Het gedrag van fosfaat bij duininfiltratie

Samenvatting

Fosfaat blijkt zich vanuit infiltratieplassen over grote afstanden in de duinen te verplaatsen.
M.b.t. het verspreidingsgedrag van fosfaat is de kinetiek van het bindingsproces aan de grond een onderscheidend criterium.
T.o.v. de verblijftijd van het water snelle adsorptie resulteert in langzaam voortschrijdende fosfaatfronten, die een ruimtelijke weerspiegeling zijn van de invoerconcentraties in de loop der tijd, en die slechts door dispersie worden afgevlakt. Bij t.o.v. de verblijftijd langzame adsorptie spelen zowel de bindingskinetiek als de dispersie een rol bij de afvlakking van fosfaatfronten. Bij zeer trage adsorpties wordt het front zo vlak dat veranderingen aan de inputzijde direct aan de outputzijde meetbaar zijn.
Een analyse van gegevens op stroomlijnniveau levert aanwijzingen dat snelle adsorptie optreedt in veen, en langzame adsorptie in zand. De reactiesnelheid van de binding in zand lijkt onder infiltratieomstandigheden in de orde-grootte van enige procenten per dag; de binding is zeer labiel.

Gezien de input-outputkarakteristiek voor Meijendel (DWL-'s-Gravenhage) als geheel is voor dit gebied snelle adsorptie dominant. De retentietijd is mogelijk 10 à 12 jaar. Berkheide (LDM) vertoont input-outputcurven die zouden kunnen duiden op een gemengd systeem: een snelle adsorptie met een retentietijd van rond de 6 jaar, en een langzame adsorptie die nu grotendeels is verzadigd. Een vergaande voorzuivering zal in beide gebieden een negatieve fosfaatretentie (door desorpties) kunnen opleveren; na deze periode zal de retentie zijn wat zij ook zonder voorzuivering zou zijn geweest (nl. vrijwel nul), maar zal het gewonnen water, evenals het grondwater in de snel afstromende gebiedsdelen, een laag fosfaatgehalte bezitten. Terugkeer van authentieke vochtige duinvegetaties is in het grootste deel van de gebieden niet te verwachten, of zeer onzeker.

Als gekozen wordt voor een methode van waterwinning die het freatisch vlak niet beïnvloedt zullen grote delen van Meijendel en Berkheide weer vochtig worden. In dit geval zijn er wel duidelijke perspectieven voor het natuurbehoud. Een beperkt aantal jaren doorspoelen van plasbodems en -oevers met ver voorgezuiverd water kan als overgangsmaatregel vanuit het oogpunt van regeneratie-beheer gewenst zijn.



W. T. DE GROOT
Centrum voor Milieukunde, Leiden

1. Inleiding

Zoals o.a. blijkt uit onderzoek van Van Dijk [1979], is een verspreiding van fosfaat vanuit infiltratiebekkens naar vaak honderden meters stroomafwaarts gelegen kwelgebieden meetbaar, evenals de eutrofiërende invloed van deze stof op de vochtige vegetaties. De adsorptiecapaciteit van duingrond is blijkbaar beperkt.

In dit artikel zal het gedrag van fosfaat in de duinen nader worden geanalyseerd, tegen de achtergrond van het belang van de duinen voor het natuurbehoud [Udo de Haes, 1980]. Daar het vooral gaat om praktische voorspellingen ligt de nadruk op het globale input - outputgedrag, en niet op de chemische mechanismen.
Vragen die aan de orde zullen komen zijn:

— welke adsorptievormen zijn te onderscheiden?

— Hoe is aan de hand daarvan het fosfaatgedrag wiskundig te formuleren?

— Wat is de rol van dispersie hierin?

— Hoe gedraagt het fosfaat zich empirisch op gebiedsniveau en op het niveau van de afzonderlijke stroomlijn?

— Zijn deze waarnemingen compatibel en in de theorie in te passen?

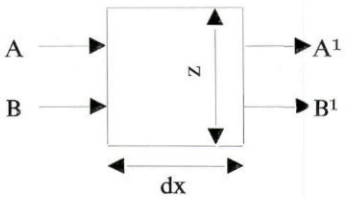
— Wat is globaal de toekomstverwachting?

— Wat zijn daarvan de consequenties voor het natuurbehoud?

2. (T.o.v. de verblijftijd) snelle en langzame adsorptie

In dit artikel wordt onder 'dispersie' verstaan: alle vervlakking van oorspronkelijk scherpe fosfaatfronten door fysische invloeden, dus de som van moleculaire diffusie, hydrodynamische dispersie in strikte zin en het effect van verschillende k-waarden van de grond. 'Adsorptie' is hier de som van alle reversibele bindingsprocessen van fosfaat aan grond (adsorptie in strikte zin, chemosorptie en reversibele neerslagvorming).

Als een volume grond en water wordt beschouwd waarin water en opgeloste stof slechts horizontaal en eenparig bewegen, luidt de continuïteitsvergelijking voor fosfaat, als A en A^1 de massastromen zijn t.g.v. convectie en B en B^1 die t.g.v. dispersie:



$$\text{berging} = A + B - A^1 - B^1 \qquad (1)$$

De berging kan worden uitgedrukt als de verandering van de totale hoeveelheid fosfaat in het volume:

$$\text{berging} = \frac{\partial P_{tot}}{\partial t} \,.\, dx \,.\, z.$$

waarin P_{tot} de concentratie totaal-fosfaat is. Met v als de werkelijke grondwatersnelheid geldt voor de stromen A^1 en A, met P als de concentratie opgelost fosfaat en n als het poriënvolume:

$$A = P \,.\, v \,.\, n \,.\, z$$

$$A^1 = (P + \frac{\partial P}{\partial x} dx)\, v \,.\, n \,.\, z$$

De dispersieve stroming van fosfaat is rechtevenredig met de concentratiegradiënt:

$$B = -D \frac{\partial P}{\partial x} \,.\, z \,.\, n$$

$$B^1 = -D \{\frac{\partial P}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x}(\frac{\partial P}{\partial x})\, dx\}\, z \,.\, n$$

Hier is D de dispersiecoëfficient.
Ingevuld in vgl. 1, gedeeld door dx . z levert dit de differentiaalvergelijking

$$\frac{\partial P_{tot}}{\partial t} - n\, D \frac{\partial^2 P}{\partial x^2} + vn \frac{\partial P}{\partial x} = 0 \qquad (2)$$

Voor een adsorberende stof bestaat de totaalconcentratie uit de som van de opgeloste en de geadsorbeerde hoeveelheden:

$$P_{tot} = nP + \bar{P}$$

Hierin is $\bar{P}$ de concentratie gebonden fosfaat. Een mogelijke aanname is nu, dat men veronderstelt dat het adsorptie-*evenwicht* zich instelt ruim *binnen de verblijftijd* van het water in het gegeven volume. Dit noemen we hier (t.o.v. de verblijftijd) *snelle adsorptie*; de aanname impliceert dat er een vaste relatie is tussen P en $\bar{P}$. Voor de relatief lage fosfaatconcentraties die in de duinen voorkomen lijkt het gerechtvaardigd aan te nemen dat de z.g. adsorptie-isotherm recht is:

$$\bar{P} = \alpha P$$

Vergelijking (2) wordt dan:

$$(1 + \frac{\alpha}{n}) \frac{\partial P}{\partial t} - D \frac{\partial^2 P}{\partial x^2} + v \frac{\partial P}{\partial x} = 0 \qquad (3)$$

