

BTO 2014.020 | Maart 2015

BTO rapport

**Verwijdering van
Escherichia coli en MS2
bacteriofagen in de
onverzadigde zone en
de invloed van dikte,
regenintensiteit en
opgeloste organische
stof**

BTO

Verwijdering van *Escherichia coli* en MS2 bacteriofagen in de onverzadigde zone en de invloed van dikte, regenintensiteit en opgeloste organische stof

BTO 2014.020 | Maart 2015

Opdrachtnummer

400554/013/008

Projectmanager

Luc Hornstra

Opdrachtgever

BTO - Thematisch onderzoek - Hygiëne en veiligheid

Kwaliteitsborger

Gertjan Medema

Auteurs

Hijnen¹, W.A.M., Cirkel¹, D.G., Brouwer-Hanzens¹, A.J., Cai², J. H., Oorthuizen⁴, W.A.

¹ KWR Watercycle Research Institute, Nieuwegein

² Universiteit van Stuttgart, Duitsland

⁴ Dunea Waterbedrijf, Den Haag

Verzonden aan

Dit rapport is verspreid onder BTO-participanten en is na 12 maanden openbaar.

Jaar van publicatie
2015

Meer informatie

T dr. Ing. W.A.M. Hijnen
E wim.hijnen@kwrwater.nl

PO Box 1072
3430 BB Nieuwegein
The Netherlands

T +31 (0)30 60 69 596
F +31 (0)30 60 61 165
E info@kwrwater.nl
I www.kwrwater.nl

The logo for KWR (Watercycle Research Institute) features the letters 'KWR' in a bold, blue, sans-serif font. The 'K' and 'R' are connected at the top.

Watercycle
Research
Institute

BTO 2014.020 | Maart 2015 © KWR

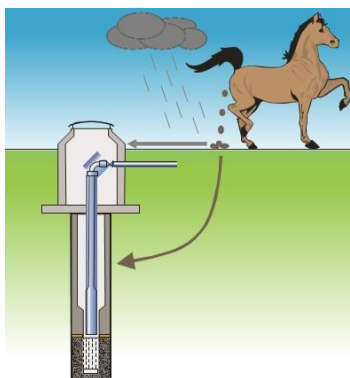
Alle rechten voorbehouden.

Niets uit deze uitgave mag worden veelevoudigd, opgeslagen in een geautomatiseerd gegevensbestand, of openbaar gemaakt, in enige vorm of op enige wijze, hetzij elektronisch, mechanisch, door fotokopieën, opnamen, of enig andere manier, zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van de uitgever.

BTO Managementsamenvatting

Verwijdering micro-organismen is het hoogst boven in de onverzadigde zone, bij de grootste vochtvariatie

Duinwaterbedrijven gebruiken freatische ondiepe waterwinningen. Daarbij is de onverzadigde zone een belangrijke barrière tegen fecale besmetting door grazers, recreanten of natuurlijke fauna. Eerdere veldstudies hebben kentallen voor die verwijdering opgeleverd in een vaste halve meter onverzadigde zone. De dikte van de onverzadigde zone of diepte van de grondwaterspiegel is echter variabel en beïnvloedbaar. Onderzoek met gepakte kolommen heeft nu laten zien dat de verwijdering in de onverzadigde zone afneemt met de diepte en een correlatie vertoont met de afnemende vochtvariatie in de zone. De verwijdering nam toe in aanwezigheid van een gefiltreerd extract van Galloway mest. Bij extrapolatie van de gegevens naar natuurlijke condities is de afhankelijkheid van het verwijderingsproces van de temperatuur als belangrijke factor geïdentificeerd.



Schematische voorstelling van de probleemstelling en de onverzadigde zone kolomopstelling van drie diktes

Jaar van publicatie
2015

Meer informatie

T dr. Ing. W.A.M. Hijnen
E wim.hijnen@kwrwater.nl

PO Box 1072
3430 BB Nieuwegein
The Netherlands

T +31 (0)30 60 69 596
F +31 (0)30 60 61 165
E info@kwrwater.nl
I www.kwrwater.nl

KWR Watercycle
Research
Institute

BTO 2014.020 | Maart 2015 © KWR

Alle rechten voorbehouden.

Niets uit deze uitgave mag worden veelevoudigd, opgeslagen in een geautomatiseerd gegevensbestand, of openbaar gemaakt, in enige vorm of op enige wijze, hetzij elektronisch, mechanisch, door fotokopieën, opnamen, of enig andere manier, zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van de uitgever.

Belang: inschatting concentraties ziekteverwekkers na bodempassage

Bij de freatische ondiepe (grond)waterwinningen die de duinwaterbedrijven toepassen is de onverzadigde zone een belangrijke barrière tegen fecale besmetting door grazers, recreanten of natuurlijke fauna. Kwantitatieve kennis over de effectiviteit van de onverzadigde zone als barrière voor pathogene micro-organismen in ondiep grondwater is noodzakelijk om een goede schatting te kunnen maken van de concentratie ziekteverwekkers in het opgepompte grondwater. Daarmee kunnen beheersmaatregelen worden onderbouwd die de hygiënische kwaliteit van het grondwater moeten beschermen. In een eerdere veldstudie bij Solleveld zijn kentallen verzameld over de verwijdering van ziekteverwekkende micro-organismen in een vaste halve meter onverzadigde zone van een duinzand. De dikte van de onverzadigde zone of diepte van de grondwaterspiegel is echter variabel en beïnvloedbaar. Doel van het beschreven onderzoek was de invloed van de dikte van de zone op de verwijdering te kwantificeren.

Aanpak: berekeningstudie met gesimuleerde onverzadigde zone in gepakte kolommen

Een eenduidige uitspraak over de invloed van de dikte is onderzocht in gepakte kolommen. Een berekeningsofstelling met drie kolommen van verschillende lengte is ontworpen en zorgvuldig gepakt met bodemmateriaal afkomstig van dezelfde locatie als de eerste veldstudie. De kolommen zijn fysisch en geochemisch gekarakteriseerd en werden dagelijks berekend met een intensiteit van 25 of 50 mm gedurende 4 uur. Met drie microbiologische doseerproeven is de verwijdering van een bacteriofaag (bacterievirus; MS2) en *E. coli* bepaald bij 25 en 50 mm/d. In het derde experiment is de invloed van een fecaal extract op de verwijdering bepaald.

Resultaat: verwijdering neemt niet lineair toe met de dikte van de onverzadigde zone

Uit de vocht- en drukprofielen van de kolommen gemeten met sensoren bleek dat deze de condities van natuurlijke onverzadigde duinzandbodem goed simuleerden. De waterdoorbraak in de kolommen in orde van grootte vergelijkbaar met de waterdoorbraak in de eerdere veldproef van dezelfde locatie, maar vertoonde minder heterogeniteit dan in de veldsituatie. De verwijdering van MS2 en *E. coli* bleek hoog te zijn,

Jaar van publicatie
2015

PO Box 1072
3430 BB Nieuwegein
The Netherlands

Meer informatie

T dr. Ing. W.A.M. Hijnen
E wim.hijnen@kwrwater.nl

T +31 (0)30 60 69 596
F +31 (0)30 60 61 165
E info@kwrwater.nl
I www.kwrwater.nl

hoger dan in verzadigde zandkolommen met vergelijkbare diktes. De verwijdering nam niet lineair toe met de dikte maar was afhankelijk van de vochtdynamiek in de bodem (uitdrogen en vernatten bij beregening). De verwijdering was hoog bovenin de zone bij een sterke vochtdynamiek. Bij afnemende vochtdynamiek werd de mate van verwijdering in een verzadigde zone benaderd. Toevoeging van een deeltjesvrij extract van Galloway mest verhoogde de verwijdering in de onverzadigde zone aanzienlijk. Verwijdering in de kolommen van halve meter was hoger dan waargenomen bij de veldstudie met dezelfde dikte. De hogere temperatuur in het kolomexperiment (16°C) in vergelijking tot de veldstudie (7°C) is hier in belangrijke mate verantwoordelijk voor. Een ander verschil tussen kolom en veldproef dat aan het verwijderingsverschil kan hebben bijgedragen, is een grotere heterogeniteit bij de veldproef. Met de resultaten van de verwijdering in de drie onverzadigde kolommen met verschillende dikte is een bifasische lineaire extrapolatie uitgevoerd. Dit leverde een verwijderingstabel op voor een variabele onverzadigde zone bij verschillende temperaturen. Extrapolatie van deze gegevens naar de huidige locatie Solleveld waar de onverzadigde zone in het gehele gebied is verhoogd naar 1,0 m, leverde een aanzienlijke verhoging van de effectiviteit van de bodempassage op.

Implementatie: betere kwantificering van verwijdering ziekteverwekkers in onverzadigde zone

De resultaten vergroten de kwantitatieve kennis over de verwijdering van ziekteverwekkers in onverzadigde zones met een variabele dikte. Hiermee kunnen risicoberekeningen worden verbeterd en beheersmaatregelen in het terrein beter onderbouwd. Aanbevolen wordt om de relatie met de vochtdynamiek en de temperatuur met experimenten kwantitatief te onderbouwen. Dit maakt het mogelijk om met empirische modellering de vertaling naar de praktijk breder te kunnen uitvoeren.

Rapport

Dit onderzoek is beschreven in rapport BTO 2014.020 *Verwijdering van Escherichia coli en MS2 bacteriofagen in de onverzadigde zone en de invloed van dikte, regenintensiteit en opgeloste organische stof.*



BTO 2014.020 | Maart 2015 © KWR

Alle rechten voorbehouden.

Niets uit deze uitgave mag worden verveelvoudigd, opgeslagen in een geautomatiseerd gegevensbestand, of openbaar gemaakt, in enige vorm of op enige wijze, hetzij elektronisch, mechanisch, door fotokopieën, opnamen, of enig andere manier, zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van de uitgever.

Voorwoord

Dit BTO project is uitgevoerd in samenwerking met de Themagroep Hygiëne & Veiligheid. De Themagroep heeft een rol gespeeld bij de invulling van het project en bij de eindrapportage. De experimentele opstelling is ontwikkeld in nauwe samenwerking met Sidney Meijering en Harry van Wegen (KWR werkplaats). De masterstudent Jun Cai heeft een belangrijk deel van de praktische uitvoering en hydrologische metingen verricht. Het bodemmateriaal gebruikt voor het onderzoek is afkomstig van het waterwingebied Solleveld van Waterbedrijf Dunea. Wim Oorthuizen van dat bedrijf heeft in de afrondende fase van het project een mini BTO Workshop georganiseerd met het thema 'microbiologische risico's van begrazing en recreatie in waterwingebieden' waarin de uitkomsten van dit onderzoek centraal stonden. Het verslag van deze workshop en de discussie die daar is gevoerd staat in Bijlage 1 van dit rapport.

Samenvatting

In dit rapport staat een onderzoek beschreven naar de verwijdering van micro-organismen in het onverzadigde deel van de bodem van freatische duinwaterwinningen waar sprake is van fecale verontreiniging door begrazing, recreatie en natuurlijke fauna. Belang van het kwantificeren van de verwijdering van micro-organismen in deze bodemlaag bij ondiepe winningen is de onzekerheid over de belasting van dergelijk ondiep grondwater met ziekteverwekkende micro-organismen afkomstig uit een fecale bron aan maaiveld. Dit veiligheidsprobleem speelt vooral bij de ondiepe duinwaterwinningen. Besmetting van dit duinwater met indicatoren voor fecale verontreiniging hebben deze onzekerheid aan het licht gebracht. Omdat direct meten van ziekteverwekkende micro-organismen onder deze condities niet mogelijk is, kan alleen met een kwantitatieve microbiologische risico analyse (QMRA) een schatting worden gemaakt van de mogelijke concentraties ziekteverwekkende micro-organismen in het duinwater. Hiervoor is kwantitatieve kennis nodig over de effectiviteit van de onverzadigde zone.

Proefcondities. In eerdere BTO projecten zijn daar kwantitatieve gegevens over verzameld. Een tot nog toe maatgevend onderzoek is het veldonderzoek uitgevoerd te Solleveld (Dunea; Nobel en Cirkel, 2005) waar de verwijdering in een onverzadigde zone van 0,5 m is bepaald. Aanleiding voor het huidige onderzoek was de onzekerheid over de wijze waarop deze verwijdering geëxtrapoleerd kan worden naar dikkere onverzadigde zones en over de invloed van de regenintensiteit en de aanwezigheid van organische stof tijdens het transport door dergelijke bodemlagen. Het onderzoek is uitgevoerd met het bodemmateriaal afkomstig van dezelfde locatie als waar eerder een veldproef is uitgevoerd (Solleveld). Dit materiaal is na verwijdering van grove delen (plantenwortels) op standaardwijze gepakt in drie kolommen met toenemende lengte van 0,5, 1,0 en 1,5 m. Uit geochemische analyse van het bodemmateriaal kwam naar voren dat het zand van de kolommen goed overeen komt met dat van de Solleveld veldproef. Op grond van de gekozen open bodemconstructie met vrij drainerende condities en een (dunne) verzadigde capillaire zone toont het onderzoek het effect van de diepte van de grondwaterstand op de verwijdering onderzocht. De kolommen zijn met een vast regenpatroon van 25 mm per dag (aangebracht in 4 uur berekening) belast. In een eenmalige bui werd door het doseren van NaCl het doorbraakpatroon van het regenwater gekarakteriseerd. Daarna werd door het doseren van een hoge concentratie micro-organismen in een eenmalige bui de doorbraak van micro-organismen bepaald. In het tweede experiment is de regenintensiteit verdubbeld naar 50 mm/dag en in het derde experiment met een regenintensiteit van 25 mm/dag werden de micro-organismen gedoseerd in een regensuspensie verrijkt met een eluaat van mest van de Galloway grazers vooraf gezuiverd van deeltjes groter dan 10 µm.

Bodem-fysische eigenschappen. De bodem-fysische eigenschappen van de zandkolommen zijn in kaart gebracht door het aanbrengen van druksensoren in de kolommen waarmee een nauwkeurig beeld verkregen werd van de verdeling van het vochtgehalte en de dynamiek hierin. Uit een vergelijking van onder meer de bulkdichtheid, de porositeit en de op de hydraulische meetgegevens gefitte retentiecurves bleek dat de kolommen onderling qua hydraulisch gedrag goed vergelijkbaar waren en dat de gegevens overeen kwamen met representatieve

gegevens hiervan voor matig fijnzandige (duin)bodems. Op grond van een vergelijking van de NaCl doorbraakcurven was de waterdoorbraak in de kolommen trager dan de waterdoorbraak bij de veldproef te Solleveld. Belangrijk resultaat van de vochtmetingen was inzicht in de omvang van de vochtdynamiek in de kolom en specifiek de toplaag en het optreden van hysteresis. Onder praktijkcondities met variabele regenval en verdamping zal deze vochtdynamiek in de toplaag naar verwachting nog groter zijn.

Verwijdering van virussen en bacteriën. De verwijdering van de index-pathogenen enterovirussen en *Campylobacter* door de onverzadigde zone is bepaald door gelijktijdig twee bacteriofagen (MS2, PhiX174) en *E. coli* bacteriën te doseren aan de kolommen en de verwijdering te bepalen. Uit de doorbraakcurven van deze micro-organismen bij de drie kolommen bleek dat de grootste verwijdering plaatsvond in de bovenlaag van de onverzadigde zone met verschillende grondwaterstanden en meer dan proportioneel afnam met toenemende diepte. Dit werd afgeleid uit de sterk afnemende verwijdering als functie van de kolomlengte van 0,5 naar 1,5 m. Er bleek een significant verband ($P < 0.05$) te zijn tussen de vochtdynamiek in de zandlaag en de mate van verwijdering met een relatief grote mate van onzekerheid ($R^2 = 0.51$). Op grond van een vergelijking met literatuurgegevens blijkt dat een grotere verwijdering van micro-organismen in de onverzadigde zone kan worden verklaard door een sterkere interactie van de micro-organismen met de drie verschillende grensvlakken in dergelijke systemen: zand-water-lucht, water-zand en water-lucht. Naast elektrostatische krachten, spelen ook capillaire krachten, hydrofobe oppervlakte eigenschappen en afsterving een rol in de grotere verwijdering van de micro-organismen.

