

Het modelleren van een voortdurend veranderend doolhof

Transportprocessen in de bodem zijn van grote betekenis voor het milieu van plantewortels en al het andere bodemleven. Transportprocessen in de bodem bepalen ook de uitwisselingen van water, warmte, gassen, nutriënten en contaminanten tussen de bodem en de andere compartimenten van het milieu (plant, atmosfeer, grondwater, en oppervlaktewater). Kennis van transportprocessen geeft inzicht in de evolutie van effecten van bodemverontreiniging en geeft aanknopingspunten voor preventie en sanering.

Bij het opzetten van het Speerpuntprogramma ontstond binnen het thema "verspreiding en effecten" het cluster C3: Transport van stoffen in de bodem en de ontwikkeling van transportmodellen. Het gaat daarbij om de verspreiding van stoffen als gevolg van immissie in het bodemsysteem. De aanleiding hiertoe werd als volgt geformuleerd: "Hoewel al veel modellen beschikbaar zijn voor de beschrijving van het transport van stoffen in de bodem, is extra aandacht nodig voor de problematiek van preferente en meer-dimensionale stroming en transport in sterk gestructureerde gronden. Er dient daarbij een koppeling tot stand te komen tussen de bestaande fysische en chemische transportmodellen. Dit geldt zowel voor anorganische als organische stoffen. Bij dit onderzoek dienen aspecten van C4 en C5 (speciatie, adsorptie, desorptie en omzetting) te worden betrokken. Voorts kan gedacht worden aan korte studies voor de vergelijking van bestaande modellen en de toepassing daarvan in de Nederlandse situatie.

Pieter Raats

De drie onderzochte aspecten van transportprocessen

Het onder SPBO verrichte onderzoek naar transportprocessen valt uiteen in drie onderdelen:

1. Het formuleren van modellen

Er bestaan veel modellen die transportprocessen beschrijven. In veel van deze modellen wordt aangenomen dat de gronden als rigide, ongestructureerd, homogeen, isotroop (zelfde transporteigenschappen in alle richtingen) en isotherm mogen worden behandeld.

Er is in het kader van bodembescherming vaak behoefte aan modellen

waarin rekening gehouden wordt met zwel en krimp, heterogeniteit en anisotropie (transporteigenschappen afhankelijk van richting) van de vaste fase op verschillende ruimtelijke schalen, en temperatuurgradiënten. Beschrijvingen van uitwisselingen van de bodem met de compartimenten plant, atmosfeer, grondwater, en oppervlaktewater zijn voorts belangrijke aandachtspunten. Bij het formuleren van nieuwe modellen komt de inspiratie in eerste instantie van diverse basisdisciplines (de mechanica van continua, in het bijzonder die van mengsels, de fysische chemie en de statistische fysica), maar daarnaast ook van de cumulatieve ervaring met transportprocessen in bodem, plant en atmosfeer.

Deels gebaseerd op resultaten van het SPBO, bleek het mogelijk te zijn integrale modellen te formuleren voor convectief transport van opgeloste stoffen voor situaties met vaste stroompatronen op basis van massabalansen en adsorptie- en uitwisselings-isothermen.¹ Deze modellen voorspellen cumulatieve uitspoeling op basis van cumulatieve input van stoffen en cumulatieve regenval en/of irrigatie. De isothermen kunnen lineair of niet-lineair zijn. Het

meest belangrijke aspect van dergelijke modellen is dat de toepassing alleen kennis vereist van de berging van water en van de adsorptie en uitwisselingsisothermen voor het systeem als geheel.

2. Het oplossen van randvoorwaardeproblemen: het rekenwerk

Hieraan wordt al gedurende ongeveer veertig jaar intensief gewerkt, zowel met wiskundig analytische als numerieke methoden. In het kader van het SPBO was het van belang de ontwikkelingen op het gebied van rekenmethoden te volgen en er in de context van milieukundige en agronomische toepassingen aan bij te dragen. Het rekenwerk werd zoveel mogelijk gebaseerd op voor concrete situaties geformuleerde modellen en uitgevoerde metingen, waarbij inverse rekenmethodes (= uit waargenomen gedrag eigenschappen van het systeem berekenen), gevoeligheidsanalyses, en variabiliteit in tijd en ruimte de nodige aandacht kregen. Dergelijke modellen zijn ook geschikt voor het analyseren van de effecten van heterogeniteit van de bodem.