De oplossing is:

$$\frac{P}{P_o}(x,t) = \tfrac{1}{2}\, \text{erfc}\, \{\frac{x - v\frac{t}{1+\alpha/n}}{\sqrt{4D\frac{t}{1+\alpha/n}}}\} \qquad (4)$$

als aan het begin van de stroomlijn de fosfaatconcentratie plotseling wordt verhoogd van nul tot P_o. Hierin is erfc de complementaire 'error-function' (zie bv. Abramowitz en Stegun, 1964). Het gedrag van het opgelost fosfaat bij snelle adsorptie, zoals dat volgt uit vgl (4), is als volgt. Er verplaatst zich een front, met een snelheid $v/(1+\alpha/n)$, d.w.z. $(1+\alpha/n)$maal zo langzaam als het grondwater. Dit front gaat, naarmate het zich verder van de oorsprong verwijdert, van een abrupt front meer en meer over in een afgevlakte vorm. Dit gebeurt des te sterker naarmate de dispersie-coëfficient groter is. Uit de spreiding van een initieel scherp front is D te berekenen. Daarmee is λ, een karakteristieke lengte van het poreuze medium te berekenen, die met D samenhangt volgens

$$D = \lambda v$$

In het laboratorium vindt men vaak een λ in de orde-grootte van de zandkorreldiameter; in inhomogene gronden bij zeer grootschalige praktijkproblemen blijkt λ vaak veel groter (b.v. [Meinardi, 1974], $\lambda \approx 1$ meter). In het eerste geval is het effect van dispersie verwaarloosbaar; in het tweede geval speelt het een grote rol.

Daar erfc (0) = 1 volgt uit vgl (4) dat $\frac{P}{P_o} = \frac{1}{2}$ als $x = vt\,(1+\alpha/n)$. Aan het einde van filter met lengte L, waarin het water een verblijftijd heeft van T_w, treedt dus het front uit na

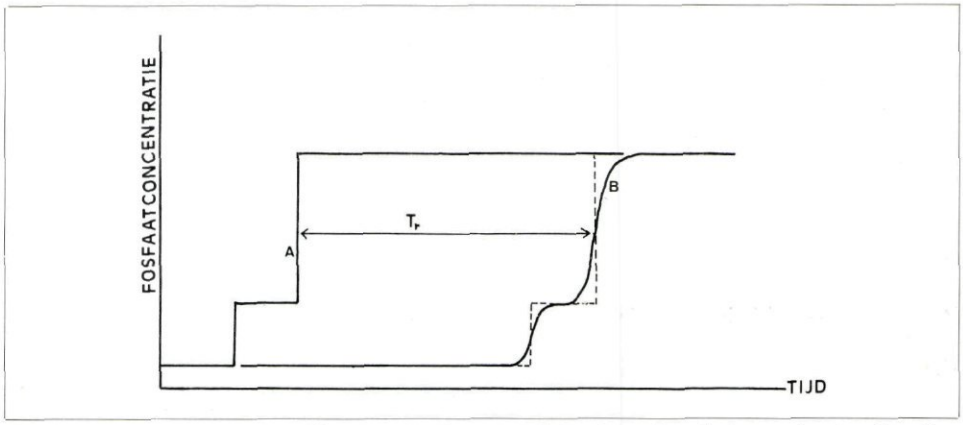
$$T_r = \frac{L}{v}(1+\frac{\alpha}{n}) = (1+\frac{\alpha}{n})\,T_w$$

Deze T_r, de retentietijd, is een constante, en de belangrijkste karakteristiek van een filter (of filterend gebied). Als $t > T_r$ nadert P aan het eind van het filter snel naar P_o. Zie ook afb. 1.
Als $t \ll T_r$ is de uitgangsconcentratie niet gerelateerd aan de ingangsconcentratie.

Samenvattend is het fosfaatgedrag (t.o.v. de verblijftijd) bij snelle adsorptie: er ontstaan fronten in de grond, die een afspiegeling zijn van de invoerconcentratie in de loop der tijd, en die slechts door dispersie worden afgevlakt; bij verwaarloosde dispersie is de output op tijdstip t gelijk aan de input op tijdstip $t - T_r$.

Men kan vgl. (2) ook uitwerken *zonder de aanname dat het fosfaatevenwicht zich ruim binnen T_w instelt*. Dit noemen we hier: (t.o.v. de verblijftijd) *langzame adsorptie.*

$\bar{P}$ moet dan als niet alleen afhankelijk van P worden beschouwd. Men kan aannemen dat per tijdseenheid optreden adsorptie rechtevenredig aan een fractie van het opgelost fosfaat en de mate waarin er nog adsorptie-capaciteit niet is opgevuld door reeds geadsorbeerd fosfaat:



Afb. 1 - Input en output bij snelle adsorptie. Retentietijd: T_r. Lijn A is de input, de stippellijn de output bij verwaarloosbare dispersie, en lijn B de door dispersie afgevlakte output. Kenmerkend is een vertraagde, sprongsgewijze reactie.

$$\frac{\partial \bar{P}}{\partial t} = \beta P\,(1 - \frac{\bar{P}}{CAP})$$

Hierin is β de reactiesnelheid als er nog geen accumulatie is opgetreden, en CAP de adsorptie-capaciteit. Als weer wordt gesteld:

$\bar{P}_{\text{bij } t \to \infty} = CAP = \alpha P$, dan volgt:

$$\frac{\partial \bar{P}}{\partial t} = \beta\,(P - \frac{\bar{P}}{\alpha}) \qquad (5)$$

Als in vgl (2) wordt gesteld

$$\frac{\partial P_{tot}}{\partial t} = n\frac{\partial P}{\partial t} + \frac{\partial \bar{P}}{\partial t}$$

wordt de algemene differentiaalvergelijking voor adsorptie:

$$\frac{\partial P}{\partial t} + \frac{\beta P}{n} - \frac{\beta \bar{P}}{\alpha n} - D\frac{\partial^2 P}{\partial x^2} + v\frac{\partial P}{\partial x} = 0 \qquad (6)$$

De parameters α en β zijn o.a. te berekenen uit een batch-experiment. Immers, onder de voorwaarden P_{tot}=constant, D=0 en v=0 wordt vgl. (6):

$$\frac{dP}{dt} + \beta(\frac{\alpha+n}{\alpha n})P - \frac{\beta}{\alpha n}P_{tot} = 0$$

waarvan de oplossing is

$$\frac{P}{P_{tot}} = \frac{\alpha n}{\alpha+n}e^{-\beta(\frac{\alpha+n}{\alpha n})t} + \frac{1}{\alpha+n}$$

Een in dit verband interessantere oplossing wordt verkregen door de aanname dat *de accumulaties $\bar{P}$ nog gering zijn t.o.v. de capaciteit αP*. Beschreven wordt dan de eerste periode van een langzame adsorptie. Voor zeer trage adsorptievormen, waarvoor geldt $CAP/\beta P \ll T_w$, kan dit een periode zijn van jaren. Vgl. (6) wordt:

$$\frac{\partial P}{\partial t} + \frac{\beta P}{n} - D\frac{\partial^2 P}{\partial x^2} + v\frac{\partial P}{\partial x} = 0 \qquad (7)$$