Verhoging van de regenintensiteit van 25 naar 50 mm/d leverde geen toename van de doorbraak op, mogelijk als gevolg van een grotere afsterving van de gedoseerde micro-organismen in het regenwater. Verwijdering van de bacteriofagen en bacteriën nam toe bij de dosering van een eluaat van Galloway mest aan de regenbui (een reële situatie in de praktijk).

Kwantitatieve vertaling naar de praktijk. Voor een vertaling van deze kwantitatieve gegevens naar de praktijk is de verwijdering in een laagdikte van 0,5 m bepaald in twee afzonderlijke kolomstudies (Nobel et al., 1999 en huidige onderzoek) vergeleken met de verwijdering waargenomen in de veldproef (Nobel en Cirkel, 2005). Uit deze analyse kwam naar voren dat de watertemperatuur waarschijnlijk een belangrijke rol speelt in de verwijdering, gevolgd door de doorlatendheid en pH van het water. De verwijderingsgegevens in de drie kolommen met verschillende lengte in aanwezigheid van het mest eluaat en de verhouding tussen de verwijdering gemeten onder veldcondities en in de kolommen bij gelijke dikte en temperatuur, zijn gebruikt om de verwijdering van virussen en bacteriën in een variabele onverzadigde zone van 0,25 - 3,0 m met vergelijkbare bodem-fysische eigenschappen empirisch te berekenen voor verschillende temperaturen tussen 5 en 20°C. Voor toepassing op bodems met andere bodem-fysische eigenschappen kan de empirische relatie van de verwijdering met de vochtdynamiek worden toegepast.

Conclusies en aanbevelingen. Uit de resultaten van het onderzoek kunnen de volgende conclusies worden getrokken:

- De verwijdering van MS2 bacteriofagen en *E. coli* in een onverzadigde zone is hoger dan de verwijdering in een verzadigde zone met dezelfde dikte;
- De verwijdering neemt minder dan proportioneel toe met de diepte. Met de drie onderzochte diktes kan de verwijdering worden beschreven met een bifasische

lineaire extrapolatie. Hierin treedt voor MS2 afvlakking van de verwijdering op na de eerste 1,0 m en voor *E. coli* was dat na de eerste 0,5 m;

- De effectiviteit van de onverzadigde zone is gecorreleerd met de dynamiek in het vochtgehalte in de onverzadigde zone. Deze is hoog bovenin en neemt snel met de laagdikte. Op grond van de theoretische overwegingen kunnen verschillende hydrodynamische processen die toenemen bij lucht in de bodem de verwijdering van micro-organismen verhogen maar ook verlagen. Uit de resultaten van de proeven blijkt de aanwezigheid van lucht in de bodem te leiden tot meer verwijdering. Dit wordt ook gevonden bij vergelijkbare studies in de literatuur. De hechting aan de zand-water, lucht-water en lucht-water-zand grensvlakken speelt daarbij een belangrijke rol. Voor de bacteriofagen speelt een toenemende afsterving door interactie met lucht mogelijk ook een rol;
- De resultaten van de invloed van de regenintensiteit toonden meer verwijdering bij hogere regenintensiteit en stroomsnelheden. Dit resultaat was onverwachts en mogelijk verklaarbaar uit een grotere afsterving in de beregende suspensie. Deze hoge afsterving in het regenwater werd niet gevonden in de suspensies met een hoog organische stofgehalte. Het kwantitatieve effect van de verhoogde regenintensiteit op de verwijdering in de onverzadigde zone is daarom niet vast te stellen;
- Uit het experiment met de organische fecale matrix blijkt dat deze de verwijdering van beide micro-organismen versterkt. Dit resultaat komt niet overeen met de gegevens over de invloed van organische stof die in de literatuur worden gepresenteerd: minder verwijdering bij hogere organische stof gehalten. Vermoedelijke oorzaak hiervan ligt in de samenstelling van de organische stof. De literatuurstudies doseren organische humuszuren, terwijl in deze studie het water bij de dosering verrijkt is met organische bestanddelen uit een fecaliën. Onzeker is nog het lange termijn effect van organische stof op de verwijdering.

Ten aanzien van de vertaling van de resultaten naar veldcondities kan het volgende worden geconcludeerd:

- De hydrologische condities als vochtprofiel en zuigspanning van de drie onverzadigde kolommen met een lengte van 0,5, 1,0 en 1,5 m kwamen onderling goed overeen en waren eveneens vergelijkbaar met deze condities onder veldcondities afgeleid uit de retentiegegevens van de tracertesten;
- De verwijdering van deze micro-organismen bepaald in de kolommen was duidelijk hoger dan de verwijdering voor deze micro-organismen bepaald in de veldstudie. Op grond van een uitgebreide discussie is het temperatuurverschil tussen de kolomstudie en de veldstudie van 7°C als een belangrijke factor oorzaak van de verschil genoemd. De twee andere mogelijke verklaringen zijn (i) een grotere doorlatendheid van het pakket onder veldcondities door heterogeniteit en preferente stroombanen en (ii) een hogere pH bij de veldstudie. Bij de extrapolatie van de gegevens van dit onderzoek naar de praktijk kan met de factor temperatuur rekening worden gehouden. Omdat voor heterogeniteit en pH (nog) geen kwantitatieve relaties bekend zijn geldt dat voor deze factoren niet;
- De resultaten kunnen door extrapolatie vertaald worden naar de verwijdering per diepte van de grondwaterstand voor vergelijkbare bodems berekend onder vergelijkbare condities. Vertaling naar andere bodems met andere bodemfysische eigenschappen is mogelijk m.b.v. de lineaire empirische correlatie tussen de dynamiek van het vochtgehalte in de bodem en de verwijdering van

beide micro-organismen. De onzekerheid van deze benadering is (niet gekwantificeerd) groot gezien

- de lage doorbraak concentraties waarop de verwijdering bij de diepere grondwaterstanden zijn gebaseerd;
 - het geringe aantal waarnemingen waarop de extrapolatie wordt gebaseerd;
 - de grote onzekerheid van de relaties tussen de vochtdynamiek en temperatuur enerzijds en de verwijdering per laag anderzijds.
- De gegevens van het huidige onderzoek naar de invloed van de dikte van de onverzadigde zone zijn gebruikt om de invloed van de bij Solleveld uitgevoerde verhoging van de onverzadigde zone naar minimaal 1,0 m (Bijlage I) te berekenen. Hieruit blijkt dat dit een aanzienlijke verhoging van de effectiviteit van de bodempassage oplevert.

De aanbevelingen voor verder onderzoek om de onzekerheid over de vertaling te verkleinen zijn om meer kwantitatieve gegevens te verzamelen over:

- de invloed van de vochtdynamiek op de verwijdering door kolomstudies onder verschillende regenregiems;
- de invloed van een lage temperatuur op de verwijdering in de onverzadigde zone;
- de invloed van een langdurige belasting met organische stof uit mest op de verwijdering.

Inhoud

1	Inleiding	8
1.1	Belang van de onverzadigde zone en onderzoeksvragen	8
1.2	Doelstelling van het project	9
2	Onderzoekcondities	10
2.1	Veldonderzoek versus kolomonderzoek	10
2.2	Invloed van de dikte van de onverzadigde zone	10
3	Materialen & Methoden	12
3.1	Kolomopstelling	12
3.2	Bodemmateriaal: bemonstering en karakterisering	14
3.3	Het vullen van de kolommen	15
3.4	Berekening	16
3.5	Waterbalans, flow registratie en registratie vochtgehalte en zuigspanning	18
3.6	Tracerproeven	19
3.7	Micro-organismen in het regenwater	19
3.8	Overzicht van de experimentele fasen	20
4	Resultaten	21
4.1	Uitstroming aan de onderkant van de kolommen	21
4.2	Zuigspanning, vochtgehalte en hysteresis	22
4.3	Doorbraakcurven tracertesten	27
4.4	Waterkwaliteit: regenwater, doseersuspensie en filtraat	29
4.5	Micro-organismen in het regenwater: dosering en afsterving	32
4.6	Doorbraakcurven van de micro-organismen	34
4.7	De verwijdering van bacteriofagen en <i>E. coli</i>	38
4.8	Vergelijking met eerdere BTO studies	43
5	Discussie	45
5.1	Bodemfysische condities tijdens de proeven	45
5.2	Verwijdering van bacteriofagen en bacteriën in een onverzadigde zandbodem	48
5.3	Gegevens van kolomexperimenten versus de veldproef	50
5.4	Bodem-chemische reacties	52
5.5	Theoretische beschouwing van de resultaten	52
5.6	Vertaling naar de praktijk	56
6	Conclusies en aanbevelingen	62

7 **Referenties**

64

1 Inleiding

1.1 Belang van de onverzadigde zone en onderzoeksvragen

In het verleden is veel kennis ontwikkeld op het gebied van de bodem als barrière tegen ziekteverwekkende micro-organismen (Nobel et al., 1999, 2005; Medema and Stuyfzand, 2002; Schijven, 2001; Hijnen et al., 2005; Van der Wielen et al., 2008). Belangrijke aanleiding hiervoor was de wetenschappelijke onderbouwing van de 60 dagen zone rondom infiltratie, oeverfiltratie en freatische winningen en de behoefte om met een virustransport model de microbiologische veiligheid van bodempassage te kunnen voorspellen. Bij het model dat door RIVM is ontwikkeld wordt uitgegaan van de worstcase situatie van een besmetting door een lekkend riool, waarbij een besmetting direct in verzadigde grondwater zone plaatsvindt. Transport in de onverzadigde zone is in de berekeningen niet meegenomen. Transport in de onverzadigde zone is met name van belang voor de ondiepe grondwaterwinning in de duinen waar sprake kan zijn risico's van begrazing, recreatie en natuurlijke fauna in en om de winmiddelen. Dat dergelijke risico's bestaan wordt gesuggereerd door grondwatermonsters uit die gebieden waarin fecale indicatorbacteriën zijn aangetroffen. Ook worden soms bij grondwaterwinningen deze indicatoren in het opgepompte grondwater aangetroffen zonder dat een oorzaak kan worden achterhaald.

Door de aanwezigheid van drie fasen in de onverzadigde zone, lucht, water en zand verloopt het transport in deze bodemfractie anders dan in de verzadigde zone. In de internationale literatuur zijn publicaties bekend waarin melding wordt gemaakt van een grotere effectiviteit van de onverzadigde zone in vergelijking tot de verzadigde zone (Lance and Gerba, 1984; Wan et al., 1994; Morales et al., 2007). De eerste kwantitatieve BTO studies die waren gericht op de verwijdering van micro-organismen in de onverzadigde zone dateren van rond de eeuwwisseling en zijn uitgevoerd met een kolomproef op laboratoriumschaal (Nobel et al., 1999) en op veldschaal bij de locatie Solleveld (DUNEA; Nobel en Cirkel, 2005). Aanleiding voor deze onderzoeken vormde het kwantificeren van het microbiologische risico van begrazing en recreatie in waterwingebieden in de duinen met ondiepe terugwinning van infiltratiewater. Begrazing wordt daar bewust toegepast als ecologische beheersmaatregel en de kernvraag was of de winmiddelen moesten worden/blijven uitgerasterd, zodat grazers en recreanten niet nabij de winmiddelen konden komen. Bij deze proeven zijn waardevolle kwantitatieve gegevens verzameld over de verwijdering van ziekteverwekkende virussen, bacteriën en protozoën tijdens onverzadigd watertransport in een onverzadigde zandlaag van 50 cm.

Bij de veldstudie in 2005 zijn risicoberekeningen uitgevoerd die hebben geleid tot aanbevelingen over het terreinbeheer ten aanzien van begrazing en recreanten in het gebied. Tevens zijn de onzekerheden van deze berekeningen benoemd en is vervolgonderzoek aanbevolen. De benoemde onzekerheden voor de doorvertaling naar risico's van begrazing en recreatie waren input van ziekteverwekkers aan maaiveld en doorvertaling van de meetresultaten naar dikkere onverzadigde zones (Nobel en Cirkel, 2005). Dit om meer zekerheid te hebben over de effectiviteit van beheersmaatregelen als waterpeilbeheer en/of aanbrengen van een deklaag.

Er is een vervolgonderzoek geformuleerd naar de onzekerheid over de input van micro-organismen aan maaiveld en de doorvertaling naar onverzadigde zone met verschillende diktes. Het aspect van de input gaat om de kwantitatieve uitspoeling uit de fecale matrix, de regenintensiteit en invloed van de organische matrix. Het uitspoelproces uit de fecale matrix is uitgezocht in DPW-verband (Hijnen et al., 2013). Bij de doorvertaling naar dikkere onverzadigde zones gaat het om de vraag op welke kwantitatieve wijze de verwijdering gemeten in het veldonderzoek vertaald kan worden naar andere onverzadigde zones met een grotere dikte. In het onderzoek beschreven in dit rapport staat deze vraag centraal en is aanvullend gekeken naar de invloed van de regenintensiteit en het oplosbare deel van een mestmatrix.

1.2 Doelstelling van het project

Bepaal de mate waarin ziekteverwekkende micro-organismen die in fecale deposities aan maaiveld aanwezig zijn, worden verwijderd in de onverzadigde zone en wat de invloed is van de dikte van de zone, van de regenintensiteit en van organische bestanddelen van fecaliën bestanddelen op de verwijdering van micro-organismen in deze zone.

2 Onderzoekcondities

2.1 Veldonderzoek versus kolomonderzoek

In de voorbereiding van dit project is nagedacht over de wijze waarop de vragen beantwoord zouden moeten worden. Belangrijkste randvoorwaarden voor de uitvoering van het project waren:

- Resultaten vertaalbaar naar de praktijk;
- Goede onderbouwing van het kwantitatieve effect van de dikte van de onverzadigde zone op de verwijdering.

In eerder onderzoek zijn een verschillende experimentele methoden gebruikt om zo goed als mogelijk de condities in het veld na te bootsen (Nobel et al., 1999; Nobel en Cirkel, 2005). De belangrijkste redenen om in overleg met de themagroep H&V van een veldexperiment bij het huidige onderzoek af te zien en het onderzoek uit te voeren in gepakte kolommen, waren:

- Hoge kosten van veldexperimenten;
- Toename van het aantal oncontroleerbare variabelen in het veldonderzoek, die de uitkomst over verschillen tussen verschillende diktes onzeker maken;
- Beter beheersbare en controleerbare condities in kolomexperimenten.

Om de vertaling van de resultaten naar de praktijk zo goed mogelijk te kunnen doen is in het project een uitgebreide hydrologische beschrijving van de onverzadigde zone in de kolommen toegevoegd. Daarbij zijn tevens de hydrologische condities van de veldproef bij Solleveld nader gemodelleerd (de Vries, 2013). In de experimentele opzet en de uitwerking van de gegevens is gestreefd om de proefcondities van de gepakte kolommen te kunnen vergelijken met de proefcondities van de veldproef.

2.2 Invloed van de dikte van de onverzadigde zone

Bij de kolomcondities zijn twee condities van belang voor de verdere beschrijving van het onderzoek:

- Omdat de dikte van een onverzadigde zone wordt bepaald door de waterstand in de bodem en dit van invloed is op de waterhuishouding in de bovenstaande onverzadigde zone is ervoor gekozen om het onderzoek in drie afzonderlijke kolommen uit te voeren en niet in één kolom bemonsterd over de hoogte. Omdat een bemonstering over de hoogte de proef in een kolom te veel verstoort, is eveneens besloten een dergelijke monsternamen in de 1,5 m kolom niet uit te voeren.
- Als uitstroom is gekozen voor vrij drainerende condities. Als gevolg hiervan ontstaat onderin elke kolom een (dunne) vol capillaire zone. Er is voor deze uitstroom gekozen omdat het opleggen van een bepaalde onderdruk met bijvoorbeeld een druk plaat, gezien de dan benodigde poriediameter van de plaat, mogelijk de verwijdering van *E. coli* zou kunnen beïnvloeden.

Consequentie van deze keuzes is dat niet zozeer de verwijdering over verschillende intervallen van een bepaald onverzadigd bodemprofiel zijn

onderzocht, maar dat eigenlijk de verwijdering bij verschillende dieptes van de grondwaterstand is onderzocht.