3. Fysische karakterisering in het laboratorium of in het veld en monitoring van processen in het veld

Het experimenteel onderzoek spitste zich toe op processen in het veld. De hiervoor benodigde infrastructuur kreeg in SPBO-projecten veel aandacht: het opzetten van een weerstation voor onderzoeksdoeleinden, de implementatie van TDR (= Time Domain Reflectometry) voor het in situ meten van het watergehalte, het gebruik van tracers voor het zichtbaar maken van stroompatronen, het verantwoord bemonsteren van het bodemwater (voor het bepalen van de samenstelling), en van de hoeveelheid en samenstelling van de uitstroming van drains.

Van meso-schaal naar macroschaal

De stikstofhuishouding in de bodem en de daarvan afhankelijke gewasgroei, nitraatuitspoeling, en N₂O-emissie waren aanleiding voor onderzoek in het kader van SPBO naar partiële anaëro-

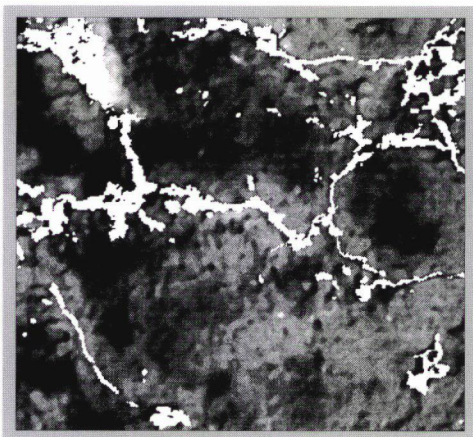
Over de auteur:



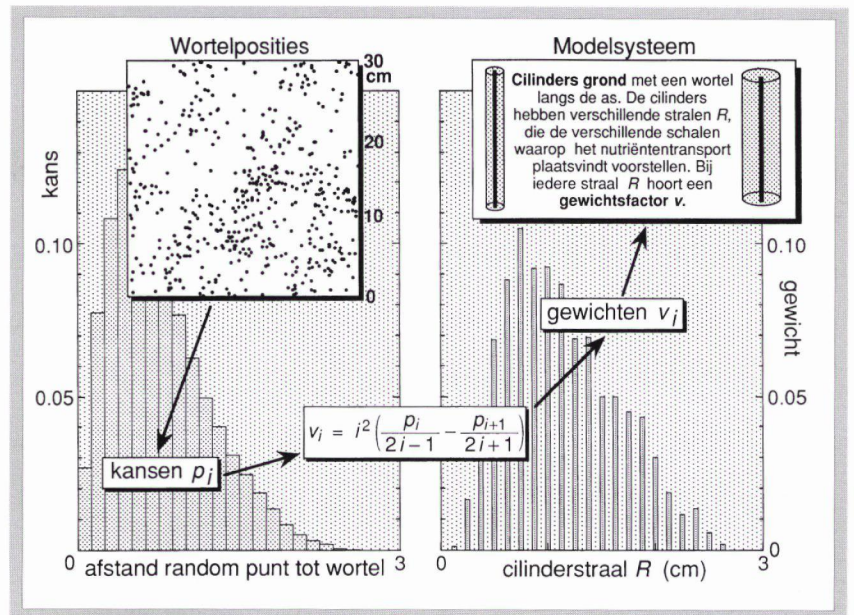
Prof. dr. ir. P.A.C. Raats, is werkzaam bij het DLO-Instituut voor Bodem vruchtbaarheid (IB-DLO) en de vakgroep Wiskunde, Landbouwuniversiteit Wageningen.

bie in onverzadigde gronden. Rappoldt ontwikkelde een praktische methode voor de beschrijving van transportprocessen op de mesoschaal in geaggregeerde gronden². De methode is gebaseerd op vereenvoudiging van de complexe geometrie van natuurlijke, gestructureerde bodems, op zodanige manier dat de essentiële geometrische en statistische karakteristieken, welke diffusieprocessen beheersen, behouden blijven. Dit gebeurt als volgt. De geometrie van het natuurlijke systeem wordt gekarakteriseerd door een verdelingsfunctie van afstanden. Vervolgens wordt het natuurlijke systeem vervangen door een modelsysteem van cilinders, waarbij de verdeling van de stralen van de cilinders zodanig gekozen wordt, dat bodemstructuur en modelsysteem dezelfde afstandsverdeling hebben. Tenslotte worden berekeningen van diffusieprocessen in het modelsysteem uitgevoerd.