De oplossing, weer voor een eenmalig aangelegde invoerconcentratie P_o, gevonden door Grobner en Hofreiter (1949), en genoemd in Bear [1969] is:

$$2\frac{P}{Po} = e^{\frac{x}{2\lambda}+\gamma x}\,\text{erfc}\frac{x+\partial t}{\sqrt{4Dt}} + e^{\frac{x}{2\lambda}-\gamma x}\,\text{erfc}\frac{x-\partial t}{\sqrt{4Dt}} \qquad (8)$$

met

$$\gamma = \sqrt{\frac{1}{4\lambda^2} + \frac{\beta}{\lambda v n}}$$

en

$$\partial = \sqrt{v^2 + \frac{4D\beta}{n}}$$

Deze oplossing vereenvoudigt sterk als wordt aangenomen: $vt > x$.
Dit betekent dat de oplossing alleen juist is voor de periode ruim na éénmaal de verblijftijd van het water in het filter. Voor een gebied tussen infiltratieplas en drain betekent dit een periode van enige maanden. Er geldt dan:

$$(\frac{x+\partial t}{\sqrt{4Dt}})^2 \approx \frac{vt}{4\lambda} + \frac{\beta t}{n} + \gamma x$$

en tevens dat:

$$\frac{vt}{4\lambda} + \frac{\beta t}{n} + \gamma x \gg \frac{x}{2\lambda} + \gamma x$$

Dat wil zeggen, dat het kwadraat van de operand van de eerste erfc-functie van vgl. (8) groter is dan de operand van de eerste e-macht. Daar geldt:

$$\lim_{z\to\infty} e^{z^2}.\,\text{erfc}\,z = 0$$

(Abramowitz en Stegun, afb. 7.1) nadert de eerste term van vgl. (8) naar nul. De operand van de tweede erfc-functie wordt, onder dezelfde voorwaarde, sterk negatief. De functie nadert dan naar 2. Onder de

verzamelde aannamen
- langzame adsorptie
- $\overline{P} \approx 0$ (dus: accumulatie nog niet van invloed
- t > verblijftijd van het water

wordt de oplossing van vgl. (6) dus:

$$\frac{P}{P_o}(x) = e^{\frac{x}{2\lambda} - \gamma x}$$

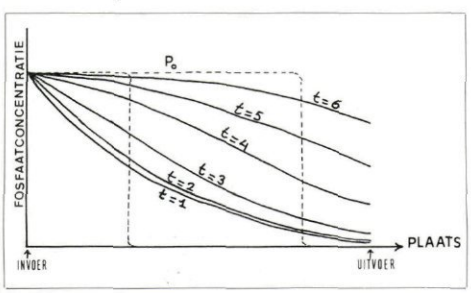
$$\frac{P}{P_o}(x) = e^{-\frac{x}{2\lambda}\left(\sqrt{1 + \frac{4\lambda\beta}{n}} - 1\right)} \qquad (9)$$

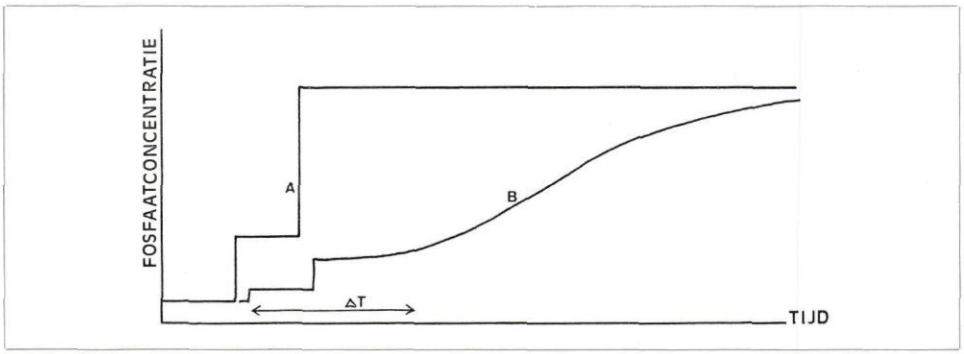
Deze uitdrukking is onafhankelijk van t.
Zolang $\overline{P} \approx 0$ is dus de vorm van de P/P_o-curve constant. Als β klein genoeg is om aan de outputzijde een meetbare concentratie te doen optreden zal bij bij bijv. een verdubbeling van P_o, deze verdubbeling (buiten de verblijftijd van het water) *onvertraagd* uittreden. Te zien is ook, dat er twee spreidende mechanismen zijn: de x – P – curve wordt vlakker naarmate de dispersiviteit van het medium (λ) groter is en naarmate de adsorptie trager is (β is kleiner). Als dispersie wordt verwaarloosd ($\lambda \approx o$) blijkt, via een ontwikkeling met een Taylorreeks,

$$\frac{P}{P_o}(x) = e^{-\frac{\beta}{n\nu} \cdot x} \qquad (10)$$

Zolang de opgetreden accumulatie relatief klein is volgt dus de fosfaatconcentratie in de grond de vorm van een negatieve e-macht. Dit is de lijn bij t = 1 in afb. 1. Te zien is ook, hoe de zuiverende werking bij een stroomlijnlengte L afhangt van $\frac{L}{\nu}$, de verblijftijd of 'contacttijd' van het water.
Vgl. (6) is niet opgelost voor latere tijdstippen, waarin door de accumulaties $\frac{\partial \overline{P}}{\partial t}$ variabel wordt. De in afb. 2 gegeven lijnen voor t > 1 zijn meer intuïtieve krommen, gebaseerd op het feit dat de krommen eerder vlakker gaan lopen op plaatsen, waar, door een hoge P, $\overline{P}$ snel groeit (zie vgl. (5)).

Afb. 2 - Karakteristieke concentratielijnen langs een stroomlijn bij langzame adsorptie met een hoog initieel retentiepercentage. Bij t = 0 is de invoerconcentratie verhoogd van 0 tot P_o. Vgl. (9) beschrijft de lijnen voor t = 1 en t = 2. Na die tijd gaat de accumulatie een rol spelen en daalt het retentiepercentage. De stippellijnen representeren voortschrijdende fosfaatfronten bij een snelle adsorptie.





Afb. 3 - Input (A) en output (B) bij langzame adsorptie. Het initieel retentiepercentage is 80; ΔT is de tijd waarvoor de aannamen $t > v \cdot x$ en $P \approx 0$ bij benadering gelden. Kenmerkend is de snelle, maar sterk afgevlakte reactie. Bij niet verwaarloosbare dispersie wordt de output nog verder afgevlakt.

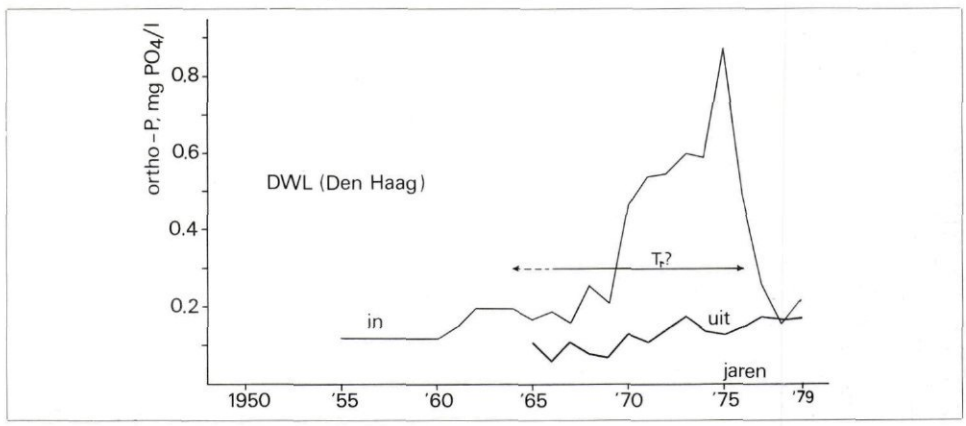
De belangrijkste algemene kenmerken van langzame adsorptie zijn: er is geen vertraging (buiten de verblijftijd van het water) tussen een verandering in de input-concentratie en de respons aan het filtereinde; de verhouding tussen input- en output-concentraties is eerst constant voor elke invoerconcentratie (vgl. 9) en nadert daarna, bij gelijkblijvende invoerconcentraties, langzaam naar 1. Zie ook afb. 3.