3 Materialen & Methoden

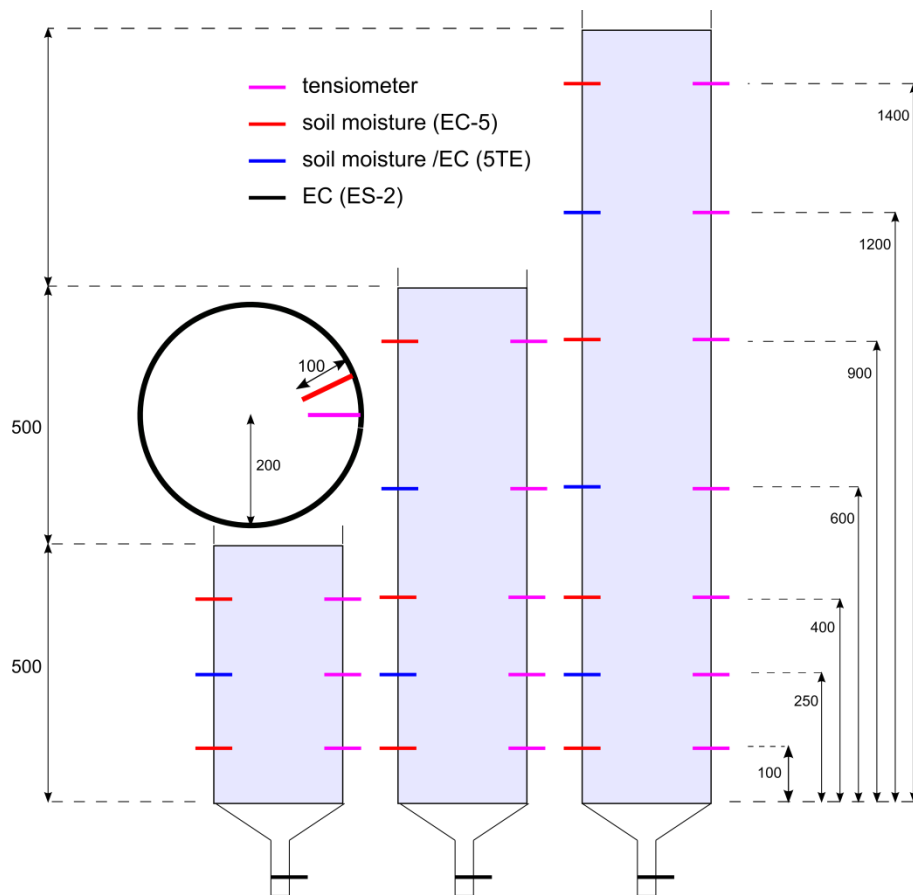
3.1 Kolomopstelling

Er is een opstelling gemaakt met drie hard PVC kolommen (10 mm) met een diameter van 40 cm en een lengte van respectievelijk 0,5, 1,0 en 1,5 meter op een RVS frame. In de kolommen zijn doorvoeropeningen met kabelwartels aangebracht voor het plaatsen van sensoren. Er is gekozen voor een vrij drainerende onderzijde van de kolom. De bodemconstructie bestaat uit een nylon filterdoek (poriegrootte 100 μm) op een geperforeerde Polyacetaat (POM) kunststof bodemplaat. Op het nylondoek is vervolgens het bodemmateriaal aangebracht. Onder de bodemplaat bevindt zich een opvangbak met uitloop en doorstroomcel voor het plaatsen van een EGV sensor.

Om de resultaten van de kolomproeven te kunnen vertalen naar andere bodems moet inzicht worden verkregen in de hydraulische eigenschappen van de grond in de kolommen. Belangrijke parameters hierbij zijn de variabele (negatieve) druk en het vochtgehalte profiel in de kolom. Om de druk- en vochtcondities te monitoren tijdens de proeven zijn drukopnemers (Rhizo Instruments autofill tensiometers) en bodemvochtsensoren (Decagon EC-5 en 5TE sensoren) in de kolommen geplaatst. Met de uitgewerkte resultaten van deze metingen kunnen de proefresultaten worden gerelateerd aan (generieke) bodemkarakteristieken. Een deel van de bodemvochtsensoren (5TE) kan tevens indicatief het elektrisch geleidingsvermogen (EGV) in het bodemvocht meten. Onder de percolaat afvoerruimte is een doorstroomcel aangebracht voor het plaatsen van een EGV (EC) sensor (Decagon ES-2). Met deze sensor wordt de zoutdoorbraak aan de onderkant van de kolom geregistreerd, op basis waarvan transportparameters (snelheid v , diameter D , retardatie) worden afgeleid. De in de kolommen aangebrachte sensoren zijn aangesloten op een datalogger (Campbell Scientific CS1000 met twee multiplexers). In de kolommen zijn doorboringen gemaakt voor het plaatsen van sensoren op verschillende hoogtes (Figuur 3-1). In Tabel 3-1 zijn de gegevens van de drie kolommen samengevat. De uit de sensoren verkregen informatie en de fluxen worden gebruikt om de relatie tussen vochtgehalte en druk ($\theta(h)$) en de relatie tussen doorlatendheid en het vochtgehalte ($k(\theta)$) af te leiden voor de bestudeerde bodems.

Tabel 3-1 De globale dimensies van de drie kolommen. De (veldvochtige) bulkdichtheid van het zand is bepaald door de gewichtstoename na vullen te delen door het volume van de kolom.

	Eenheid	Kolom A	Kolom B	Kolom C
Diameter zandkolom	mm	400	400	400
Lengte zandkolom	m	0,5	1,0	1,5
Bulkdichtheid zand na vullen	kg/m ³	1479	1336	1463



Figuur 3-1 Schematische weergave locaties sensoren in de drie bodem kolommen



Figuur 3-2 Uiteindelijke opstelling kolommen met beregeningsvoorziening, sensoren, aansturing en waterafvoer. Van links naar rechts: de 1,5 m kolom, de 0,5 m kolom en de 1,0 m kolom

3.2 Bodemmateriaal: bemonstering en karakterisering

Er is nadrukkelijk gekozen voor handmatig gepakte zandkolommen in plaats van voor gestoken kolommen. Het in het veld steken van kolommen is in vergelijking disproportioneel duur, er kan gemakkelijk kortsluitstroming langs de kolomwand ontstaan door vervormingen van de kolom en de ruimtelijke heterogeniteit van het zand kan resulteren in niet reproduceerbare verschillen in hydraulische eigenschappen. Als bodemmateriaal is gekozen voor in de nabijheid van de veldlocatie Solleveld (Nobel en Cirkel, 2005) afgegraven zand. Het gaat hierbij om kalkarm tot kalkloos, leemarm, zeer humusarm matig fijn zand. Voordeel van het gebruikmaken van dit zand is dat dit een vergelijking van de resultaten van de kolomexperimenten met de resultaten van dit belangrijke veldexperiment beter mogelijk maakt. Door Dunea is het bodemmateriaal van deze veldlocatie vanaf 25 cm onder maaiveld afgegraven en in een big-bag naar KWR vervoerd (Figuur 3-3). Bij visuele inspectie bleek het zandmateriaal veel plantenwortels (Helm) te bevatten. Om te voorkomen dat deze worteldelen in de drie kolommen zouden leiden tot niet reproduceerbare verschillen in heterogeniteit, is besloten ze uit het zand te verwijderen door uitzeven over een grove zeef (10/10 mm; Figuur 3-4). Dit materiaal is droog opgeslagen in big bags bij kamertemperatuur voordat de kolommen zijn gevuld.



Figuur 3-3 Afgraven en bemonsteren van de bodem bij de veldlocatie Solleveld



Figuur 3-4 Zeven van het bodemmateriaal om plantenwortels te verwijderen

Van het bodemmateriaal zijn een aantal fysische en geochemische parameters bepaald met technieken die deels eerder zijn beschreven (Nobel en Cirkel, 2005; Tabel 3-2). Uit een vergelijking van de onderzochte bodemsoorten blijkt dat de korrelgrootte verdeling en geochemische eigenschappen nagenoeg overeen komen. Wel bevat het bodemmateriaal van de kolommen iets minder lutum (0.3% in plaats van 0.7 % bij de Solleveld proef (30-50cm-mv). De permeabiliteit is op basis van Ernst & Fahmi (1965) eveneens vergelijkbaar. Het in de kolommen gebruikte zand bevat iets meer organische stof dan de bodem bij de Solleveld proef. Grotere verschillen zijn zichtbaar bij het kalkgehalte (0.1% in plaats van 0.02%) en het gehalte totaal aluminium. Hoewel bij een lager lutum gehalte ook lagere aluminiumgehalten te verwachten zijn, kan dit het verschil niet goed verklaren. Een mogelijke additionele verklaring is een verschil in sterkte van de gebruikte destructiemethode in het laboratorium. Omdat het gehalte oxalaat extraheerbare aluminium (aluminiumoxiden) wel ongeveer overeenkomt, zijn echter geen grote verschillen in reactiviteit te verwachten.

Tabel 3-2 Overzicht van de fysische en geochemische karakteristieken van het bodemmateriaal van de veldlocatie en de huidige kolommen

Parameter	Eenheid	Nobel en Cirkel (2005) 30-50 cm	Bodemmateriaal kolommen
Zeefclassificatie	(%)		
uiterst tot zeer fijn	zand 50-150 µm	9,6	11,0
matig fijn	zand 150-210 µm	34,8	35,8
matig grof	zand 210-420 µm	52,6	51,7
Grof tot zeer grof	zand >420 µm	1,4	0,0
totaal	zand 50-2000 µm	98,4	98,5
Permeabiliteit ^a	m/d	11,8	12,0
Org. stof	%	0,69	1,3 / 0,80 ^c
CEC ^b	meq/kg	11,9	-
Kalk (TGA)	%	0,02	0,1
N-tot	mg/kg	286	-
S-tot	mg/kg	27	56
P-tot	mg/kg	158	-
P-ox	mg/kg	-	112
Fe-ox / Fe-tot	%	0,08; 0,30	0,066; 0,241
Al-ox / Al-tot	%	0,03; 1,46	0,020; 0,118
Mn-ox / Al-tot	%	0,0004; 0,009	0.0016; 0.00318

^a Berekend volgens Ernst & Fahmi (1965); ^b berekend op basis van lutum en org. Stof; ^c eenmalig veld/gemiddelde steekmonsters uit kolommen.

3.3 Het vullen van de kolommen

De wijze waarop de kolommen zijn gevuld met bodemmateriaal is gebaseerd op een literatuurverkenning over dit onderwerp (Cai, 2013). Om een zo uniform mogelijke kolompakking te realiseren werd vochtig vullen in zo klein mogelijke laagjes en verdichten door geforceerde mechanische belasting (stampen) als meest optimaal beoordeeld. In eerste instantie is een bodem/water mengsel gemengd in een mixer en in lagen van ca. 10 cm in de 0,5 m kolom aangebracht en vervolgens verdicht doormiddel van stampen met een zware stalen schijf aan een steel. Door een te hoog vochtgehalte ontstond tijdens het verdichten een laag water met fijn (organisch) materiaal op het aangestampte zand. Bij het aanbrengen van de volgende laag zand raakte dit fijne materiaal ingesloten als een slecht doorlatend sliblaagje. Bij het testen

van de kolom bleek dat de doorlatendheid van de kolom hierdoor sterk afnam en zelfs verzadiging boven de sliblaagjes optrad. Om dit probleem te ondervangen is de methode aangepast en is het zand in dunne lagen van 2-3 cm aangebracht, met een plantenspuit bevochtigd tot een veldvochtige toestand en voorzichtig verdicht. Na het aanbrengen en verdichten van elke laag is het oppervlak opgeruwd alvorens een nieuwe laag is aangebracht. Tijdens het pakken zijn de bodemvochtsensoren zorgvuldig op de bestemde hoogtes (Figuur 3-1) ingestort in het zand. Na het laagsgewijs vullen en verdichten van de kolommen zijn ze gewogen en is de infiltratiecapaciteit getest. Hieruit kwamen geen problemen meer naar voren. Het in dunne lagen vullen en verdichten betekende een aanzienlijke tijdsinspanning voor het vullen van de gehele installatie met drie kolommen oplopend tot 1,5 meter lengte. Na het goedkeuren van de kolommen zijn de tensiometers door de vooraf in de kolommen aangebrachte doorvoeropeningen in de kolom geplaatst.

Op basis van het lege gewicht en het gewicht na het vullen kan de overall bulkdichtheid per kolom worden berekend (Tabel 3-1). In aanvulling op deze relatief ruwe benadering zijn na het afronden van de proeven per kolom twee steekmonsters genomen ter bepaling van het verzadigd vochtgehalte en de droge bulkdichtheid. De resultaten van deze metingen zijn opgenomen in Tabel 3-3. De gemeten dichtheden van het zand in de kolommen zijn in lijn met de (veldvochtige) dichtheid bepaald door weging van de gehele kolommen (Tabel 3-1). De verschillen in verzadigd vochtgehalte, en in mindere mate de bulkdichtheid tussen de kolommen zijn beperkt. Ondanks de in verhouding wat lagere dichtheid van kolom B zijn al de gemeten waarden goed in lijn met literatuurwaarden voor matig fijn leemarm zand (dichtheid: 1200 - 1700 kg/m³; verzadigd vochtgehalte: 36-43%). Geconcludeerd mag worden dat het vullen en verdichten heeft geresulteerd in representatieve kolommen voor in Nederland veel voorkomende matig fijne zandbodems.

Tabel 3-3 Verzadigd vochtgehalte (θ_s) en de droge bulkdichtheid (ρ_d) van de 6 genomen steekmonsters

Kolom	Diepte (cm)	θ_s (-)	ρ_d (kg/m ³)
0.5 m kolom	5-10	38.3	1493
	10-15	39.1	1497
1.0 m kolom	5-10	40.8	1371
	10-15	40.9	1289
1.5 m kolom	5-10	41.8	1399
	10-15	41.7	1411

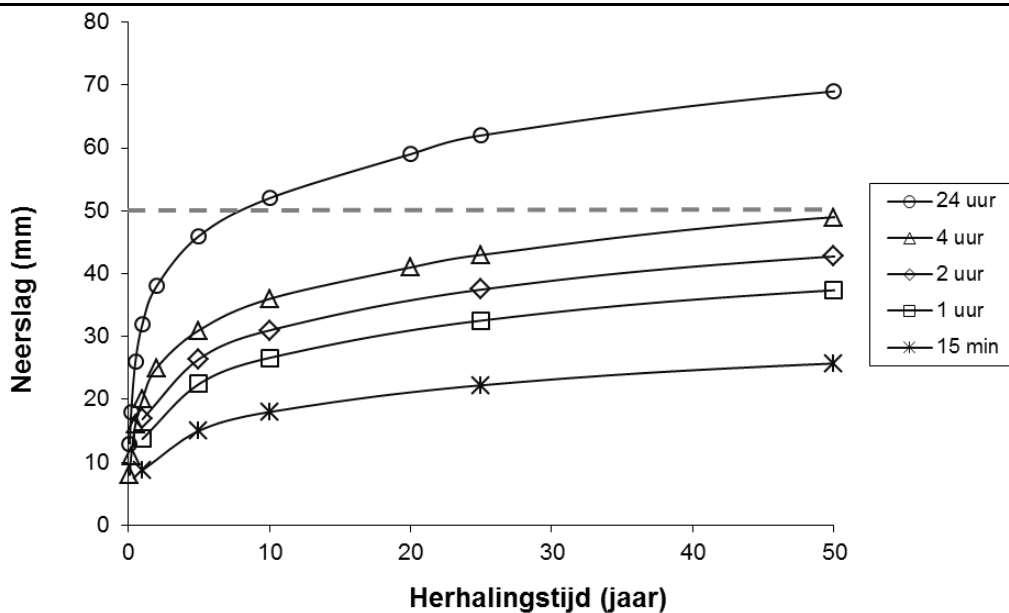
3.4 Berekening

In een eerder onderzoek naar verwijdering van micro-organismen in de onverzadigde zone (Nobel & Cirkel, 2005) is voor de berekening gebruik gemaakt van leidingwater. In voorliggend onderzoek is gebruik gemaakt van in het laboratorium samengesteld kunstmatig regenwater, representatief voor de huidige regenwater samenstelling in het kustgebied (regenwatersamenstelling meteostation De Zilk-Vogelaarsdreef), waar ook het bodemmateriaal is verzameld. Het samengestelde 'regenwater' is lading neutraal, zwakzuur en bevat relatief veel Natrium en Chloride (Tabel 3-4). Bij de eerdere kolomproeven (Nobel et al., 1999) en de veldproef (Nobel en Cirkel, 2005) is een berekening toegepast van 50 mm per dag toegediend in een bui met een duur van 4

uur. Dit is een vrij extreme regenintensiteit met een herhalingsstijd van ongeveer 50 jaar (Figuur 3-5) en is daarmee een zeldzame gebeurtenis (Buishand en Wijngaard, 2007). Gezien het extreme karakter is ervoor gekozen de intensiteit van de bui te halveren naar 25 mm neerslag per dag, toegediend over een periode van 4 uur. Een dergelijke bui heeft een herhalingsstijd van 2 jaar op basis van de huidige regenstatistieken.