De methode werd in detail uitgewerkt voor de analyse van gashuishouding in gestructureerde gronden (figuur 1). Hierbij werd kennis van fysische transportprocessen, geometrische waarschijnlijkheidsleer, experimentele fysica en beeldanalysetechnieken doelgericht geïntegreerd. De confrontatie van het model met waarnemingen in het veld toonde dat naast de geometrie van de bodem ook de ruimtelijke verdeling van de verterende organische stof van groot belang was. Daarom werd een nieuwe



Figuur 1: Gedigitaliseerde foto van een horizontale doorsnede van een kleibodem op ongeveer 10 cm diepte (werkelijke grootte 12x12 cm). De donkere plekken zijn zuurstofloos en de, van een tweede foto afkomstige, helder witte lijn zijn scheuren en gaten. Alhoewel er geen twijfel over kan bestaan dat er zuurstof diffundeert vanuit de scheuren naar de grond, is er toch géén verband gevonden tussen de positie van de scheuren enerzijds en de ligging van zuurstofloze en zuurstofrijke gebieden anderzijds. Een zeer heterogene verdeling van bodemactiviteit vormt de verklaring¹.



Figuur 2: De invloed van de verdeling van wortels in de bodem op de opname van nutriënten. De wortelverdeling wordt gekarakteriseerd als een serie kansen (links). Van die kansen wordt een modelsysteem afgeleid (rechts), waarvoor berekeningen aan het nutriëntentransport in de bodem relatief eenvoudig zijn. Het modelsysteem vormt een fysisch verantwoorde vereenvoudiging van het werkelijke wortelstelsel. Het transport van nutriënten en water in het modelsysteem verloopt op ongeveer dezelfde wijze als in het echte wortelstelsel. Deze methode is nauw verwant aan de in de tekst genoemde statistische karakterisering van de structuur van een bodem.²

theorie ontwikkeld voor respiratie van een bodemaggregaat met een specifieke of een willekeurige verdeling van afbreekbaar organisch materiaal.

De door Rappoldt geïntroduceerde methoden zullen van grote invloed zijn bij het formuleren van modellen, de ontwikkeling van fysische meetmethoden en de benutting van moderne beeldanalysemethoden, allemaal toegespitst op de meso-schaal. Opvallend is de nauwe verwevenheid van deterministische en stochastische aspecten, in lijn met moderne ontwikkelingen in de fysica. Het algemene karakter van de aanpak blijkt uit de analyse van opname van water en nutriënten door stelsels van niet regelmatig verdeelde wortels (zie figuur 2) en een analyse van aëratie van een homogene kleigrond met wormgangen. Al ruim 20 jaar werd er gezocht naar een methode voor het evalueren van de invloed van ruimtelijke verdeling van wortels op de benutting van water en nutriënten. De invloed van wormgangen op de aëratie werd voornamelijk beschouwd op basis van modellen op de macro-schaal. In het kader van het Nationale Onderzoekprogramma Mondiale Luchtverontreiniging en Klimaatverandering wordt de opgedane ervaring nu benut in onderzoek naar de emissie van lachgas uit grasland.

Preferente stroombanen

Al in de zeventiger jaren waren er sterke aanwijzingen dat preferent transport van water en daarin opgeloste stoffen een veel voorkomend verschijnsel is. In twee SPBO projecten van het DLO-Staring Centrum werd hieraan veldonderzoek gedaan, en daarbij bleek dat preferente stroombanen vooral verwacht kunnen worden in zware-kleigronden en in zandgronden. Bij de keuze van het tijdstip en van de methoden van toediening van water, nutriënten, en bestrijdingsmiddelen moet zoveel mogelijk rekening gehouden worden met de mechanismen van preferent transport.