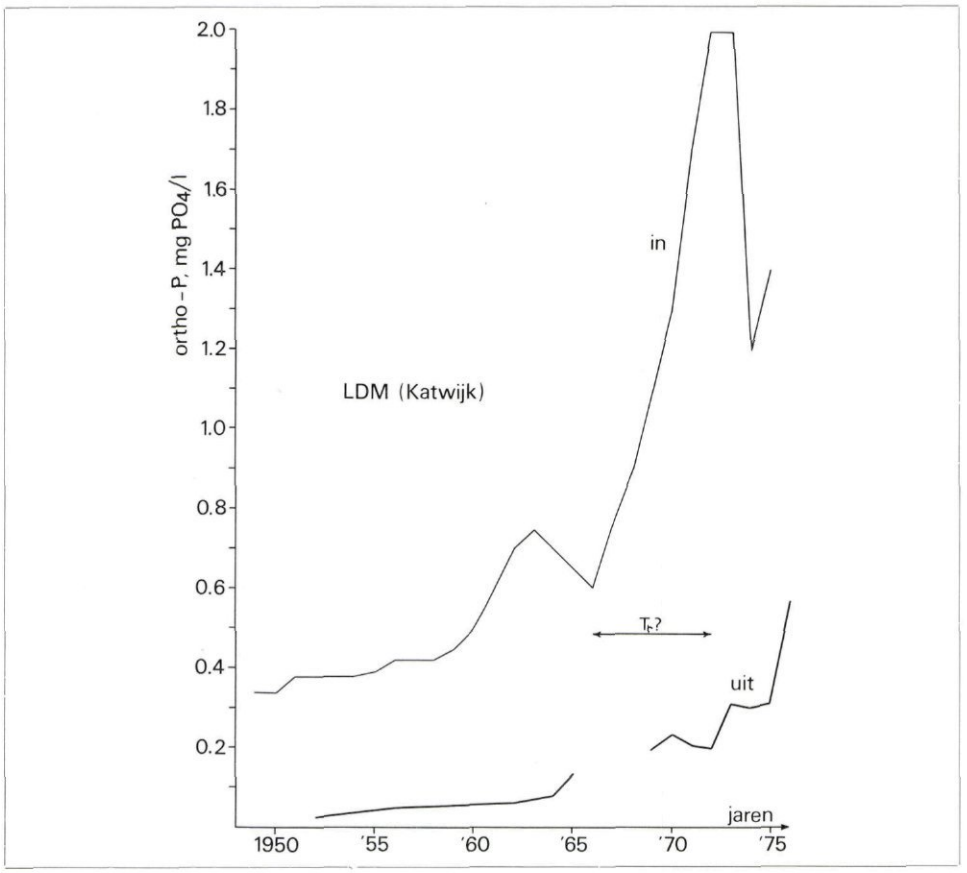
Het bovenstaande waren uitwerkingen van twee extreme vormen van vgl. (2). De ontwikkelde globale concepten van snelle en langzame adsorptie kunnen echter worden gebruikt om meer inzicht te krijgen in het fosfaatgedrag in de duinen.
Dit is het onderwerp van de volgende paragrafen.

3. Het gedrag van fosfaat op gebiedsniveau

Steenkamp [1979] heeft berekend dat in ieder van de infiltratiegebieden van de Duinwaterleiding 's-Gravenhage (DWL), Leidsche Duinwatermaatschappij (LDM) en Gemeentewaterleidingen Amsterdam (GWA) ongeveer 300 ton PO_4 is geaccumuleerd. Hij deed dit op basis van de voor de invloed van het diep gewonnen water gecorrigeerde input-outputcurven, weergegeven in afb. 4.
In de grafiek van de DWL blijkt er geen onvertraagd verband te bestaan tussen input- en outputniveau's; ook na de voorzuivering van 1976 blijven de output-concentraties op het niveau van de jaren daarvoor, zijnde ongeveer 3 maal zo hoog als het oorspronkelijk bovenduinwater. Hier moet dus snelle adsorptie de dominante adsorptievorm zijn. Een schatting van de retentietijd is op basis van deze afb. nog moeilijk te maken. Hoewel de verblijftijdsspreiding op jaarbasis een geringe rol zal spelen, zal de output er altijd iets door deformeren, en de regen zal een iets verlagende invloed hebben. Gezien het feit dat de outputniveau's van de jaren na 1973 slechts iets verlaagd zijn t.o.v. inputniveau's van de eerste jaren na 1962 zou men een retentietijd kunnen postuleren van 10 à 12 jaar. Als in de komende jaren de fosfaatconcentraties van het gewonnen water niet sterk stijgen is deze hypothese gefalsificeerd, en moet naar andere verklaringen worden gezocht. Als snelle adsorptie op

Afb. 4 - Orthofosfaatconcentraties van het oppervlakkig geïnfiltreerde en gewonnen water, voor DWL–'s-Gravenhage en LDM. Jaargemiddelden van de gehele gebieden.





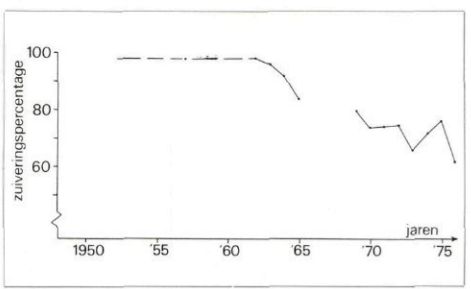
Vervolg afb. 4.

gebiedsniveau een goede verklaring is, is de toekomstverwachting, gegeven een constant voorgezuiverd invoerniveau en constante adsorptie-beïnvloedende omstandigheden als de pH, als volgt. Na passage van hoge fosfaatconcentraties in de jaren tachtig zal het gewonnen water de kwaliteit van het infiltratiewater krijgen. In de gebieden met hoge stroomsnelheden zal ook het grondwater dan vrijwel de infiltratiekwaliteit hebben. In langzaam afstromende (kwel)-gebieden zal, naarmate de afstand tot de infiltratieplas groter wordt, de regen een wat grotere rol gaan spelen [Van Dijk, 1979]; het zal echter, vanwege de lage stroomsnelheden, daar zeker langer duren voordat de fronten van hoge fosfaatgehalten zijn gepasseerd.