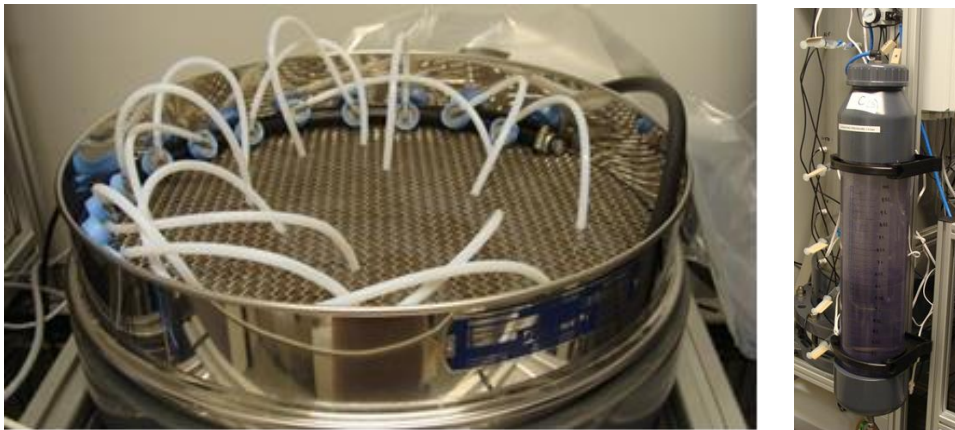
Tabel 3-4 Samenstelling van het kunstmatige regenwater

Component	mmol/l	Component	mmol/l
Na ⁺	0.1883	Cl ⁻	0.22
K ⁺	0.0073	NO ₃ ⁻	0.035
Ca ²⁺	0.0091	SO ₄ ²⁻	0.03
Mg ²⁺	0.0217	H ⁺	0.015
NH ₄ ⁺	0.044	pH	5.0



Figuur 3-5 Herhalingsstijden van neerslaghoeveelheden afhankelijk van de periode waarover de neerslag valt. Data op basis van Buishand en Wijngaard (2007)

Het regenwater werd wekelijks aangemaakt in een hoeveelheid van 50 liter, voldoende voor 5 dagen beregening. Bij iedere kolom is een vat met overdruk gemonteerd waarin een voorraad van 10 liter regenwater kon worden aangebracht (Figuur 3-6). Voor de uitvoering van de beregening is gekozen voor een PE aanvoerleiding (10 mm inwendig) waar aan het einde een 15-tal druppelaars (Dripper, Supertif, 1,1 L/h bij 1-2 Bar) zijn geplaatst die elk met een bepaalde voordruk water doorlaten met een constant laag debiet (ca. 0,9 milliliter/min bij 25mm beregening in 4 uur; Figuur 3-6). Via de PE leiding en een centrale magnetische klep met pulserende opening werd het regenwater naar de drie kolommen met regenvalsimulatoren gebracht. De 15 druppelaars van de regenvalsimulator druppelden met een teflon slang het regenwater verspreid over het oppervlak van de zandkolom. Om de waterverdeling zo optimaal mogelijk te maken en te voorkomen dat het zandoppervlak door de druppels wordt vervormd is op het zandoppervlak een dunne laag glasparels (ca. 2 cm; <5 mm) aangebracht. Deze laag glasparels reduceert tevens de bodemverdamping. Om verdamping verder tegen te gaan zijn de regenvalsimulatoren afgedekt met kunststof folie.



Figuur 3-6 De regenvalsimulator en het regenwater voorraadvat

Tijdens de uitvoering bleek dat de flow van dit beregeningsysteem te onregelmatig was om precies 3 liter over 4 uur te beregenen met een constante flow. Om zeker te zijn dat niet meer of minder dan de beoogde 3 liter werd beregend is besloten tijdens werkdagen de voorraadvaten met 3 liter regenwater te vullen en de dosering zodanig in te stellen qua tijd dat het volledige volume werd beregend. In de weekenden werd wel voldoende regenwater aangebracht voor de drie opeenvolgende nachten (totaal 9 liter). Uiteindelijk zijn afwijkingen in beregeningsgift hiermee beperkt gebleven.

3.5 Waterbalans, flow registratie en registratie vochtgehalte en zuigspanning

Om tijdens de beregeningsproeven de uitstroming en daarmee de waterbalans te kunnen meten is het uit de kolom stromende water opgevangen in verwisselbare containers van 10 liter, geplaatst op een elektronische bankweegschaal (HM®, WP30-6/AST-AN). Met een meetinterval van 2 minuten is het gewicht van de containers geregistreerd om de waterflow te kunnen bepalen. Uit de continu geregistreerde getallen is de flow per minuut berekend. Om de waterdoorbraak van de kolommen te beschrijven is het uurgemiddelde van deze flow uitgezet tegen de tijd.

Een belangrijke hydraulische eigenschap van een bodem is het vermogen om vocht vast te houden. Deze eigenschap wordt beschreven met een zogenaamde retentie- of pF-curve die de relatie beschrijft tussen het vochtgehalte θ (-) van de bodem en de bodemvocht potentiaal of zuigspanning ψ (cm). Deze relatie is samen met de doorlatendheidskarakteristiek (de relatie tussen de doorlatendheid van de bodem en het vochtgehalte) bepalend voor de stroming van water en opgeloste of gesuspendeerde stoffen door een onverzadigde zone. De vorm van de waterretentiecurve kan worden beschreven met het Van Genuchten (1980) model beschreven met:

$$\theta(\psi) = \theta_r + \frac{\theta_s - \theta_r}{[1 + (\alpha|\psi|)^n]^{1-1/n}}$$

Waarin:

θ_s = verzadigd vochtgehalte (cm³/cm³)

θ_r = residueel vochtgehalte (cm³/cm³)

$|\psi|$ = zuigspanning (cm waterkolom)

α = vormparameter gerelateerd aan de inverse van de air entry pressure (cm⁻¹)

n = vormparameter gerelateerd aan de porie grootte distributie (-)

De in de kolom geplaatste tensiometers en bodemvocht sensoren maken het mogelijk om deze relatie voor elk van de kolommen af te leiden. Uit het voorgaande kan de indruk zijn ontstaan dat voor een bodem één retentiecurve bestaat. Dit is helaas niet het geval, een uitdrogende natte bodem (desorptie) gedraagt zich anders dan een nat wordende droge bodem (absorptie). Het gedrag van een bodem is conservatief: een eenmaal natte bodem blijft bij uitdrogen aan de natte kant, een eenmaal droge bodem bij bevochtigen aan de droge kant. Dit verschijnsel wordt hysteresis genoemd en wordt in bodems voornamelijk veroorzaakt door de onregelmatige vorm van de poriën. In de literatuur (e.g. Wösten et al. 2001) worden over het algemeen de desorptiecurves gepresenteerd. Ook in modelberekeningen wordt meestal van deze curves uitgegaan, al dan niet met gefitte hysteresis parameters. In deze studie is de desorptiecurve bepaald door de vochtige bodemkolommen na berekening gedurende 9 dagen onder vrije drainage uit te laten drogen en op de verschillende dieptes de zuigspanning en het vochtgehalte te meten. Daarnaast is de zuigspanning en het vochtgehalte na intensieve uitdroging na het beëindigen van de proef gemeten. Het verzadigde vochtgehalte is bepaald aan de hand van de eerder beschreven steekmonsters (Tabel 3-3). Vervolgens is het programma RETC v6.02 (van Genuchten et al., 1991) gebruikt om retentiecurves per kolom te fitten op representatieve punten uit de geselecteerde meetperiode. Het vaststellen van een absorptiecurve is veel minder triviaal en met de kolomopzet moeilijk vast te stellen. Wel geeft de continue meting van druk en zuigspanning een indruk van de mate waarin hysteresis optreedt.

3.6 Tracerproeven

Met het doseren van een zoutoplossing van 1 gram NaCl/l aan de kolommen tijdens een regenbui werd de verblijftijdspreiding van het water in de kolommen beschreven. Er werd een volledige dagelijkse regenbui gedoseerd met NaCl en in het effluent werd continu de geleidbaarheid geregistreerd. Bij de eerste doseerproef bleek uit het patroon van de doorbraak en een aantal handmetingen dat de geleidbaarheidsmeting in de doorstroomcel met sensor niet goed functioneerde. Oorzaak hiervan was de zeer variabele waterstroom door de doorstroomcel: bij de zeer lage debieten werd de cel niet voldoende ververst waardoor in de oplopende fase de gemeten geleidbaarheid te laag was en in de aflopende fase te hoog. Hierdoor kan wel een massabalans opgesteld worden, maar worden geen stabiele doorbraakcurves verkregen. Aanpassing van de doorstroomcel was binnen het project helaas niet meer mogelijk. Om dit te ondervangen is de intensiteit van handmetingen opgevoerd. Voor eventuele toekomstige modellering zullen helaas m.b.v. extrapolatie de geleidbaarheidscurven geplot moeten worden. Na de zoutproef zijn de kolommen enkele dagen gespoeld met kunstmatig regenwater om de zoutgehalten in de kolommen terug te brengen naar de oorspronkelijke waarden.

3.7 Micro-organismen in het regenwater

Doseersuspensie voor experiment 1 en experiment 2. *E. coli* werd 24 uur voorgekweekt in Lab Lemco Broth bij 37°C. Vervolgens werd deze suspensie driemaal gewassen met steriel drinkwater gedurende 10 minuten in een centrifuge (4000RPM). Een suspensie van MS2 (batch no. 13.10.15) en PhiX174 (batch no. 13.10-28) bacteriofagen van GAP Enviro Microbial Services, (gegevens suspensie; batch, data) werd voor experiment 1 aan het regenwater gedoseerd. Voor de experimenten 2 en 3 werden alleen MS2 fagen gebruikt. Deze suspensies met micro-organismen werden aan het volume regenwater gedoseerd voor één dagelijkse regenbui (3 liter voor experiment 1 en 3; voor experiment 6 liter).

Doseersuspensie voor experiment 3 met Galloway mest. In experiment 3 is naast *E. coli* en MS2, ook een organische matrix toegevoegd bestaande uit voorbehandeld eluaat van Galloway mest. Hiervoor werd 0,8 kg Galloway mest geplaatst op een 500 µm zeef met daaronder zeven met verschillende maaswijdte en de laatste zeefmaat was 10 µm. Over de mest is 10 liter regen water gelopen in ongeveer 4 uur. In totaal werd 9 liter eluaat verzameld. Na de bepaling van het organisch stof is het eluaat verdund (1 deel eluaat en 1 deel regenwater). Vóór de regenbui werd een verdunde eluaat suspensie in regenwater gemaakt waarvan de hoeveelheid voor één bui (3x3 liter) werd beënt met de suspensie met voorgekweekte *E. coli* bacteriën. Uit eerder onderzoek was gebleken dat *E. coli* zich in deze matrix bij relatief lage temperatuur kan vermeerderen (Hijnen et al., 2013). Daarom is deze doseersuspensie voor de proef niet meteen gebruikt maar na 5 dagen om te garanderen dat de beregening zou plaatsvinden met een stabiele *E. coli* suspensie. Daarna werd MS2 aan de suspensie toegevoegd.

Bemonstering van het beregende water: afsterving. Van de doseersuspensie werd een hoeveelheid van 1 liter apart gezet in de donkere ruimte van de proefopstelling en gedurende de experimenten regelmatig bemonsterd om de afsterving van micro-organismen in het regenwater te bepalen.

Bemonstering van het beregende water: dosering aan de zandkolommen. Om een zo goed mogelijk beeld te hebben van de aantallen micro-organismen die op de zandkolommen waren gebracht, zijn bij iedere proef monsters van het regenwater uit de regensimulator genomen voor analyse.

3.8 Overzicht van de experimentele fasen

In Tabel 3-5 is een overzicht gegeven van de verschillende fasen in de experimentele periode. Hieruit blijkt dat er drie doseerexperimenten met *E. coli* en twee verschillende bacteriofagen met verschillende hechtingseigenschappen zijn uitgevoerd waarbij de invloed van de volgende variabelen op de verwijdering zijn onderzocht: kolomlengte, regenintensiteit en aanwezigheid van een organische matrix van fecale herkomst.

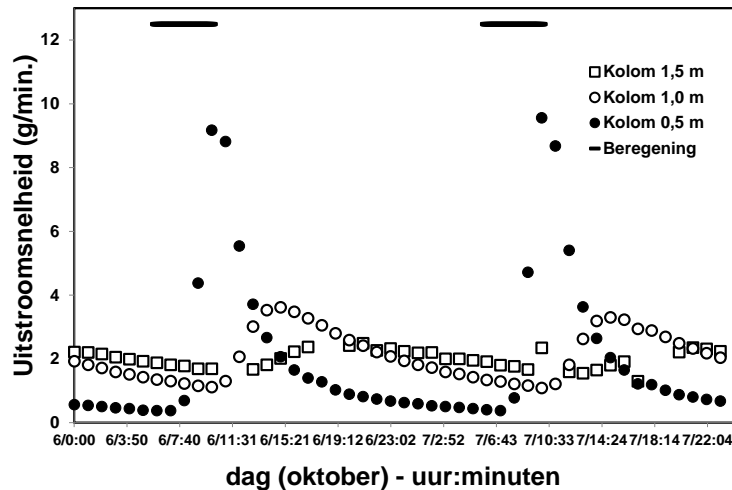
Tabel 3-5 Overzicht van de fasering van de drie doseerexperimenten

Periode	Fasen en condities
10.09.2013 — 26.09.2013	Eerste tracer test bij 25 mm/d
27.09.2013 — 14.10.2013	Microbiologisch experiment 1 bij 25 mm/d Micro-organismen: MS2, <i>E. coli</i> , PhiX174
14.10.2013 — 21.10.2013	Verandering regencondities naar 50 mm/d
22.10.2013 — 26.10.2013	Tweede tracer test op 0,5 m kolom bij 50 mm/d
27.10.2013 — 11.11.2013	Microbiologisch experiment 2 bij 50 mm/d, Micro-organismen: MS2, <i>E. coli</i>
12.11.2013 — 22.11.2013	Derde tracer test in alle kolommen bij 50 mm/d Microbiologisch experiment 3 bij 25 mm/d Micro-organismen: MS2, <i>E. coli</i> Organisch materiaal: opgewerkt eluaat van Galloway mest

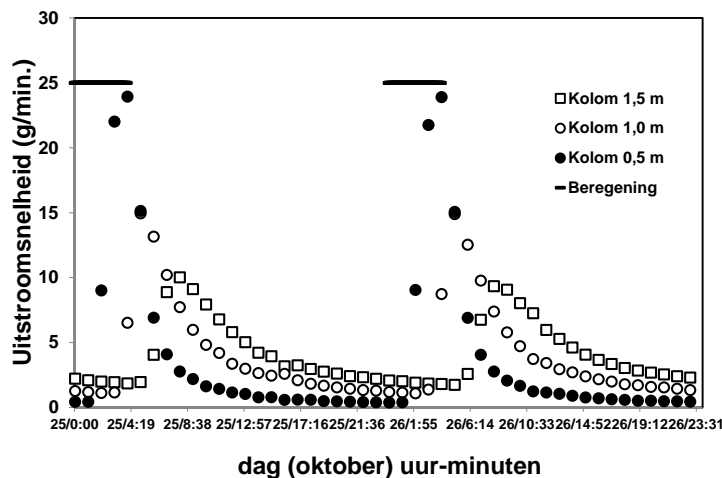
4 Resultaten

4.1 Uitstroming aan de onderkant van de kolommen

De waterdoorbraak als functie van de beregening voor de twee verschillende regenregimes (25 en 50 mm/d) staat weergegeven in Figuur 4-1 en Figuur 4-2. Daarnaast zijn in Tabel 4-1 de karakteristieken van de uitstroom opgenomen. Duidelijk blijkt dat er zeer grote variaties in de uitstroming optreden. De variatie in volumestroom is het grootst in de 0,5 meter kolom. In de langere kolommen is het uitstrooppatroon meer gedempt en deze hebben daarmee een hogere basisafvoer en lagere piekafvoeren. Zoals al aangegeven geeft de tijdelijk zeer geringe volumestroom in de kolommen problemen met het correct registreren van het elektrisch geleidingsvermogen en daarmee de zoutdoorbraakcurve bij de tracerproeven.