Het onderzoek in zware-kleigronden bouwt voort op eerder onderzoek naar de invloed van krimp-scheuren op de waterhuishouding^{3,4}. In sommige kleigronden bleek zelfs bij het verwelkingspunt niet of nauwelijks lucht voor te komen in de klei tussen de krimp-scheuren. Om het transport van stoffen in dergelijke gronden te bestuderen werd in het veld bromide als tracer toegediend. Korte tijd na toediening werd het bromide vlak bij het grondoppervlak teruggevonden. Na neerslag werd een klein deel van het bromide door het water via de krimp-scheuren naar de ondergrond en het grondwater getransporteerd; in het eerste drainage-water

was de bromideconcentratie ongeveer 0.1% van de concentratie van de oplossing welke toegediend werd. Hoewel latere neerslag eveneens bromidepieken in grond- en drainagewater veroorzaakte, penetreerde het overgrote deel van het bromide in de onverzadigde zone via inter-aggregaat poriën. Hierbij was de effectieve dispersie groot, kennelijk als gevolg van een grote mobiele fractie van het bodemwater. Daarbij was er bij hoge neerslagintensiteit relatief veel preferente stroming in grote, doorlopende poriën.

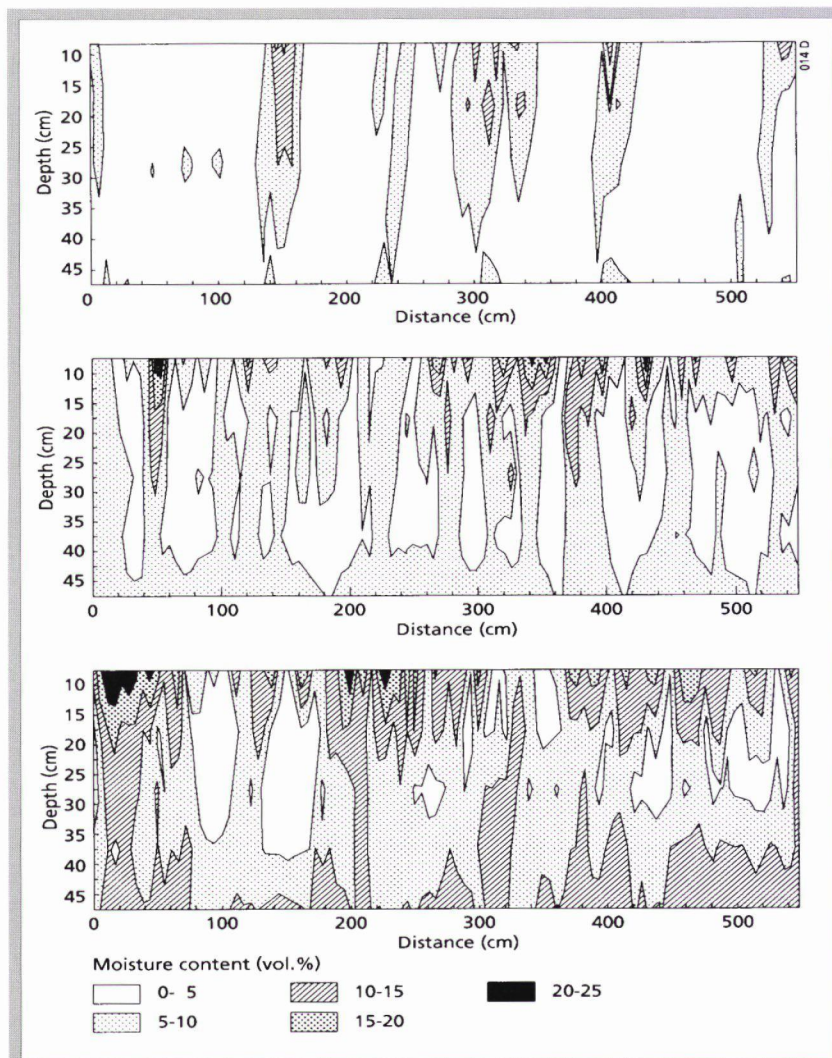
Het onderzoek naar preferent transport van water en daarin opgeloste stoffen in zandgronden werd vooral gericht op oorzaken en gevolgen van waterafstotendheid. Traditioneel werd in studies van beweging van water in onverzadigde gronden stilzwijgend aangenomen dat kleine onregelmatigheden in stroompatronen niet de neiging zullen hebben om te groeien, met andere woorden, stromingen zouden stabiel zijn. Niettemin werden instabiliteiten al lang geleden waargenomen onder zeer



Figuur 3: Homogeen natte laag (donker) onder een waterafstotende laag met preferente stroombanen (donker) en tussenliggende droge zones (licht).⁷

uiteenlopende omstandigheden, meestal echter in het laboratorium⁵. Oorzaken van instabiele stromingen zijn onder andere abrupte of geleidelijke toe-

name van de doorlatendheid met de diepte, compressie van lucht onder een vochtfront, herverdeling van water wanneer de toevoer door infiltratie afneemt of geheel stopt, en waterafstotendheid van de vaste fase.