De grafiek van de LDM vertoont een moeilijker te interpreteren beeld. Aan de outputzijde ontbreekt een aantal jaren waarvan het jaarverslag van het bedrijf geen fosfaatgehalten meldt (1966/67/68). Daar de outputwaarden zijn berekend op basis van de reinwater-gegevens ontbreken tevens de jaren na 1976, toen de LDM een ijzerdosering in de nazuivering introduceerde. Bij globale beschouwing van de grafiek vallen twee kenmerken op. De stijging in de inputconcentraties vanaf ongeveer 1959 wordt aan de outputzijde pas gevolgd in 1965. Dit zou dus duiden op een snelle adsorptie met een retentietijd van ongeveer 6 jaar. Het dal in de inputconcentraties van 1966 komt dan tevens mooi overeen met dat in de outputconcentraties van 1972. Snelle adsorptie alléén zou echter een constant retentiepercentage moeten opleveren van om en nabij de nul als output-concentraties worden gecombineerd met inputconcentraties van 6 jaar daarvoor. Dit is duidelijk niet het geval.

Afb. 5 geeft deze retentie-percentages, voor zover berekenbaar. Ze zijn berekend door eerst de natuurlijke outputconcentratie van het bovenpakket af te trekken van de gemeten outputconcentratie, en de input en output te combineren, met een vertraging van 6 jaar. Het beeld dat nu ontstaat is globaal dat van een langzame adsorptie,

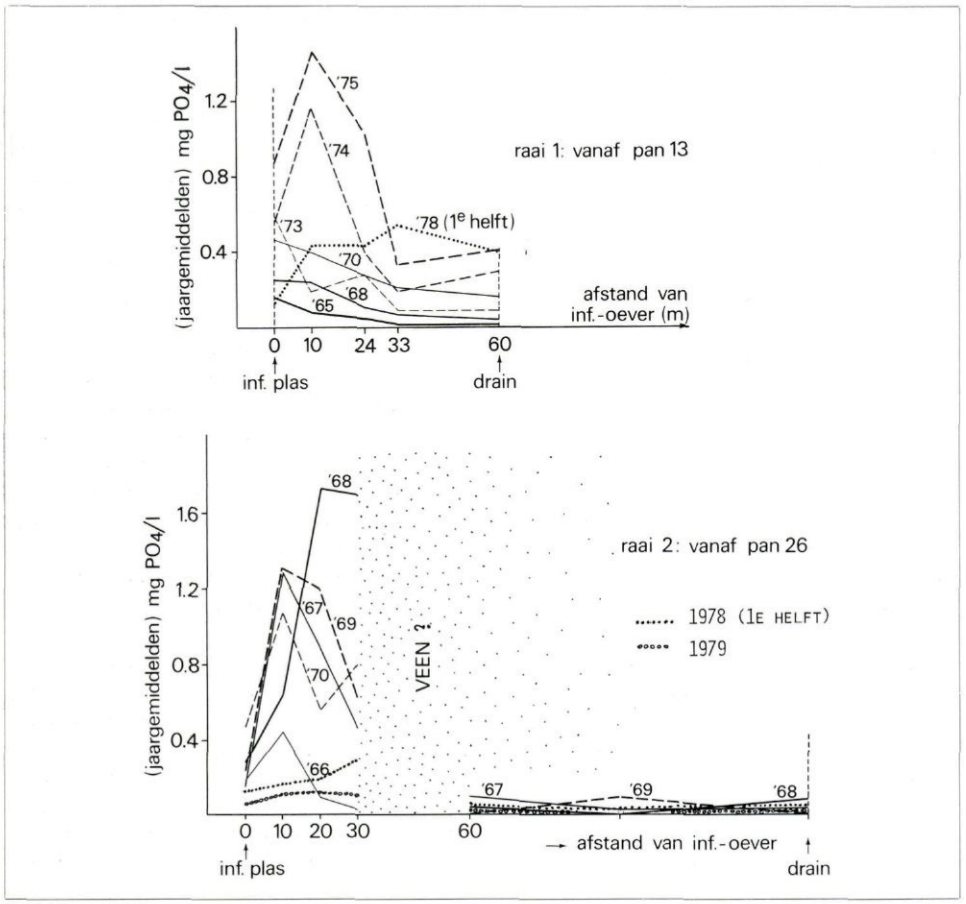
Afb. 5 - Retentiepercentage van de gepostuleerde langzame adsorptiecomponent van de fosfaatretentie in Berkheide (LDM).



met een dalend zuiveringspercentage vanaf 1965. Tentatief zou men een gemengd adsorptiesysteem kunnen veronderstellen: er is een snelle adsorptie met een relatief lage retentietijd, en daarnaast een langzame adsorptie die ondanks hoge initiële retentiepercentages, in 1976 al voor een groot deel is verzadigd. In theorie zou de langzame adsorptie-component een geleidelijke daling van het zuiveringspercentage te zien moeten geven. Nog te verklaren zijn dus de relatief hoge percentages van 1971/72 en 1974/75. Deze staan mogelijk in verband met het in gebruik nemen van nieuwe infiltratieplassen juist ongeveer 6 jaar voor die perioden, nl. 1965 en 1967/68/69. Nieuwe plassen geven in hun eerste jaar een zuivering van bijna 100 %; 6 jaar na de aanleg treden echter de hoge inputconcentraties uit, en valt het zuiveringspercentage van het gebied als geheel terug tot bijna wat het zonder de nieuwe plassen geweest zou zijn.
Sinds 1976 voegt de LDM in de meeste zomermaanden ijzer toe aan het infiltratiewater. Verwacht kan worden dat in de nabije toekomst een werkelijke voorzuivering kan worden gerealiseerd, en dat de inputconcentraties sterk zullen dalen. In de snel afstromende gebieden tussen infiltratieplassen en drains zal de snelle adsorptiecomponent een tendens veroorzaken dat vroegere hoge invoerconcentraties in 6 jaar zijn afgevoerd; veel hangt echter af van de snelheid en de mate van de reversibiliteit van de langzame adsorptie-component. Deze zal in de volgende paragraaf aan de orde komen.

4. Het gedrag van fosfaat op stroomlijnniveau

Afb. 6 geeft de orthofosfaatgehalten in het grondwater (jaargemiddelden) in twee stroomlijnen tussen infiltratieplas en drain, zoals gemeten door Van Puffelen (DWL) en verzameld door Van Dijk [1980]. De verblijftijd van het water in raai 1 is 40, en in raai 2 210 dagen. Raai 1 is over zijn geheel zandig, terwijl zich in raai 2 zacht veen bevindt. De plaats waar dit veen in de afbeeldingen is ingetekend is hypothetisch, als verklaring van de zeer grote verschillen tussen de meetpunten op 30 en 60 meter.
In raai 1 worden in de jaren t/m 1970 langzaam dalende gehalten opgelost fosfaat gemeten, die volgens vgl. (9) karakteristiek zijn voor langzame adsorptie, maar ook veroorzaakt zouden kunnen zijn door een snelle adsorptie met een extreem hoge dispersie (λ in de orde-grootte van 40 meter). De werkelijke λ van de raai kan worden geschat uit de input en output van een niet adsorberende stof, bv. chloride. Afb. 7



Afb. 6 - Orthofosfaatgehalten in het grondwater in twee stroomlijnen in Meijendel tussen infiltratieplas en drain. De verblijftijden van het water zijn resp. 40 en 210 dagen. Bron: Van Dijk [1979]. (Jaargemiddelden op basis van maandelijkse metingen.)

geeft, voor het eerste halfjaar van 1969 de bijna dagelijks gemeten input van raai 1, en de meer incidenteel gemeten output. De verblijftijd van het water in deze periode blijkt vrijwel constant op 40 dagen te liggen. Uit het feit dat de outputpunten vrijwel precies op de inputlijn vallen zou men kunnen opmaken dat dispersie in deze raai geheel geen rol speelt ($\lambda \approx 0$).

