrecht, in samenwerking met de CHO-TNO.
(red. L. van Liere, R.M.M. Roijackers en P.J.T. Verstraelen).
Augustus 1989.

No. 23. Bodemwaterkwaliteit in wisselwerking met biologische, chemische en hydrologische processen.
Verslag van de 8e CHO-studiebijeenkomst op 8 mei 1990.
(red. J.C. Hooghart)
September 1990.

Voor bestellingen en informatie: CHO-TNO
Postbus 297
2501 BD S GRAVENHAGE
(vanaf 1 januari 1991:
Postbus 67
2600 AB DELFT)