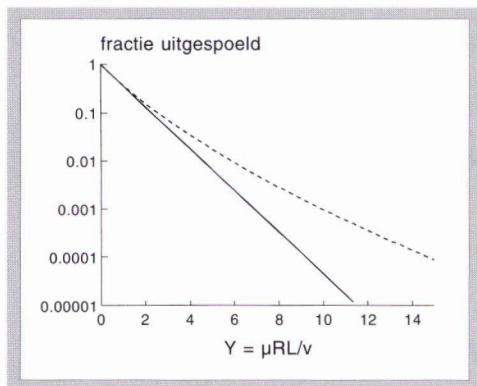
Figuur 4: Ruimtelijke verdeling van het volumetrische watergehalte op drie tijdstippen in een waterafstotende zandgrond onder gras (Ritsema en anderen, Staring Centrum, SC-DLO).

In de zeventiger jaren werd al enige aandacht geschonken aan criteria voor instabiliteit⁵. Op basis van theorie is het te verwachten dat infiltratie van regenwater in droge, waterafstotende gronden instabiel zal zijn. Een veldexperiment bij Ouddorp op twee aangrenzende graslanden, met respectievelijk een bevochtigbare en een waterafstotende bovenlaag (zie figuur 3), bevestigde de theorie⁶. De waterafstotende bovenlaag veroorzaakte instabiliteit van het vochtfront, een verhoging van de ruimtelijke variabiliteit van het watergehalte (figuur 4), en een versnelling van de uitspoeling naar het grondwater⁷.

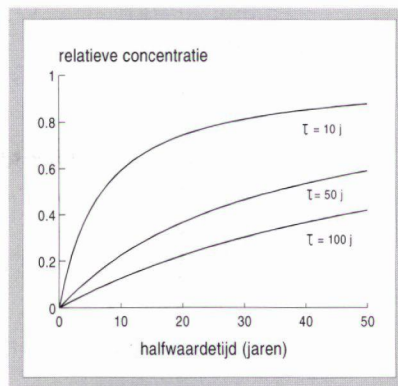
Stabilisatie van fronten wordt bevorderd door een hoog initieel watergehalte en door hysteresis van de waterretentiekarakteristiek. Grillige stroompatronen tengevolge van instabiliteit kunnen gemakkelijk onopgemerkt blijven of verkeerd uitgelegd worden. Het is van belang de invloeden van waterafstotendheid, stijging van de luchtdruk, ruimtelijke variabiliteit van de doorlatendheid of van de infiltratie van elkaar te onderscheiden. Kennis van oorzaken van instabiliteit biedt mogelijk perspectieven voor preventie.

Het lot van bestrijdingsmiddelen

Door het DLO-Staring Centrum, het Instituut voor Onderzoek van het Lan-



Figuur 5a: Gesimuleerde fractie van bestrijdingsmiddel uitgespoeld naar grondwater als functie van $Y = RL/v$, met eerste orde omzettingscoëfficiënt ($1/T$), retardatie tengevolge van lineaire adsorptie $R(-)$, dikte van de onverzadigde zone $L(L)$, en filter snelheid $v(L/T)$. De uitspoelingsfractie zonder variatie (volle lijn: $CV(1/Y) = 0\%$) en met variatie (gebroken lijn: $CV(1/Y) = 25\%$) in de uitspoelingsparameters.



Figuur 5b: Relatieve concentratie van bestrijdingsmiddel, als functie van de halfwaardetijd van het middel, in een put in een homogene watervoerende laag met continue input van bestrijdingsmiddel. Drie verschillende watervoerende lagen worden gerepresenteerd door hun karakteristieke verblijftijden $= nH/P$, met porositeit $n(-)$, dikte van de watervoerende laag $H(m)$, en neerslagoverschot $P(m/jaar)$. (Beltman en Boesten, Staring Centrum, SC-DLO).