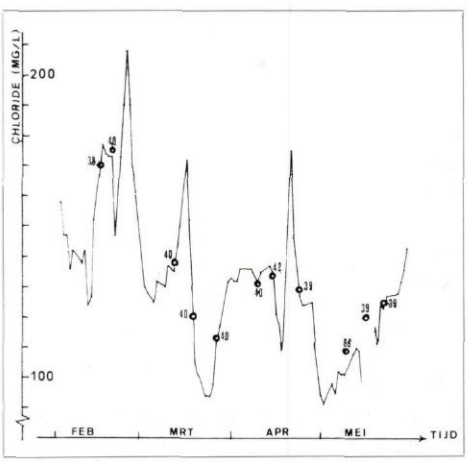
Een voorzichtiger conclusie is, dat door dispersie de input over een periode van minder dan ongeveer 10 dagen in de output als gemiddelde tot uitdrukking komt. Uit dit laatste is met vgl. (4) (met $\alpha = 0$), te berekenen dat $\lambda \leq 0{,}20$ m. De fosfaatadsorptie is blijkbaar niet snel. Hoe langzaam de adsorptie is kan worden nagegaan door β te berekenen via vgl. (9). In de eerste periode geldt: $\frac{P_1}{P_o} = 0{,}1$ à $0{,}2$; met $0 \leq \lambda \leq 0{,}20$ volgt $\beta = 0{,}01$ à $0{,}02$. In maagdelijk zand absorbeert dus 1 à 2 % van het aanwezige opgelost fosfaat per dag. Gegeven de verblijftijd van het water in raai 1 is dus de adsorptie inderdaad langzaam. De orde van grootte van deze adsorptiesnelheid is in tegenspraak met wat Beek [1979] vindt voor Oostnederlandse zanden in zuurstofrijke omstandigheden, maar lijkt door recente experimenten van de Vakgroep Milieubiologie van de Rijksuniversiteit Leiden te kunnen worden bevestigd (drs. G. Janze, mond. med.). In de jaren na 1970 (en in raai 2 reeds vanaf 1966) wordt het beeld verstoord: onder invloed van veranderingen in capaciteitsbepalende factoren gaan blijkbaar plaatselijk zoveel fosfaten in oplossing dat concentraties ontstaan, hoger dan ooit gemeten in het infiltratiewater. De pH varieert in tijd en plaats nauwelijks; er zijn echter indicaties [De Groot, 1979] dat deze desorpties negatief gecorreleerd zijn met verschillen in de NO_3^-/NH_4^+-verhouding op de meetpunten. De verklarende hypothese luidt: een dalende NO_3^-/NH_4^+-verhouding is een indicatie van een dalende redox-potentiaal; hierdoor gaat het voorheen als Fe^{3+} gebonden ijzer als Fe^{2+} in oplossing, tezamen met het daaraan geadsorbeerde fosfaat.

Van raai 2 vertonen de eerste trajecten tussen 0 en 30 meter desorptieverschijnselen die mogelijk analoog zijn aan die in raai 1. Het tweede gedeelte van deze raai vertoont echter een geheel ander beeld: constante zeer lage fosfaatgehalten over de gehele meetperiode. In het traject tussen 30 en 60 meter blijkt een vertraging tussen in- en uitvoerconcentratievariaties te bestaan van minstens 12 jaar, hoewel de verblijftijd van het water tussen deze punten slechts 42 dagen is. Snelle adsorptie is op dit traject dus de dominante adsorptievorm. Het is zeer wel mogelijk dat dit veroorzaakt wordt door ter plaatse gesitueerd veen. Metingen van de fosfaatconcentraties op punten tussen de 30 en 60 meter kunnen uitsluitsel geven over de vraag of er een fosfaatfront is te onderkennen en, zo ja, hoe ver dit is gevorderd.

Van de LDM zijn geen stroomlijngegevens bekend. Wel is het zo, dat in de drainagekanalen 3 en 4 als gemiddelde van 1979 (21 waarnemingen) een orthofosfaatgehalte van 1,2 mgPO_4/l werd gemeten, en dus het zuiveringspercentage van de langzame adsorptie, naar verwachting, reeds verder lijkt te zijn gedaald. (mond. med. ir. D. Mus). De stelling dat veen verantwoordelijk is voor verschijnselen van snelle adsorptie vindt enige ondersteuning op het gebiedsniveau. Bij de DWL (en de hier niet behandelde GWA) is snelle adsorptie op gebiedsniveau dominant, en bij de LDM niet; de gebieden van DWL en GWA zijn rijk aan (doorstroomd) veen, het LDM-gebied niet. De voorlopige conclusie kan dan ook luiden: waarschijnlijk vindt (t.o.v. de vigerende verblijftijden) langzame adsorptie plaats in de zandige gronden, en snelle adsorptie in veen. In zand vormt mogelijk ijzer het op de korte termijn belangrijkste adsorptiecomplex.

Gezien de hoogte en de breedte van de desorptie-pieken in afb. 6 moet worden verondersteld dat de binding van fosfaat in zandige grond zeer labiel is, en waarschijnlijk geheel reversibel. Dit impliceert dat bij langzame adsorptie zich zonder vertraging

Afb. 7 - Getrokken lijn: invoerconcentraties (chloride) van raai 1. Punten: de uitvoerconcentraties, in de tijd verschoven over de verblijftijd van het water. Deze is iets variabel; bij de punten staat de geschatte verblijftijd vermeld. Bron: DWL-'s-Gravenhage.



een negatief zuiveringspercentage zal instellen als de invoerconcentraties sterk worden verlaagd (zie ook afb. 6, lijn van 1978). Hoe sneller de desorptie verloopt, hoe hoger de concentraties zullen worden, en hoe sneller het voordien geaccumuleerde fosfaat wordt afgevoerd. Dit brengt ons bij de toekomstverwachting voor de LDM. Zonder voorzuivering is die eenduidig: een voortschrijdende daling van de zuiverende werking van de langzame adsorptie-component, en binnen korte tijd zeer hoge fosfaatgehalten over bijna het gehele infiltratiegebied. Als een voorzuivering wordt gerealiseerd zullen krachtige desorpties optreden. Gezien de retentietijd van de snelle adsorptie-component zullen deze desorpties voor de snel afstromende deelgebieden waarschijnlijk een tiental jaren het beeld bepalen; in langzaam afstromende gebieden is deze periode navenant langer. De uiteindelijke toestand is analoog aan die bij de DWL.