Figuur 4-1 Waterdoorbraakcurven van de drie kolommen bij een regenregiem van 25 mm/d



Figuur 4-2 Waterdoorbraakcurven van de drie kolommen bij een regenregiem van 50 mm/d

Bij een twee keer hogere regenintensiteit (van 25 mm/d naar 50 mm/d) bleek de maximale volumestroom uit de kolommen toe te nemen, maar de minimale volumestroom nagenoeg gelijk te blijven (Tabel 4-1). Opvallend is dat de maximale volumestroom bij verdubbeling van de regenintensiteit iets meer dan proportioneel toenam bij de 0,5 m kolom (factor 2,29), terwijl de maximale volumestroom bij de twee langere kolommen meer dan proportioneel toenam (respectievelijk een factor 3,76 en 3,77).

Tabel 4-1 Karakteristieken van de waterdoorbraakcurven bepaald bij 25 en 50 mm/d

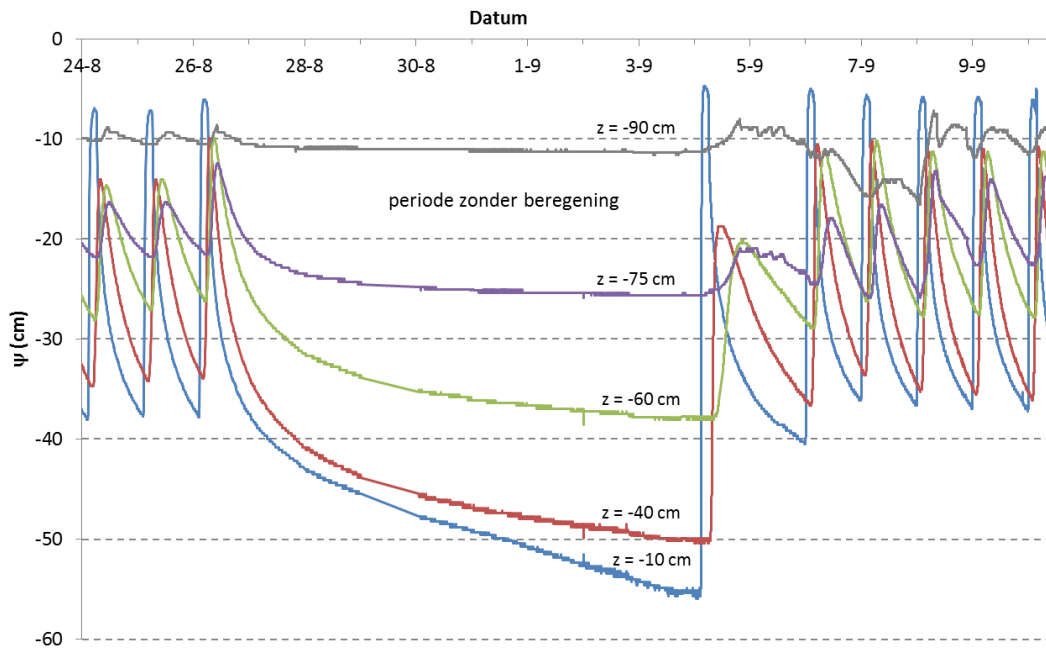
Snelheid en kolomlengte		Waterdoorbraak (uur)	Maximale volumestroom (ml/min)	Minimale volumestroom (ml/min)
25 mm/4 uur (12.5 ml/min)	0,5	2	10,8 na 3:59	0,4
	1,0	5	4,1 na 8:55	1,1
	1,5	8	2,6 na 14:29	1,5
50 mm/ 4 uur (25 ml/min)	0,5	2	24,7 na 3:53	0,4
	1,0	4	15,4 na 4:11	1,1
	1,5	5	9,8 na 7:35	1,7

4.2 Zuigspanning, vochtgehalte en hysteresis

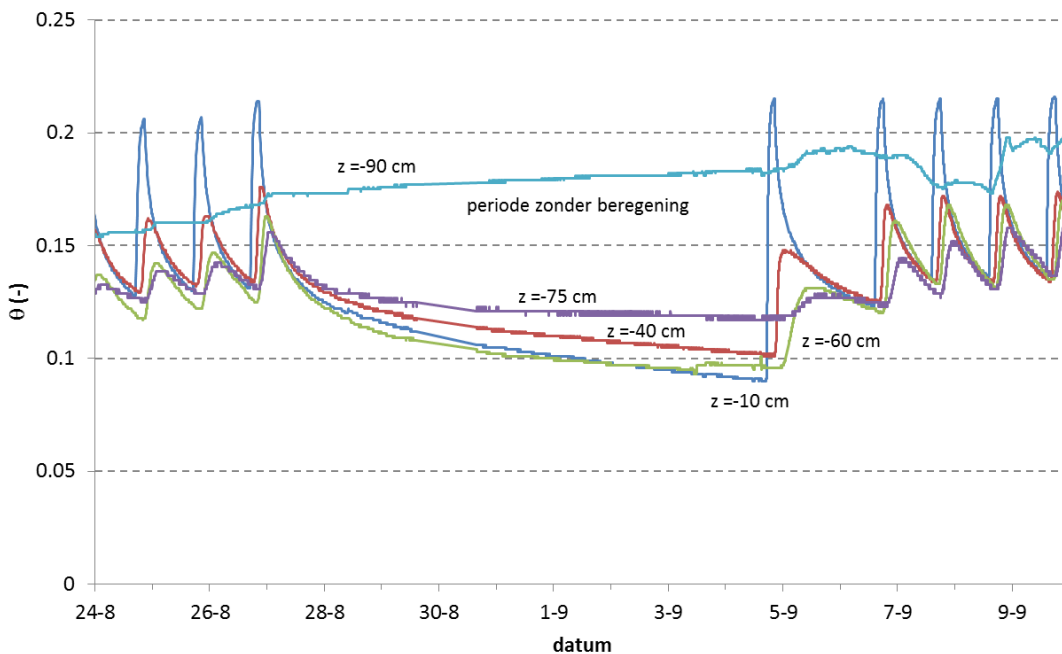
De op verschillende dieptes in de kolom geplaatste tensiometers geven bruikbare informatie over het verloop van de zuigspanning over de diepte en over de tijd (Figuur 4-3). Vooral in periodes zonder beregening is goed het verschil in zuigspanning tussen de verschillende tensiometers zichtbaar. Wat tevens opvalt, is de grote invloed van de onderrand van de kolom op de zuigspanning in de kolom. De druk op 10 en 25 cm boven de onderrand (respectievelijk $z = -90$ en $z = -75$) stelt zich relatief snel in op een evenwichtsprofiel. Bij een dergelijk evenwichtsprofiel is de druk in de kolom gelijk aan de negatieve waarde van de hoogte boven de onderrand van de kolom. Verder naar boven in de kolom duurt het langer voordat na het stoppen van de beregening een evenwichtsprofiel wordt bereikt. Voor de bovenste drie tensiometers was de in Figuur 4-3 weergegeven periode zonder beregening zelfs te kort voor het bereiken van een evenwichtsprofiel. Als vervolgens wordt gekeken naar het gedrag van de zuigspanning tijdens beregening is een regelmatig patroon van eerst toenemende druk en vervolgens na de bui weer afnemende druk zichtbaar. De grootste variatie in zuigspanning treedt op bovenin de kolom ($z = -10$ cm), hier neemt de druk tijdens een bui snel toe naar bijna 0 om vervolgens over ongeveer 24 uur weer geleidelijk te dalen naar een druk van ca. -37 cm, waarna de volgende bui weer een stijging van de druk geeft. De drukgolf verplaatst zich vervolgens met een geringe vertraging (max enkele uren) door de kolom naar het uitstroompunt en dempt onderweg uit (Figuur 4-3). Het is hierbij goed om te realiseren dat deze drukgolf zich vele malen sneller verplaatst dan het beregende water wat er meerdere dagen over doet om het einde van de kolom te bereiken.

De bodemvochtsensoren geven een met de tensiometers vergelijkbaar signaal, met grote dynamiek bovenin de kolom en sterke uitdemping van het beregeningssignaal in de stroomrichting van de kolom (Figuur 4-4). Anders dan de tensiometer meting is een bodemvochtmeting geen directe meting, maar wordt de waarde berekend uit de gemeten dielectrische constante van de bodem. Vervolgens wordt deze waarde met een calibratievergelijking omgerekend naar een vochtgehalte. Door het omrekenen kunnen afwijkingen van meerdere procenten ontstaan ten opzichte van het werkelijke vochtgehalte. Uit de metingen komt verder naar voren dat het vernatten van de kolom

tijd nodig heeft. Pas na bijna 3 weken na de start van de berekening op 15 augustus bereiken de onderste bodemvochtsensoren een min of meer stabiel regime.



Figuur 4-3 Voorbeeld van het gemeten verloop van de zuigspanning (ψ) in de 1 meter kolom. Bij elke lijn is de diepte (z) van het meetpunt ten opzichte van het bodemoppervlak in de kolom weergegeven. Meetresolutie: 10 minuten

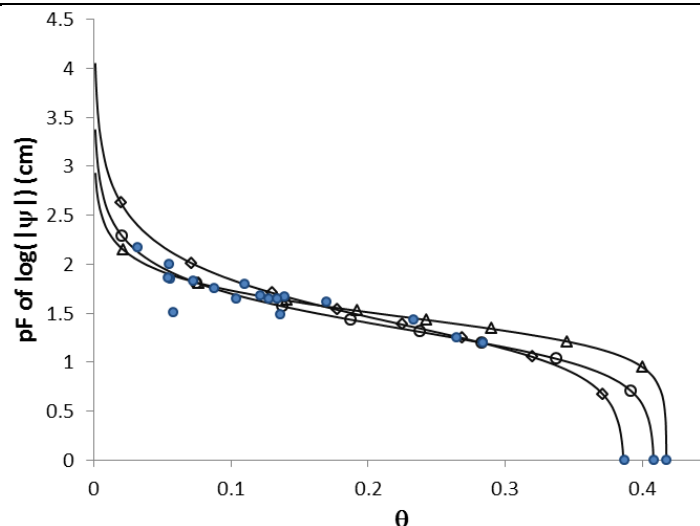


Figuur 4-4 Voorbeeld van het gemeten verloop van het bodemvochtgehalte (θ) in de 1 meter kolom. Bij elke lijn is de diepte (z) van het meetpunt ten opzichte van het bodemoppervlak in de kolom weergegeven. Meetresolutie: 10 minuten

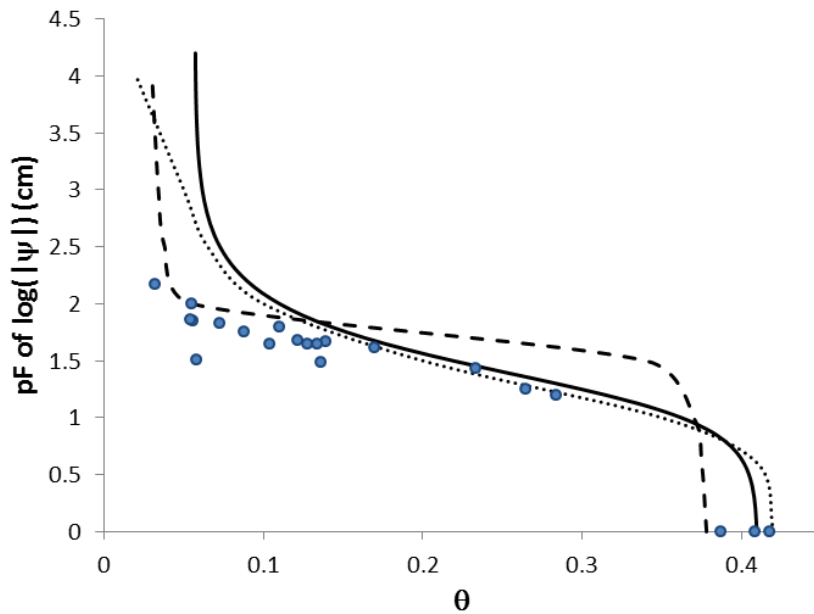
Uit de meetreeksen afkomstig van de tensiometers en bodemvochtsensoren zijn na de instelperiode een aantal periodes geselecteerd waarbij continue uitdroging van de kolommen optrad (geen berekening). Vervolgens zijn binnen deze 'desorptieperiodes' representatieve punten geselecteerd (blauwe punten, Figuur 4-5) om de retentiecures op te fitten. De gecombineerde meetpunten van de tensiometers en bodemvocht sensoren bevinden zich allen binnen het veldcapaciteitstraject. De verzadigde vochtgehalten zijn overgenomen uit de resultaten van de steekmonsters genomen na beëindiging van de proeven (Tabel 3-3). Uit de resulterende retentiecures (Figuur 4-5) blijkt dat de waterretentie in de kolommen, onderling goed vergelijkbaar is. De gefitte Van Genuchten modelparameters zijn opgenomen in Tabel 4-2. Opvallend is het voor duinafzettingen typische vlakke verloop van de curve tussen pF 1 en 2, wat wijst op een relatief homogene porieverdeling. Ter vergelijking zijn de referentiepunten geplot met een tweetal uit beschikbare literatuur afkomstige retentiecures en de invers met Hydrus 2D afgeleide retentiecure voor de Solleveld proef (Figuur 4-6). Het natte bereik van de Stakman (1969) curve en de Solleveld curve komen goed overeen met de data uit de kolommen. In het droge bereik komt de curve van Pluis (1993) juist beter overeen. Opgemerkt dient te worden dat de relatief hoog gekozen waarde voor het residueel vochtgehalte ($\theta_r = 0.057$) bij de modellering van de Solleveld proef waarschijnlijk weinig invloed heeft op de modelresultaten, maar wel sterk de vorm van de curve beïnvloed in het droge bereik. In het voor transport belangrijke natte bereik komt de Solleveld curve wel goed overeen met de kolommetingen.