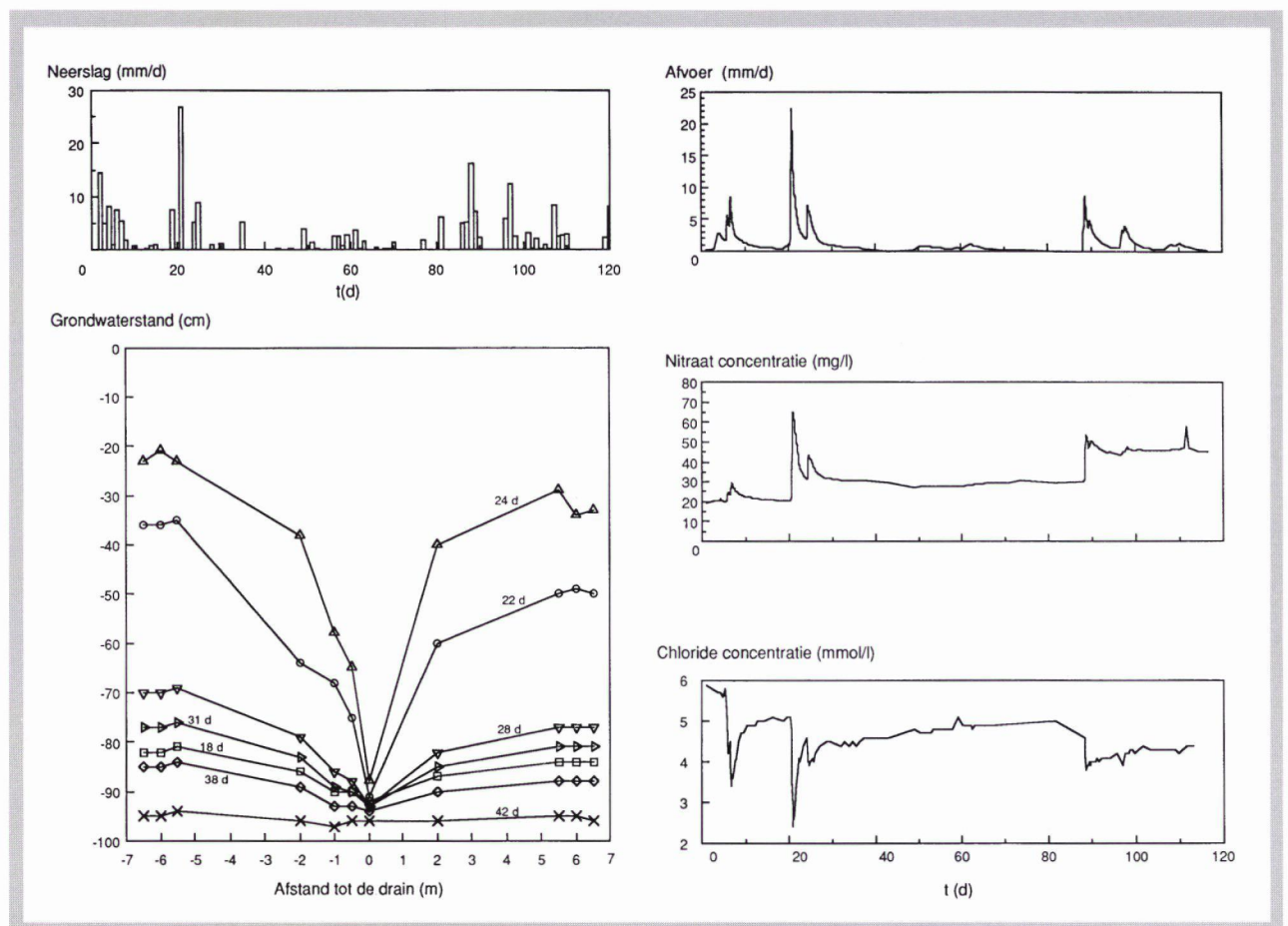
delijk Gebied, werd in twee SPBO-projecten onderzoek gedaan naar het gedrag van bestrijdingsmiddelen in de bovengrond en de ondergrond, in verband met risico's van die middelen voor grond- en oppervlaktewater. Hoofddoel was het verbeteren van de modellering

van het transport van residuen van bestrijdingsmiddelen naar putten voor de drinkwatervoorziening. Het proces werd beschouwd als bestaande uit twee delen:

- het berekenen van de fractie van de toegediende hoeveelheid bestrijdingsmiddel die via de met water onverzadigde zone uitspoelt naar het grondwater;
- het berekenen van de fractie van de uitgespoelde hoeveelheid bestrijdingsmiddel welke aankomt in de putten voor de drinkwatervoorziening.