5. Snel en langzaam: een nadere beschouwing

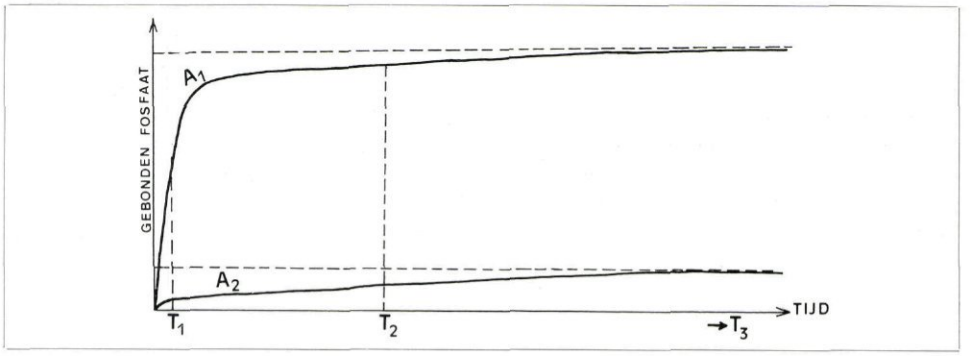
Bij fosfaatadsorptie wordt meestal gevonden dat een deel van de adsorptiecapaciteit in enige uren of dagen wordt opgevuld, waarna een tweede, trager proces in enige maanden de capaciteit geheel volmaakt. Of een adsorptie t.o.v. de verblijftijd als dominant langzaam of snel moet worden beschouwd hangt af van hoe ver het totale adsorptieproces reeds gevorderd is als het water uittreedt. Afb. 8 geeft enige mogelijkheden: een adsorptie A_1 waarin de initiële adsorptie hoog is en een adsorptie A_2 waarin het trage proces domineert. Bij een verblijftijd T_1 zijn beide adsorpties t.o.v. de verblijftijd langzaam; bij een verblijftijd T_2 is A_1 snel en A_2 langzaam; bij een verblijftijd T_3 zijn beide adsorpties m.b.t. het input-outputgedrag als snel te karaktiseren.
Men kan zich nu voorstellen dat het adsorptieproces in duinzand (onder infiltratie-omstandigheden) wordt gekenmerkt door curve A_2 en verblijftijd T_2, terwijl voor het veen A_1 karakteristiek is, en de verblijftijd dezelfde. Uit het feit dat Beek [1979] voor Oostnederlands zand een adsorptie vindt met een hoge capaciteit en een reactietijd voor het merendeel van het fosfaat van 3 dagen, en werkt met een verblijftijd van 1 dag, volgt, dat zijn adsorptie m.b.t. het input-outputgedrag een langzame karakteristiek moet hebben, hoewel de initiële adsorptie hoog is (curve A_1, verblijftijd T_1). De door Beek gevonden outputkenmerken zijn hiermee in overeenstemming.
Dat de initiële adsorptie bij geïnfiltreerd duinzand mogelijk een zo veel geringere rol speelt zou zijn oorzaak kunnen vinden in de vorm waarin het adsorberende ijzer aanwezig is. Het is bijv. denkbaar dat het ijzer niet als een vlies om de korrel zit, maar verzameld in putjes. Hierdoor neemt het relatieve belang van de initiële adsorptie, een snel oppervlakteproces, af.

6. Enige globale mogelijkheden tot regeneratie-beheer

Herstel van vochtige duinvegetaties is een belangrijke doelstelling voor het natuurbehoud in de duinen. In deze paragraaf zullen, op basis van de nu verworven inzichten, enige mogelijkheden worden geschetst voor de regeneratie van nu verruigde infiltratie- en kwelgebieden. Het uiteindelijk te formuleren regeneratie-beheer zal gebaseerd moeten zijn op meer theoretisch inzicht en meer empirische gegevens dan wat in dit bestek is gepresenteerd. Nader onderzoek zou zich op drie fronten kunnen bewegen: het verzamelen van meer gegevens over de verspreiding van fosfaat over de gebieden, het verdiepen van het causaal inzicht in de bindingsprocessen d.m.v. laboratorium-onderzoek, het op basis hiervan ontwikkelen en toetsen van een algemene en gedetailleerde theorie m.b.t. het gedrag van fosfaat in de duinen, en het uitvoeren van natuurbouw en -beheersexperimenten.

In meer kwalitatieve en globale zin kunnen reeds enige uitspraken worden gedaan. Hierbij kan een onderscheid worden gemaakt tussen de twee belangrijkste opties voor de duinwaterwinning: een vergaande voorzuivering en handhaving van de oppervlakte-infiltratie, of overgang naar een geheel ander systeem van waterproduktie. Bij voortzetting van de oppervlakte-infiltratie is het van belang dat niet zozeer de concentratie van fosfaat voor de vegetatie de centrale ecologische parameter lijkt, maar de fosfaat*belasting*, het produkt van concentratie en grondwatersnelheid [Van Dijk, 1979]. Bij de huidige niveaus van voorzuivering (P in de orde van 0,06 mgP/l) wordt de natuurlijke belasting bij de infiltratieplas-oevers lang niet bereikt. In deze situatie lijkt het mogelijk dat door een goed beheer de brandnetels op den duur zullen verdwijnen, maar lijkt het tevens onwaarschijnlijk dat een waardevolle vegetatie zal ontstaan. Bij het technisch haalbare voorzuiveringsniveau van 0,003 mgP/l [Van Puffelen et al., 1980] komt de fosfaatbelasting onder de natuurlijke; de dan optredende extreme verhouding tussen concentratie en stroomsnelheid

Afb. 8 - Twee extreme adsorptievormen.



Lijst van symbolen

Symbool	Betekenis	Dimensie
CAP	adsorptiecapaciteit, in gram per volume grond	g/l^3
D	dispersiecoëfficient	l^2/t
L	stroomlijnlengte, filterlengte	l
n	poriënvolume	–
P	concentratie opgelost fosfaat, in gram per volume poriënwater	g/l^3
$\bar{P}$	concentratie gebonden fosfaat, in gram per volume grond	g/l^3
P_{tot}	totale concentratie fosfaat, in gram per volume grond	g/l^3
t	tijdscoördinaat	t
T_r	retentietijd van een filter, stroomlijn of gebied	t
T_w	verblijftijd van het water in een filter, stroomlijn of gebied	t
v	(werkelijke) grondwatersnelheid	l/t
x	horizontale plaatscoördinaat	l
α	de verhouding tussen P en $\bar{P}$ bij evenwicht	–
β	kinetische reactieconstante van de fosfaatbinding	–/t
λ	voor dispersie karakteristieke inhomogeniteits-maat van de grond	l

maakt het echter onmogelijk op basis van het bestaand onderzoek m.b.t. de vegetatie een uitspraak te doen over de te verwachten gevolgen voor de plantengroei.
Zoals in dit artikel bleek zal bij de infiltratie-oevers een nieuw fosfaatniveau zich snel kunnen instellen; voor de traag afstromende perifere kwelgebieden is bij een vergaande voorzuivering het perspectief niet ongunstig, maar zal het vele tientallen (fosfaatrijke) jaren kunnen duren totdat het lage niveau is bereikt.
Aanmerkelijk duidelijker is het perspectief als de waterwinning een systeem zou gebruiken dat het ondiepe grondwater in de duinen niet meer beïnvloedt. Wie de grondwatermetingen van Henket [1869] corrigeert voor latere invloeden volgens de methode van Bakker et al. [1979] en de aldus verkregen waterstanden confronteert met de hoogtelijnenkaart van Meijendel en Berkheide komt tot de conclusie dat in deze gebieden bij beëindiging van de oppervlakte-infiltratie waarschijnlijk even veel valleien als vroeger weer vochtig of nat zouden worden. Door de optredende lage grondwatersnelheden zal zich op den duur bij een daarop gericht beheer in principe een gedifferentieerde authentieke vegetatie kunnen vestigen. Dit is een van de redenen dat proefnemingen met diepte-infiltratie vanuit het natuurbehoud met belangstelling worden gevolgd.
Een belangrijke verlaging van de in de infiltratie-oevers en plasbodems gecumuleerde hoeveelheden fosfaat is waarschijnlijk te bereiken door het, als overgangsmaatregel, enige jaren 'doorspoelen' met zo ver mogelijk voorgezuiverd infiltratiewater. Langer doorspoelen heeft waarschijnlijk geen zin, mede omdat nu verruigde kwelgebieden zeer veel schoonspoeltijd zouden vergen, en ondertussen de hoge fosfaatgehalten zich nog verder naar de randgebieden zouden verspreiden. Hier zal alles aankomen op een oordeelkundig overgangsbeheer, waarin mogelijk maaien, plaggen en beweiden een belangrijke rol zullen spelen.