Tabel 4-2 Met RETC gefitte Van Genuchten model parameters

Parameter	Kolom A 50 cm	Kolom B 100 cm	Kolom C 150 cm
θ_r	0	0	0
θ_s	0.39	0.41	0.42
α	0.061	0.062	0.042
n	1.92	2.2	2.68



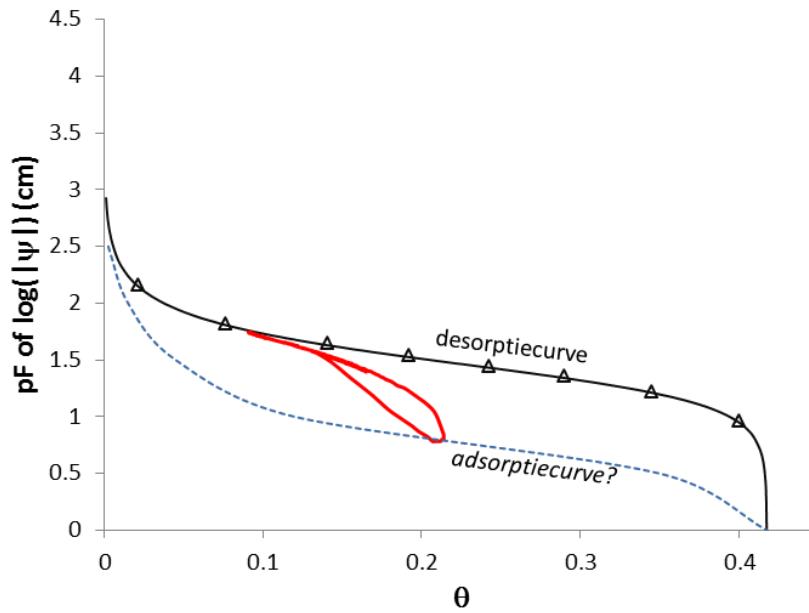
Figuur 4-5 Met RETC gefitte retentiecures (desorptiecures) voor de halve meter kolom (diamantjes), de meter kolom (cirkels) en de anderhalve meter kolom (driehoekjes). De voor de curves gebruikte referentiemeetpunten zijn met blauwe puntjes weergegeven. Het residueel vochtgehalte is op nul gesteld.



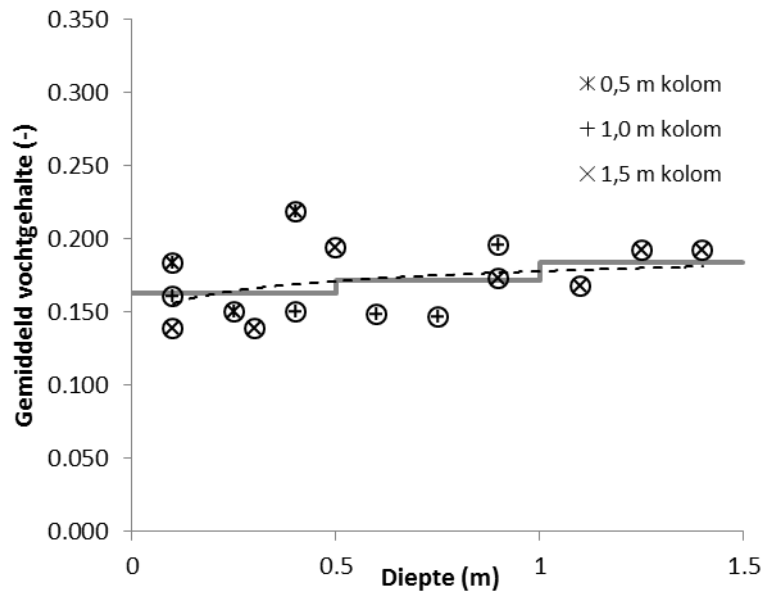
Figuur 4-6 Vergelijking referentiepunten (blauwe punten) met gefitte retentie curves voor matig fijnzandige (duin)bodems: stippellijn (Stakman,1969), gestreepte lijn (Pluis, 1993) en doorgetrokken lijn (invers met Hydrus-2D berekende retentiecurve op basis van de Solleveld proef data).

Tot nu toe zijn steeds zogenaamde desorptiecurves (uitdrogingscurves) weergegeven. Zoals al aangegeven in paragraaf 3.5 is de relatie tussen zuigspanning en vochtgehalte niet uniek. Bij vernatting zal de retentiecurve een andere vorm hebben. Bij afwisselend natte en droge omstandigheden zoals gesimuleerd met de regenbuien (Figuur 4-3, Figuur 4-4), zal de retentiecurve verschuiven tussen beide uitersten. Deze zogenaamde hysteresis blijkt in alle drie de zandkolommen in gelijke mate op te treden. Een voorbeeld van een zogenaamde hysteresis lus als gevolg van het afwisselend opdrogen en vernatting als gevolg van de buien is weergegeven in Figuur 4-7 voor de anderhalve meter kolom. Bij eenzelfde zuigspanning kunnen hierdoor verschillende vochtgehalten voorkomen. In het in Figuur 4-7 weergegeven verloop komen bijvoorbeeld bij een zuigspanning van pF 1 (-10 cm water kolom) vochtgehalten voor van 0.18, 0.21 en op basis van de desorptiecurve zelfs 0.39 voorkomen. Indicatief is de absorptiecurve weergegeven die de ondergrens vormt. Of en in hoeverre deze hysteresis effect heeft op het transport en de doorbraak van micro-organismen is nog onvoldoende bekend.

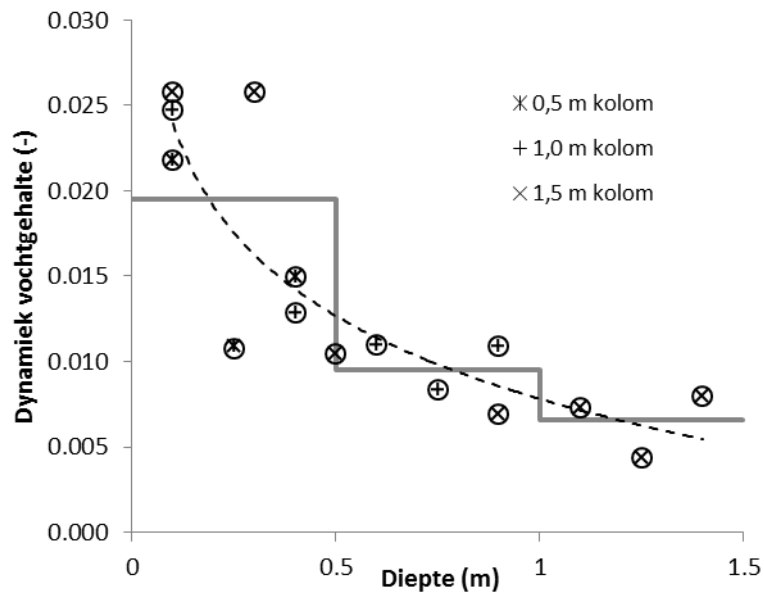
Bij een berekening met 25 mm per dag bevindt het gemiddelde vochtgehalte zich rond veldcapaciteit voor duinzand en neemt licht toe met de diepte bij de langere kolommen (Figuur 4-8). Onderlinge verschillen in gemiddeld vochtgehalte tussen de kolommen zijn gezien de onzekerheid in de metingen niet significant. De dynamiek van het vochtgehalte (uitgedrukt als standaard deviatie) is bovenin de kolom het hoogste en neemt sterk af over de bovenste halve meter (Figuur 4-9). Opvallend is de verhoudingsgewijs lage dynamiek en het gemiddeld lage vochtgehalte in de middelste vochtsensor van de halve meter kolom (lager dan het diepere meetpunt). Waarschijnlijk is dit een artefact veroorzaakt door een minder goed functionerende sensor. In het traject van 0.5 tot 1.5 meter is de dynamiek van het vochtgehalte vergelijkbaar. Bij een berekening met 50 mm zijn de kolommen in het geheel vochtiger en neemt de dynamiek iets toe ten opzichte van de situatie bij berekening met 25 mm (Tabel 4-3).



Figuur 4-7 Voorbeeld van hysteresis (rode lijn) zoals gemeten in de anderhalve meter kolom. Met de blauwe stippellijn is indicatief het verloop van de adsorptiecurve weergegeven.



Figuur 4-8 Gemiddeld vochtgehalte ($n= 23719$) over de diepte zoals gemeten met de bodemvochtsensoren in de drie kolommen tijdens de eerste tracerproef bij berekening met buien van 25 mm per 4 uur. De grijze lijn geeft het gemiddelde van 0.5 meter intervallen weer op basis van geaggregeerde data. De gestippelde lijn geeft een (log) trend over de diepte weer.



Figuur 4-9 Dynamiek van het vochtgehalte uitgedrukt als de standaard deviatie ($n = 23719$) over de diepte zoals gemeten met de bodemvochtsensoren in de drie kolommen tijdens de eerste tracerproef bij berekening met buien van 25 mm per 4 uur. De grijze lijn geeft het gemiddelde van 0,5 meter intervallen weer op basis van geaggregeerde data. De gestippelde lijn geeft een (log) trend over de diepte weer.

Tabel 4-3 Gemiddelde en standaard deviatie van de gemeten (boven) en berekende (onder) vochtgehalten (geaggregeerde data 3 kolommen) per diepte interval bij berekening met 25 en 50 mm

Diepte interval	Gemeten of Berekend	Gemiddeld vochtgehalte		Standaard deviatie vochtgehalte	
		25 mm	50 mm	25 mm	50 mm
0 - 0.5 m	Gemeten	0.162	0.174	0.020	0.022
0.5 - 1.0 m	Gemeten	0.171	0.201	0.010	0.017
1.0 - 1.5 m	Gemeten	0.184	0.212	0.007	0.012
0 - 0.5 m	Berekend pF	0.206	0.191	0.062	0.069
0.5 - 1.0 m	Berekend pF	0.244	0.229	0.044	0.057
1.0 - 1.5 m	Berekend pF	0.251	0.230	0.036	0.054

4.3 Doorbraakcurven tracertesten

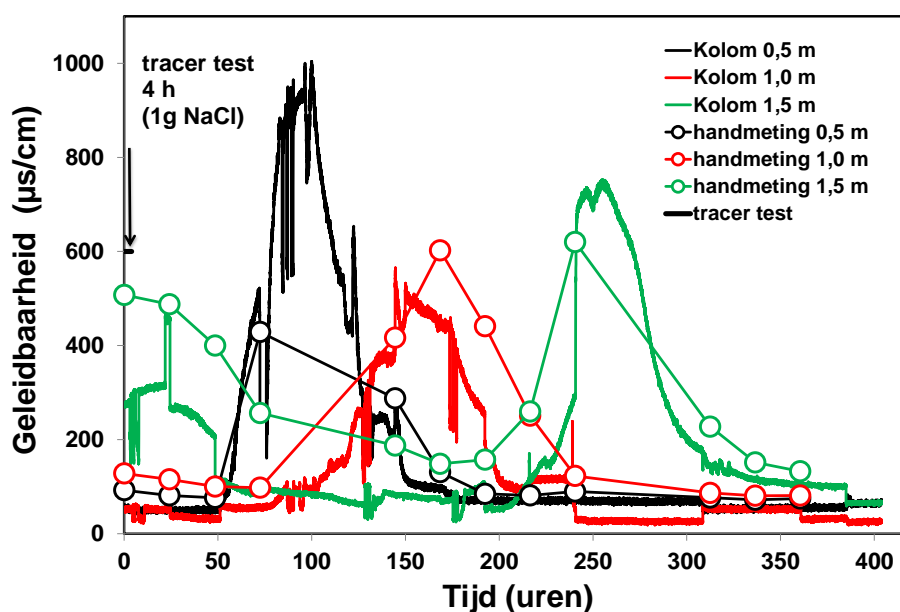
De zoutdoorbraakcurven zijn weergegeven in Figuur 4-10 en Figuur 4-11. Uit het grillige verloop van deze curven blijkt dat de geleidbaarheid niet goed werd gemeten. Dit wordt veroorzaakt door de periodiek zeer lage uitstroom uit de kolom (Figuur 4-1, Figuur 4-2). De waterdoorbraak heeft een periodiciteit van ongeveer een dag (door de relatief snelle drukgolf), terwijl de zouttracerdoorbraak over meerdere dagen plaatsvindt (Tabel 4-4). Tijdens de periodes met (zeer) lage afvoer, treedt verdunning op in de doorstroomcel. Hierdoor vlakt de concentratie tijdens het stijgende bereik van de tracerdoorbraak periodiek af en blijft de concentratie periodiek langer hoog in het dalende bereik van de tracerdoorbraak. Ondanks deze verstoringen zijn de doorbraakcurves goed waarneembaar. Een niet verklaarbaar hoge zoutconcentratie is

direct na doseren gemeten in de 1,5 meter kolom bij 25 mm (Figuur 4-10). Bij de 50 mm dosering is dit niet opgetreden. Om meer grip te krijgen op de tracerdoorbraak zijn tijdens de 50 mm dosering een groter aantal handmetingen uitgevoerd. Deze metingen blijken goed overeen te komen met de (verstoorde) online tracerdoorbraakmeting in de doorstroomcel.

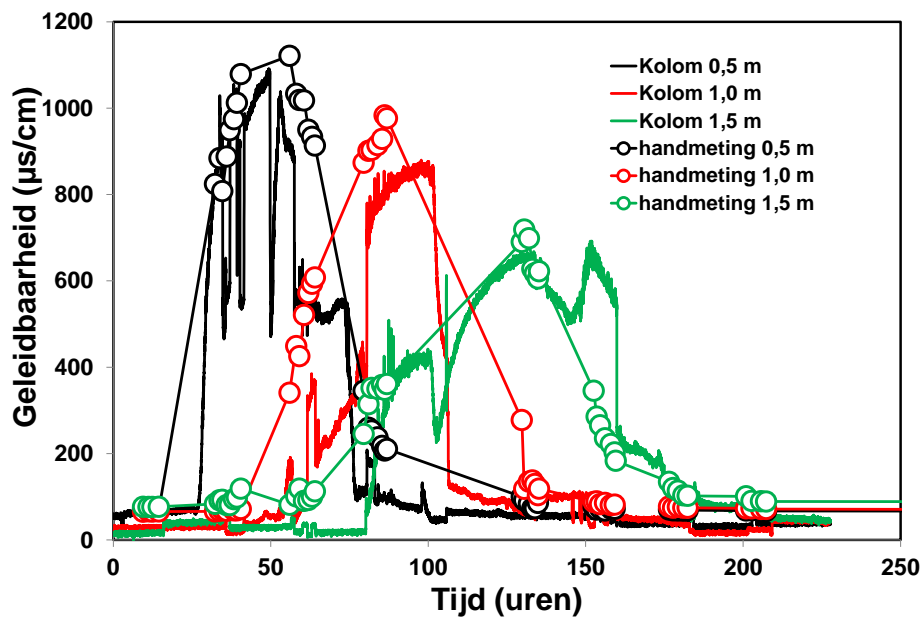
Bij beide regenregiems kwamen de doorbraaksnelheden (T_0) overeen met wat op basis van de theorie verwacht mag worden. Ook de tijd waarna de maximale piek werd bereikt (T_{max}), en de tijd tot het einde van de zoutdoorbraak (T_{eind}) waren (vooral bij de 50 mm berekening) in lijn van de verwachting. De doorbraak blijkt afhankelijk van de kolomlengte en de regenintensiteit. Hoe korter de kolom, hoe sneller de doorbraak en hoe hoger de piekconcentratie. Het verdubbelen van de regenintensiteit geeft grofweg een halvering van de tijd tot de eerste doorbraak en de maximale concentratie (Tabel 4-4). Ondanks de geconstateerde onvolkomenheden is de zoutrecovery (bij de 50 mm berekening) op basis van de metingen groter dan 90% en geven de doorbraakmomenten voldoende vertrouwen voor het plannen van de dosering en monsternamen van de micro-organismen.

Tabel 4-4 De doorbraakkarakteristieken gemeten met de geleidbaarheidcel en tussen haakjes bij 50 mm/d gemeten met de hand

Beregeningsflux	Kolomlengte (m)	T_0 (uur)	T_{max} (uur)	T_{eind} (uur)	Totale doorbraakduur (uur)
25 mm/d	0,5	50	99	175	125
	1,0	80	144	240	160
	1,5	205	255	382	177
50 mm/d	0,5	24	52	100 (152)	76 (123)
	1,0	42	90	106 (171)	64 (129)
	1,5	80 (50)	131 (151)	200 (230)	120 (150)



Figuur 4-10 De zoutdoorbraakcurven bij een regenintensiteit van 25 mm/d



Figuur 4-11 De zoutdoorbraakcurven bij een regenintensiteit van 50 mm/d

Op basis van de positie van het maximum van de zoutdoorbraakcurven kan de gemiddelde poriesnelheid worden afgeleid. Door de onvolkomenheden in de meting is de positie van de maximale doorbraak ofwel op basis van de sensor meting, ofwel op basis van de handmeting gekozen en zijn de hieruit afgeleide poriesnelheden met onzekerheid omgeven. Uit Tabel 4-5 komt naar voren dat de gemiddelde poriesnelheid nagenoeg verdubbelt bij verdubbeling van de regenintensiteit.