Het in het kader van SPBO ontwikkelde model wordt nu gebruikt in de registratie-procedure van pesticiden.

De uitspoeling naar het grondwater wordt beschreven op basis van een wiskundige vergelijking waarin rekening wordt gehouden met convectief en dispersief transport, niet-lineaire adsorptie, eerste orde afbraak, en opname door planten⁸. Het transport wordt bepaald door moleculaire diffusie en vooral ook de beweging van het water, waarbij ook weer rekening moet worden gehouden met opname van water door planten. De uitspoeling wordt in sterke mate bepaald door de ruimtelijke variabiliteit van de onverzadigde zone, niet alleen van het snelheidsveld van het water, maar vooral ook van de parameters wel-



Figuur 6: Tijdsverloop van neerslag, grondwaterstand, afvoer van water door een drain, concentraties van nitraat en chloride in het drainwater, alles in de loop van de tijd.^{14,15}

ke de adsorptie en de afbraak beschrijven (zie figuur 5a)⁹. Bovendien is een theorie ontwikkeld op basis waarvan de invloed van ruimtelijke variabiliteit in adsorptie en afbraakparameters berekend kan worden met eenvoudige analytische formules. In de registratieprocedure zijn uitspoelfracties kleiner dan 0,01 vaak nog uitermate relevant. Een gevoeligheidsanalyse heeft aangetoond dat juist dergelijke lage uitspoelfracties sterk afhankelijk zijn van de parameters welke de adsorptie en afbraak beschrijven¹⁰.

De uitgespoelde stof heeft vervolgens een zekere kans om in een put voor de drinkwatervoorziening aan te komen (zie figuur 5b)¹¹. De gemiddelde verblijftijd van het water in de verzadigde zone is gelijk aan het watergehalte maal de dikte van het wateroverende pakket gedeeld door het neerslagoverschot per tijdseenheid. De gemiddelde verblijftijd van het bestrijdingsmiddel is dan gelijk aan de gemiddelde verblijftijd van het water maal de retardatiefactor van het bestrijdingsmiddel. De fractie van de uitgespoelde hoeveelheid bestrijdingsmiddel die aankomt in de putten wordt bepaald door de voor het middel geldende verhouding van gemiddelde verblijftijd en halfwaardetijd. De fractie is groter naarmate de gemiddelde verblijftijd kleiner is en de halfwaardetijd van het middel groter is.

Er werd veel aandacht besteed aan parameters die de adsorptie en transformatie in de verzadigde zone beschrijven^{12,13}. Er werd een kolom ontwikkeld voor het meten van omzettingssnelheden van pesticiden in materiaal van watervoerende pakketten waarin veldcondities benaderd kunnen worden. Onderzoek in drie zand-ondergronden gaf halfwaardetijden van 6 tot 35 dagen voor methylisothiocyanaat en van 16 tot 24

dagen voor 1,3-dichloorpropeen. Ook werd aandacht geschonken aan 1,2-dichloorpropaan, dat als verontreiniging bij 1,3-dichloorpropeen voorkomt. Deze stof wordt in de ondergrond slechts zeer langzaam afgebroken en vormt daardoor een gevaar voor de drinkwatervoorziening. HPCL-methoden werden ontwikkeld voor het meten van lage concentraties van 3-chloorallyl alcohol.

Uitspoeling bij sterk fluctuerende grondwaterspiegel

Vaak zijn stroompatronen wel degelijk tijdsafhankelijk. Een dergelijke situatie doet zich voor op de Dr. H.J. Lovinkhoeve, de proefboerderij van het IB-DLO in de Noordoostpolder waar het onderzoeksprogramma "Vergelijkende analyse van het functioneren van bodemecosystemen bij vormen van gangbare en geïntegreerde akkerbouw" werd uitgevoerd (zie ook bijdrage van Brussaard in dit nummer)^{14,15}. Figuur 6 toont resultaten van metingen. In perioden met veel regenval stijgt de grondwaterspiegel en als gevolg daarvan ook de afvoer door de drains. Samenhangend hiermede vertonen de nitraat- en de chlorideconcentraties in het drainwater

fluctuaties welke samenhangen met de verdeling van deze ionen in het profiel. Bij hoge grondwaterstanden is de bijdrage vanuit de zone direct boven de drain relatief groter, resulterend in een verhoging van de nitraatconcentratie en een verlaging van de chlorideconcentratie. Vanwege deze fluctuaties in de concentratie kan de totale uitspoeling alleen bepaald worden op basis van frequente, debietsproportionale bemonstering: een wekelijkse bemonstering van hoeveelheid en samenstelling van het drainagewater geeft slechts weinig informatie.