Literatuur

Bakker, T. W. M., Klijn, J. A. en Zadelhoff, F. J. van (1979). *Onderzoeksproject Nederlandse Duinvalleien.* Studie- en informatiecentrum TNO voor milieu-onderzoek, Delft.
Bear, J. (1969). *Hydrodynamic Dispersion.* In: De Wiest (ed.): Flow through Porous Media. Academic Press, New York.
Beek, J. (1979). *Phosphate Retention by Soil in relation to Waste Disposal.* Diss., Wageningen.
Dijk, H. W. J. van (1979). *Gevolgen van waterwinning door infiltratie op de vegetatie in de duinen.* Rapport aan het Ministerie van V. en M., vakgroep Milieubiologie van de Rijksuniversiteit Leiden; concept.
Groot, W. T. de (1979). *Het gedrag van fosfaat in de duinen.* In: W. T. de Groot (red.), *Waterwinning in de duinen.* CML-mededelingen nr. 1, Leiden. (CML, Rapenburg 127).
Henket, N. H. (1869). *Duinwaterleiding voor Den Haag en Leiden.*
Meinardi, C. R. (1974). *The origin of Brackisch Groundwater in the Lower parts of the Netherlands.* RID-meded. 74-6.
Puffelen, J. van. *Berging van oppervlaktewater in* de ondergrond. H_2O 12 (1979), nr. 24: 541-548.
Puffelen, J. van en Buijink, P. L. *Gunstige ervaringen met een proefinstallatie voor flotatie.* H_2O 13 (1980), nr. 12: 263-269.
Steenkamp, F. E. M. (1979). *Fosfaten in infiltratiegebieden.* In: W. T. de Groot (red.), op. cit.
Udo de Haes, H. A. *Drinkwaterwinning en natuurbehoud: conflicten en mogelijkheden tot integratie.* H_2O 13 (1980), nr. 19: 441-447.

Ginjaar voelt niets voor superministerie

Minister Ginjaar van Volksgezondheid en Milieuhygiëne voelt niets voor de suggestie van de algemeen directeur van de Stichting Natuur en Milieu, D. Nijhoff, het ministerie te vervangen door een superministerie voor mens en milieu. 'Een dergelijk departement, waarin alle taken met betrekking tot het milieu zijn ondergebracht, is voor één bewindsman niet te behappen', aldus Ginjaar in een gesprek met het ANP. Het huidige ministerie zou er volgens hem wel een aantal taken bij kunnen hebben.
De Stichting Natuur en Milieu acht het van groot belang dat het ministerie van Volksgezondheid en Milieuhygiëne wordt versterkt. Het komende kabinet zou ernaar moeten streven de gezondheidsbescherming, natuurbehoud, openlucht recreatie, energie- en grondstoffenbeheer, monumentenbescherming, faunabeheer, bestrijding van het luchtvaartlawaai, een gedeelte van de arbeidsbescherming en het kwaliteitsbeheer van water, bodem en lucht in één ministerie onder te brengen. Dit zou een effectief beleid mogelijk maken, aldus Nijhoff.
Vanwege de tegenstrijdigheid van belangen acht hij het niet juist dat deze facetten thans nog zijn ondergebracht bij de verschillende ministeries van Volksgezondheid en Milieuhygiëne, CRM, Verkeer en Waterstaat, Landbouw en Visserij, Economische Zaken en Sociale Zaken.
Minister Ginjaar acht het niet goed dat al deze beleidsaspecten in één ministerie zouden worden ondergebracht. Daarmee verdwijnt volgens hem een stuk parlementaire controle. 'Door afzonderlijke verantwoordelijkheden van de betrokken ministeries heeft de volksvertegenwoordiging meer zicht op de problemen dan wanneer zich alles binnen één ministerie afspeelt', aldus de bewindsman.
Maar bij de komende kabinetsformatie mag Milieuhygiëne evenmin afgesplitst worden van Volksgezondheid, vindt Ginjaar. Dit zou beide onderdelen van het departement niet ten goede komen. Was een aantal jaren geleden de aandacht vanuit de milieusector vooral ecologisch gericht, de laatste tijd krijgt de gezondheid van het milieu en die van de mens een gelijkwaardige plaats. Aantasting van het milieu in allerlei vormen is dikwijls een bedreiging voor de volksgezondheid. In de sector gezondheidszorg komt de bescherming van de mens tegen allerlei milieu-invloeden op de voorgrond te staan. Milieubeleid en volksgezondheid zijn daarom niet meer van elkaar te scheiden, zo meent de minister.
Welke taken het toekomstige ministerie van Volksgezondheid en Milieuhygiëne op het gebied van de milieubescherming erbij zou kunnen nemen, wilde de bewindsman niet zeggen. Zeker is dat de huidige minister van Milieuhygiëne door zijn coördinerende taak te beperkt is in zijn bevoegdheden. Ginjaar betreurt het dat bij voorgaande kabinetsformaties nooit is gepraat over beleidsterreinen, maar alleen over bevoegdheden.
In dit verband noemt de bewindsman de wet verontreiniging oppervlaktewateren, waarvoor de minister van Verkeer en Waterstaat de eerstverantwoordelijke is, 'een eeuwige twistappel'. 'In de discussies over een mogelijke overheveling van deze wet wordt een aantal andere aspecten van het overheidsbeleid over het hoofd gezien die meer en beter zouden bijdragen tot een breder milieubeleid', aldus Ginjaar.
Voorts is er in de afgelopen drie jaar het inzicht gegroeid dat er een nauwe relatie is tussen natuur en landschap en milieubescherming.
Het is dit jaar tien jaar geleden dat het ministerie van Volksgezondheid en Milieuhygiëne werd opgericht. Ondanks de moeilijke periode van opbouw in de beginjaren zeventig is er volgens Ginjaar veel bereikt. 'Voornamelijk op het gebied van de milieuwetgeving hebben we veel geleerd'. In vergelijking met tien jaar geleden is de maatschappelijke waardering voor milieuproblemen sterk gegroeid.
'Aanvankelijk werd het milieubeleid van de overheid zachter bejegend dan nu, maar men overzag toen niet de consequenties van de te nemen maatregelen. Nu ziet men meer de noodzaak ervan in, ook al komen de maatregelen niet voor iedereen altijd even gelegen. Men beseft langzamerhand wel dat de volksgezondheid is gediend met een goed en straf milieubeleid', zo meent Ginjaar.
Voorts acht hij het een goede zaak dat de betrokkenheid van de burger groter is geworden. 'Het milieubeleid is niet meer weg te denken. Het vormt een belangrijk onderdeel van het totale overheidsbeleid. Het is een overlevingsbeleid en geen luxe'.
(ANP)