Tabel 4-5 Indicatieve gemiddelde poriesnelheid op basis van de positie van de maximale doorbraak

Beregeningsflux	Kolomlengte (m)	Indicatieve gemiddelde poriesnelheid \bar{v} (m/d)
25 mm/d	0,5	0,12
	1,0	0,07
	1,5	0,05
50 mm/d	0,5	0,23
	1,0	0,13
	1,5	0,09

4.4 Waterkwaliteit: regenwater, doseersuspensie en filtraat

Regenwater en doseersuspensie. Voor de proeven is steeds vers kunstmatig regenwater aangemaakt met de gemiddelde samenstelling zoals beschreven in Tabel 3-4. De doseersuspensie met voorgekweekte micro-organismen is vervolgens aangemaakt in dit regenwater. Door het toevoegen van de suspensies met micro-organismen wijzigde de samenstelling van het regenwater (Tabel 4-6). De pH, geleidbaarheid en organisch stof gehalte namen sterk toe. Deze toename was bij de drie proeven niet gelijk door de verschillen in de toegepaste micro-organismen en het testen van het effect van de fecale matrix in experiment 3. Bij experiment 1 werden *E. coli*, MS2 en PhiX174 gedoseerd en bij de experimenten 2 en 3 alleen *E. coli* en MS2. Het verschil in samenstelling van de doseersuspensie tussen experiment 1 en 2 werd veroorzaakt door de suspensie van PhiX174 die hoog troebel was en veel cultuurresten

bevatte. De pH van deze doseersuspensie was hoog (8,1). Bij experiment 2 was het effect van de gedoseerde micro-organismen op de regenwatersamenstelling minder, maar toch nog wel zodanig dat de pH steeg van 5,0 naar 7,1, het DOC gehalte van <0,1 naar 1,9 mg C/l en de geleidbaarheid steeg van ca. 35 naar 185 μ S/cm.

De toevoeging van voorbehandeld eluaat van Galloway mest (verwijdering van vaste deeltjes door centrifugeren en filtratie) veroorzaakte een toename van de pH van 5,0 naar 7,8, een DOC toename van <0,1 naar 79 mg C/l en een geleidbaarheidsverhoging van 35 naar 250 μ S/cm. Bij deze proef is het in regenwater verdunde eluaat, ditmaal zonder micro-organismen, nog een regenbui herhaald voordat werd overgegaan op berekening met het schone regenwater.

Tabel 4-6 Vergelijking van de samenstelling van het regenwater, de doseersuspensies en de filtraten (gemiddelde concentraties \pm SD)

	Eenheid	Regenwater ^a	Doseersuspensie ^b	Filtraat
Na ⁺	(mmol) mg/l	(0,1883) 4,3	Nb	11,9 \pm 3,7
K ⁺	(mmol) mg/l	(0,0073) 0,3	Nb	1,4 \pm 0,6
Ca ²⁺	(mmol) mg/l	(0,0091) 0,4	Nb	4,0 \pm 2,3
Mg ²⁺	(mmol) mg/l	(0,0217) 0,5	Nb	1,2 \pm 0,6
SO ₄ ²⁻	(mmol) mg/l	(0,010) 1,0	Nb	1,5 \pm 0,2
DOC	mg C/l	(-) <0,1	43; 1,9; 79	18,7 \pm 6,7
Geleidbaarheid	μ S/cm	35 ^c	1300; 185; 250	220 \pm 256
pH	(-)	5,0	8,1; 7,1; 7,8	5,3 \pm 0,2

^a Milliq water gebruikt als basis; ^b Experiment 1,2,3; ^c Berekend met PhreeqC

Filtraat kwaliteit. Voor, tijdens en na iedere doseerproef is de samenstelling van het filtraat van de drie kolommen fysisch/chemisch onderzocht. Uit de analyses blijkt dat de berekening uitloging uit het zandpakket (Tabel 4-7) veroorzaakte. Tussen de drie fasen van de proeven (voor, tijdens en na) konden geen systematische verschillen worden waargenomen. De uitloging van zowel ionen als opgeloste organische stof bleek lager bij een hogere regenintensiteit (proef 2; 50 mm/d). Een mogelijke verklaring hiervoor is de kortere contacttijd bij de hoge regenintensiteit. Opvallend is dat de concentratie Calcium, net al Magnesium in het filtraat toeneemt bij langere kolomlengte terwijl de Natrium concentratie juist afneemt. Dit duidt op kationomwisseling van Calcium en Magnesium aan het adsorptiecomplex door Natrium, waarna het Calcium uitspoelt. In de overige parameters (Kalium, Aluminium, IJzer en overige metalen) zijn geen duidelijke veranderingen waarneembaar.

Tabel 4-7 Watersamenstelling (mg/l±SD) van het uit de kolommen stromende water bij de drie experimenten

Parameter	Experiment	Kolom 0,5 m	Kolom 1,0 m	Kolom 1,5 m
Natrium	25 mm	14,5±2,6	10,6±2,7	9,6±1,3
	50 mm	10,3±1,0	8,8±0,3	8,6±0,7
	25 mm+mest	18,0±4,2	15,2±3,1	11,7±0,6
Calcium	25 mm	3,3±1,5	5,5±2,8	6,8±2,6
	50 mm	1,7±0,9	3,1±1,4	5,3±1,8
	25 mm+mest	1,5±0,5	3,4±0,5	5,9±0,2
Magnesium	25 mm	0,9±0,4	1,5±0,7	1,9±0,8
	50 mm	0,7±0,3	1,0±0,4	1,7±0,6
	25 mm+mest	0,4±1,1	0,8±0,2	1,5±0,0
Kalium	25 mm	1,4±0,4	1,8±0,5	2,2±0,4
	50 mm	0,8±0,3	1,1±0,3	1,6±0,4
	25 mm+mest	1,3±0,1	1,3±0,1	2,0±0,0
Aluminium	25 mm	1,4±0,3	1,2±0,3	1,0±0,3
	50 mm	0,7±0,1	0,6±0,1	0,3±0,0
	25 mm+mest	0,8±0,4	1,0±0,4	0,7±0,0
Ijzer	25 mm	2,0±0,4	1,6±0,5	1,3±0,4
	50 mm	0,9±0,0	0,8±0,1	0,5±0,1
	25 mm+mest	1,1±0,5	1,4±0,6	1,1±0,0
Overige metalen ^a	25 mm	0,06±0,01	0,05±0,00	0,07±0,01
	50 mm	0,04±0,00	0,03±0,00	0,05±0,02
	25 mm+mest	0,03±0,01	0,05±0,01	0,05±0,01
Fosfaat	25 mm	0,6±0,2	0,4±0,1	0,3±0,1
	50 mm	0,3±0,1	0,2±0,0	0,2±0,0
	25 mm+mest	0,7±0,2	0,4±0,1	0,3±0,0
IC	25 mm	0,8±0,1	1,0±0,4	1,2±0,3
	50 mm	0,4±0,2	0,4±0,2	0,8±0,8
	25 mm+mest	1,1±0,3	1,1±0,2	4,1±0,3
TOC	25 mm	25,7±3,5	22,2±7,7	25,2±2,8
	50 mm	11,4±0,6	12,2±1,5	11,8±1,1
	25 mm+mest	15,9±4,9	21,1±6,6	22,5±0,8

^a som van Mn, Cu, Zn

4.5 Micro-organismen in het regenwater: dosering en afsterving

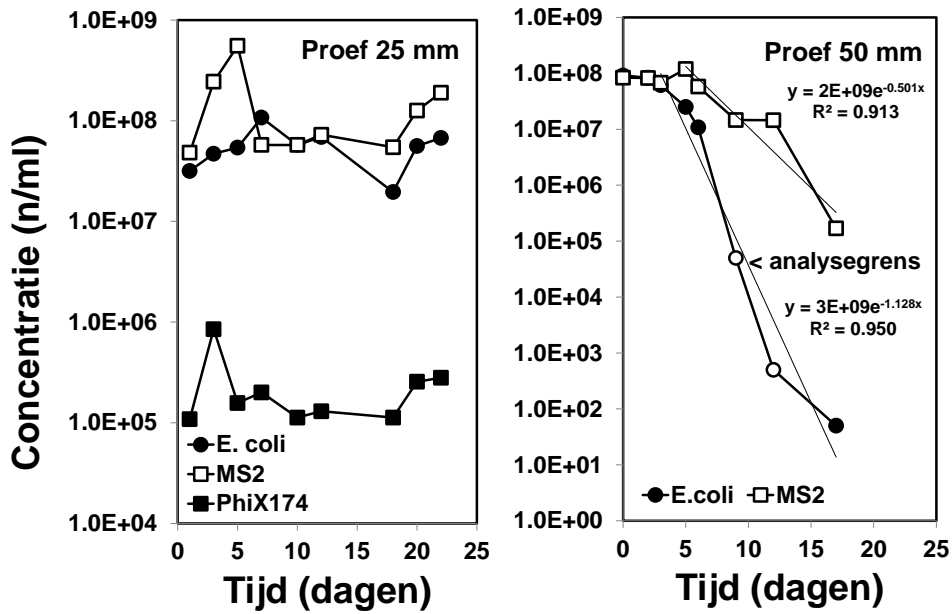
Het influent van de zandkolommen werd bemonsterd vanuit de regenval simulator. Op deze manier kon worden bevestigd dat de dosering bij de drie kolommen onderling gelijk was bij iedere afzonderlijke proef (Tabel 4-8). *E. coli* werd gedoseerd in een concentratie die varieerde van 3×10^7 – 1×10^8 per ml. Groter was het verschil in de dosering van de bacteriofagen met een range van 10^4 - 10^{10} per ml.

Bij iedere proef werd eveneens een deel van de doseersuspensie naast de opstelling bewaard om de afsterving van micro-organismen in het regenwater te bepalen. In de doseersuspensie zijn verschillen in de afsterving geconstateerd zoals hieronder getoond. De oorzaak van de verschillen worden in de discussie toegelicht.

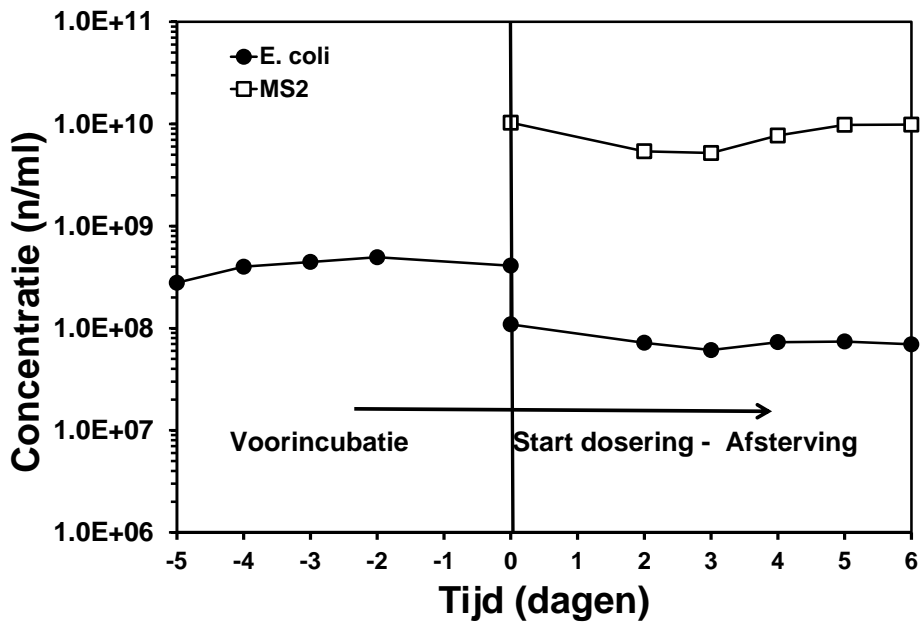
- Bij het eerste experiment nam de concentratie micro-organismen toe in de eerste 7 dagen en trad tot dag 23 nauwelijks afsterving op in het water (Figuur 4-12, links). Deze gegevens tonen dat de bijdrage van afsterving in de waterfase aan de verwijdering in de kolom te verwaarlozen is.
- In de suspensie van de tweede proef werd wel een sterke afname van *E. coli* en MS2 in het regenwater waargenomen na de eerste dagen. Aannemende dat het hier gaat om afsterving, zijn de eerste orde afstervingsconstanten berekend voor beide organismen (Figuur 4-12, rechts). De afstervingssnelheden (\log_{10}) van MS2 en *E. coli* in het influent van test 2 waren respectievelijk $-0,22 \pm 0,04$ en $-0,49 \pm 0,06$ d^{-1} ($P < 0,05$). Dit zijn relatief hoge waarden in vergelijking tot de waarden voor MS2 gepresenteerd door Van der Wielen et al. (2005) voor MS2 uit de literatuur (gemiddeld $0,05$ d^{-1}) en Hijnen et al. (2007) voor *E. coli* ($0,113$ d^{-1}) in oppervlaktewater. Afsterving in het water speelt bij het tweede experiment wel een rol en draagt bij aan de verwijdering in de kolommen.
- In de regenwatersuspensie verrijkt met eluaat van Galloway mest werd de doseersuspensie met *E. coli* enige dagen bewaard bij de omgevingstemperatuur van de opstelling voordat het regenexperiment werd uitgevoerd. De *E. coli* concentratie bleef constant in deze suspensie gedurende een periode van 5 dagen. Ook in een periode van zes dagen na de dosering werd geen toename of afname van *E. coli* in deze suspensie waargenomen (Figuur 4-13). De concentratie MS2 bacteriofagen die op het moment van de berekening aan de suspensie was toegevoegd, nam gedurende deze laatste periode ook niet af. Afsterving zal in dit experiment geen grote rol gespeeld hebben bij de verwijdering.

Tabel 4-8 De influent concentraties van micro-organismen (n/ml) van de kolommen bij de drie experimenten (* = niet gedoseerd)

		<i>E. coli</i>	MS2	PhiX174
Experiment 1 (n=6)	0,5 m	$2,9 \pm 0,1 \times 10^7$	$3,7 \pm 0,2 \times 10^7$	$9,1 \pm 1,0 \times 10^4$
	1,0 m	$2,6 \pm 0,4 \times 10^7$	$4,0 \pm 0,5 \times 10^7$	$9,6 \pm 0,9 \times 10^4$
	1,5 m	$3,0 \pm 0,2 \times 10^7$	$3,8 \pm 0,8 \times 10^7$	$8,9 \pm 1,8 \times 10^4$
Experiment 2 (n=2)	0,5 m	$9,2 \pm 1,6 \times 10^7$	$8,2 \pm 0,1 \times 10^7$	
	1,0 m	$8,6 \pm 2,1 \times 10^7$	$8,1 \pm 0,2 \times 10^7$	- ^a
	1,5 m	$9,4 \pm 0,9 \times 10^7$	$8,8 \pm 0,8 \times 10^7$	-
Experiment 3 (n=1)	0,5 m	$8,6 \times 10^7$	$8,6 \times 10^9$	-
	1,0 m	$8,3 \times 10^7$	$1,1 \times 10^{10}$	-
	1,5 m	$1,0 \times 10^8$	$1,2 \times 10^{10}$	-



Figuur 4-12 De concentratie micro-organismen in de doseersuspensie van experiment 1 (links) en experiment 2 (rechts) bewaard in het donker bij de omgevingstemperatuur van de proef



Figuur 4-13 De concentratie micro-organismen in de met Galloway mest eluaat verrijkte doseersuspensie van experiment 3 bewaard in het donker bij de omgevingstemperatuur van de proef daags voor en na de proef

4.6 Doorbraakcurven van de micro-organismen

Tijdens het doseerexperiment met micro-organismen in het regenwater en in daaropvolgende perioden zonder micro-organismen is het volledige volume filtraat van de kolommen opgevangen. Afhankelijk van de waterdoorbraakcurven weergegeven in Figuur 4-1 en Figuur 4-2 werd een bepaald watervolume opgevangen waarin de concentratie micro-organismen is bepaald. In bepaalde monsters werden geen micro-organismen waargenomen en is in figuren met open symbolen de analysegrens van de bepaling weergegeven. Deze analysegrens is niet constant door de variatie in het onderzochte filtraatvolume. De relatieve doorbraak van de micro-organismen door de kolommen wordt beschreven met de verhouding van de gemeten concentratie in een effluent monster dat is opgevangen tijdens een bepaald tijdsinterval van de proef en de concentratie in het regenwater dat op de kolom is gebracht: C/C_0 . Bij een hoge verwijdering wordt deze verhouding lager.