Conclusies

Het SPBO heeft met het hier kort besproken onderzoek veel bijgedragen aan de kennis omtrent de rol van bodemstructuur en van stroompatronen op verschillende schalen bij de verspreiding van stoffen. Verder is voor bestrijdingsmiddelen het samenspel tussen fysische, fysisch-chemische, en chemische aspecten grondig uitgewerkt. Ook is er vooruitgang geboekt m.b.t. monitoring van stroming van water en transport van stoffen onder veldomstandigheden.

Literatuur

- 1) Valk, C.F. de en P.A.C. Raats, 1993. Lumped models of convective transport in heterogeneous porous media. I: One-dimensional media, II: Transport in three-dimensional media along fixed streamlines. *Water Resour. Res.* (I. aangeboden voor publicatie, II. in voorbereiding)
- 2) Rappoldt, C., 1992. Diffusion in aggregated soil. Dissertatie Landbouwniversiteit Wageningen, 162pp.
- 3) Bronswijk, J.J.B., 1991. Magnitude, modeling and significance of swelling and shrinkage processes in clay soil. Dissertatie Landbouwniversiteit Wageningen, 145pp.
- 4) Bronswijk, J.J.B., 1992. A general approach to incorporate swelling and shrinkage processes in soil water transport simulation models. *Modeling of Geobiosphere Processes* 1: 253-270.
- 5) Raats, P.A.C., 1973. Unstable wetting fronts in uniform and non-uniform soils. *Soil Sci. Soc. Amer. Proc.* 37: 681-685.
- 6) Hendrickx, J.M.H., L.W. Dekker en O.H. Boersma, 1993. Unstable wetting fronts in water-repellent field soils. *J. Environmental Quality* 22: 109-118.
- 7) Ritsema, C.J. en anderen, 1993. Preferential flow mechanism in a water-repellent sandy soil. *Water Resour. Res.* 29: 2183-2193.
- 8) Boesten, J.J.T.L. en A.M.A. van der Linden, 1991. Modeling the influence of sorption and transformation on pesticide leaching and persistence. *J. Environ. Qual.* 20: 425-435.
- 9) Zee, S.E.A.T.M. van der en J.J.T.L. Boesten, 1991. Effects of soil heterogeneity on pesticide leaching to ground water. *Water Resour. Res.* 27: 3051-3063.
- 10) Boesten, J.J.T.L., 1991. Sensitivity analysis of a mathematical model for pesticide leaching to groundwater. *Pestic. Sci.* 31: 375-388.
- 11) Boesten, J.J.T.L., L.J.T. van der Pas en J.H. Smelt, 1992. Field test of the PESTLA model for ethoprophos on a sandy soil. In: *Integrated Soil and Sediment Research: A Basis for Proper Protection. Selected Proceedings of the First European Conference on Integrated Research for Soil Sediment Protection and Remediation (EUROSOL)*, gehouden 6-12 September 1992 te Maastricht (ed. H.J.P. Eijsackers en T. Hamers). Kluwer, Dordrecht. p. 241-245.
- 12) Beltman, W.H.J., C.G. Hoogeweg, en A.E. Groen, 1992. A column test to study the biotransformation of pesticides in aquifers. In: *Proc. Int. Symp. on Environmental Aspects of Pesticide Microbiology*, 17-21 August 1992, Sigtuna Sweden (ed. J.P.E. Anderson en anderen). Swedish University of Agricultural Sciences, Uppsala, Sweden, p. 318-324.
- 13) Boesten, J.J.T.L. en anderen, 1992. Transformation of 14C-labelled 1,2-dichloropropene in water-saturated subsoil materials. *Chemosphere* 24: 993-1011.
- 14) Vos, J.A. de en D.L.R. Hesterberg, 1993. Water flow and nitrate transport to a subsurface drain in an integrated agricultural system. *Soil Sci. Soc. Amer. J.* (in voorbereiding)
- 15) Hesterberg, D.L.R. en J.A. de Vos, 1993. Multicomponent solute discharge from a subsurface drain in a calcareous polder soil. *Soil Sci. Soc. Amer. J.* (in voorbereiding)