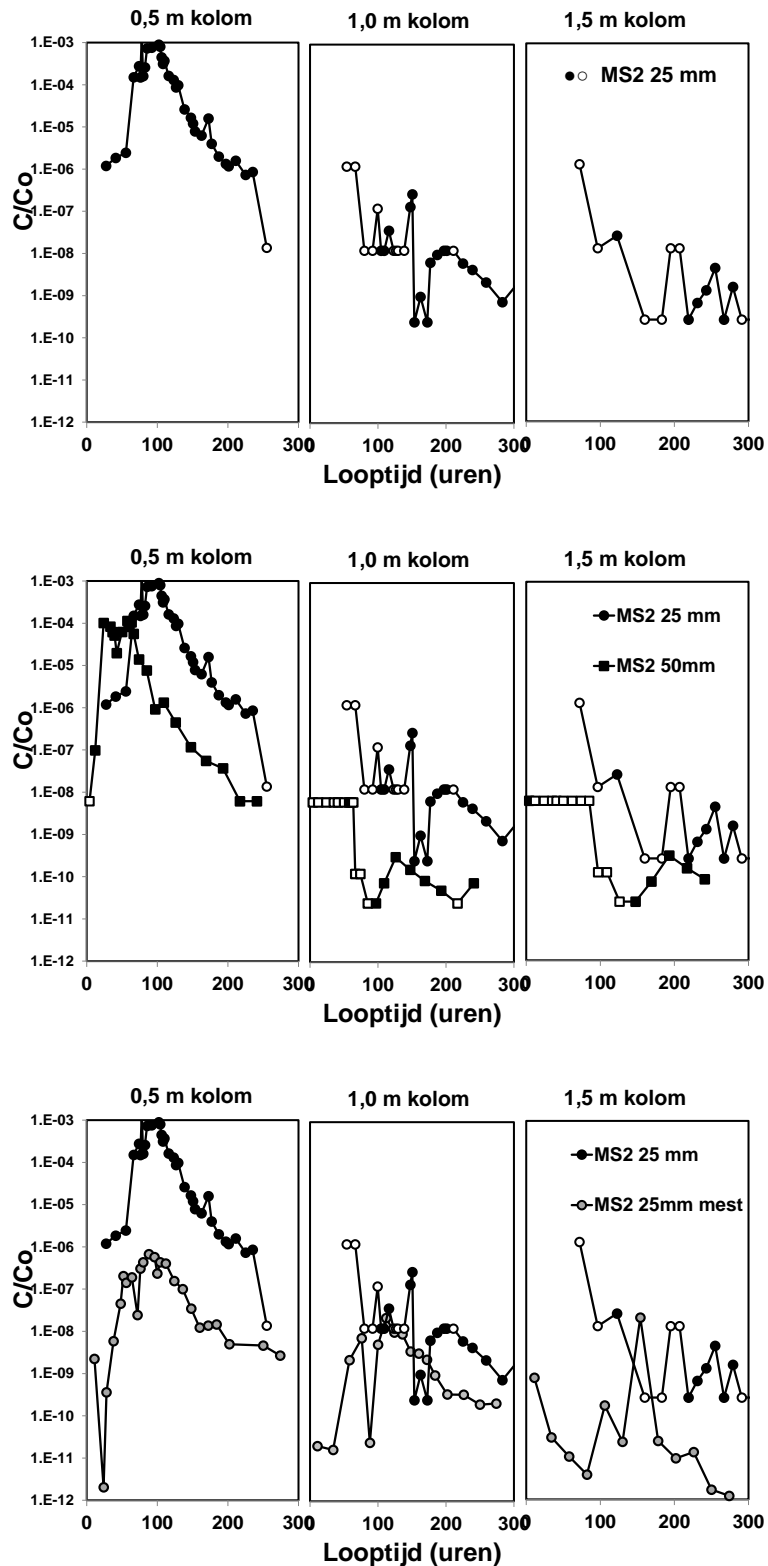
4.6.1 Bacteriofagen MS2 en PhiX174

Regenintensiteit van 25 mm/d. In Figuur 4-14 zijn de doorbraakcurven van de bacteriofagen in de drie verschillende kolommen bij de drie doseerproeven weergegeven. Hieruit blijkt dat het aantal MS2 bacteriofagen in het filtraat van de 0,5m kolom bij een regenintensiteit van 25 mm/d het hoogste was (hogere waarde van C/Co). In het filtraat van de 1,0 en 1,5m kolommen was de doorbraak bij deze regenintensiteit minder (lagere C/Co) en nam het percentage monsters zonder MS2 bacteriofagen duidelijk toe. Opmerkelijk was dat het verschil in doorbraak tussen de kolom van 0,5 en van 1,0 m groter was dan tussen de kolommen van 1,0 en 1,5 m.

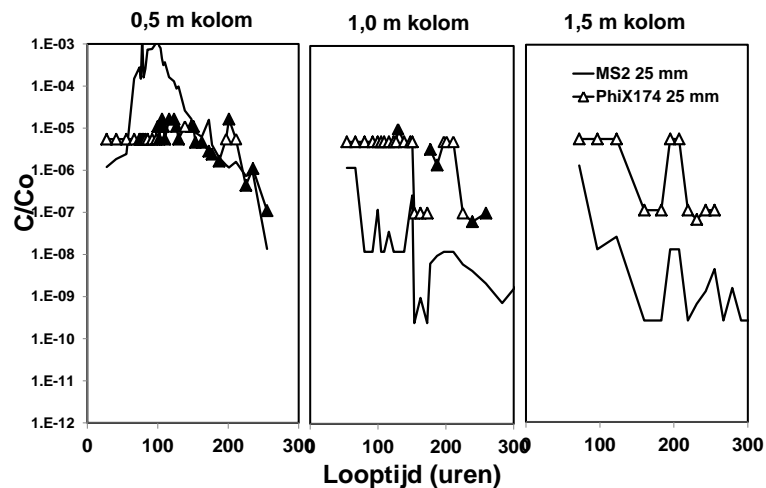
Regenintensiteit van 50 mm/d. Bij een verhoging van de regenintensiteit naar 50 mm/d bleek, tegen de verwachting in, de doorbraak minder te zijn (lagere C/Co) dan bij het voorgaande experiment met een regenintensiteit van 25 mm/d. De oorzaak voor dit verschil ligt mogelijk in het verschil in stabiliteit van de doseersuspensie. In het regenwater verrijkt met suspensie van micro-organismen bij het experiment met een regenintensiteit van 25 mm/d nam de concentratie micro-organismen niet af. In de doseersuspensie van het tweede experiment met 50 mm/d was er sprake van een sterk afnemende concentratie MS2 fagen (Figuur 4-12), vermoedelijk door afsterving. Het verschil in de stabiliteit van de concentratie MS2 fagen en ook *E. coli* bacteriën in beide doseersuspensies is vermoedelijk veroorzaakt door het ontbreken van een hoog organisch stof gehalte en/of een hoge geleidbaarheid (resp. 43 mg/l en 1300 $\mu\text{S}/\text{cm}$; Tabel 4-6) in de doseersuspensie van het tweede experiment veroorzaakt door de afwezigheid van de geconcentreerde suspensie PhiX174 fagen in het eerste experiment. Evenals waargenomen bij het tweede experiment is het verschil in relatieve doorbraak tussen de 0,5 en 1,0 m kolommen groter dan tussen de kolommen met een lengte van 1,0 en 1,5 m.

Regenintensiteit van 25 mm/d en mest-eluaat. Het doseerexperiment met regenwater aangevuld met een mest-eluaat bij een regenintensiteit van 25 mm/d resulteerde net als het tweede experiment in een verminderde doorbraak (lagere C/Co) vergeleken met de doorbraak van het eerste experiment bij dezelfde regenintensiteit (25 mm/d). Het verschil tussen beide experimenten was het organische stof gehalte: bij het eerste experiment was dit gehalte verhoogd door de PhiX174 suspensie, maar deze verhoging was kleiner dan de verhoging bij dit experiment met het mest-eluaat.

Verwijdering van PhiX174 bij een regenintensiteit van 25 mm/d. De concentratie PhiX174 fagen in het regenwater van het eerste experiment (25 mm/d) was laag omdat deze in minder hoge aantallen kunnen worden gecultiveerd. Voor deze bacteriofaag werd een lagere doorbraak gemeten dan de doorbraak van MS2 (Figuur 4-15).



Figuur 4-14 De doorbraakcurven van de bacteriofaag MS2 bij de eerste regenproef bij een regenregiem van 25 mm/d en de drie kolomlengten (boven) vergeleken met de doorbraakcurven bij een regenregiem van 50 mm/d (midden) en bij toevoeging van een mest-eluaat (onder); gesloten symbolen zijn monsters met micro-organismen en open symbolen zijn monsters zonder (analysegrens)



Figuur 4-15 De doorbraakcurven van bacteriofaag PhiX174 bij de test met een regenintensiteit van 25 mm/d in vergelijking tot de doorbraak van MS2 fagen; gesloten symbolen zijn monsters met micro-organismen en open symbolen zijn monsters zonder (analysegrens)

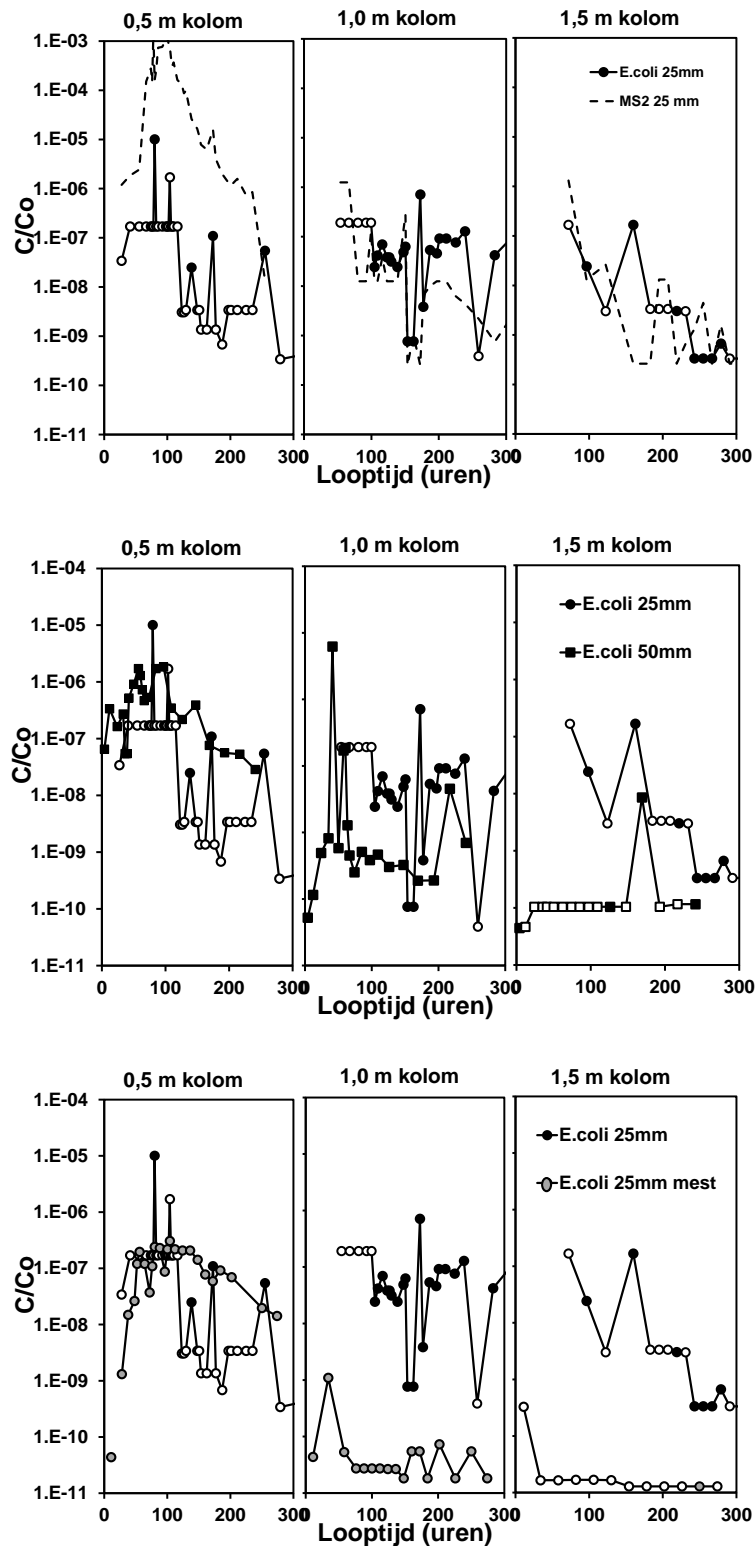
Door de hoge verwijdering was de doorbraak in de kolommen met een lengte van 1,0 en 1,5 m zo laag dat alleen na de 1,0 m kolom nog in enkele monsters deze bacteriofaag werd waargenomen in lage concentraties. Op grond van deze lage concentraties PhiX174 in het filtraat van deze kolommen is een vergelijking met de gegevens van de MS2 fagen in deze kolommen niet betrouwbaar.

4.6.2 Doorbraakcurven van *E. coli*

Regenintensiteit van 25 mm/d. Bij de eerste test met een regenintensiteit van 25 mm/d werd een afwijkende doorbraakcurve waargenomen bij de 0,5 m kolom in vergelijking tot de andere kolommen in het experiment en ook tot de doorbraakcurven van deze kolom bij het tweede en derde experiment (Figuur 4-16). In het merendeel van de filtraat monsters was het resultaat negatief (open symbolen; < analysegrens). Er werd slechts in vier monsters *E. coli* waargenomen in relatief hoge concentraties ten opzichte van de analysegrens. Ter vergelijking zijn in de figuren de doorbraakgegevens van MS2 fagen weergegeven (gestippelde lijn; positieve en negatieve monsters). Hieruit blijkt duidelijk het verschil tussen kolom 0,5 en de andere twee kolommen: een groter verschil in doorbraak tussen *E. coli* en MS2 in de 0,5 m kolom, hoger dan bij de andere twee kolommen.

Regenintensiteit van 50 mm/d. De doorbraak van *E. coli* bij een regenintensiteit van 50 mm/d in de 0,5 m kolom was hoger dan in het eerste experiment. Bij de 1,0 en 1,5 m kolom was de doorbraak daarentegen duidelijk minder dan bij het eerste experiment met een lagere regenintensiteit. Dit is een tweede aanwijzing dat de doorbraakcurve van de 0,5 m kolom van het eerste experiment geen betrouwbare gegevens heeft opgeleverd. In het huidige experiment werd een duidelijk afnemende doorbraak van *E. coli* als functie van de kolomlengte waargenomen. Deze resultaten komen goed overeen met de resultaten van MS2 fagen (Figuur 4-14).

Regenintensiteit 25 mm/d en mest-eluaat. Ook de doorbraakcurven van *E. coli* van het experiment met mest-eluaat vertoont een overeenkomstig beeld als waargenomen voor de MS2 fagen: een lagere doorbraak dan bij het experiment met een regenintensiteit van 25 mm/d en een afnemende doorbraak met de kolomlengte.



Figuur 4-16 De doorbraakcurven van *E. coli* bij een regenregiem van 25 mm/d voor de drie kolomlengtes (boven;) vergeleken met de doorbraakcurven bij een regenregiem van 50 mm/d (midden) en bij toevoeging van een mest-eluaat (onder); gesloten positieve monsters en open analysegrens en in bovenste figuur met gestippelde lijn de doorbraak van MS2 weergegeven

4.7 De verwijdering van bacteriofagen en *E. coli*

De logverwijdering of decimale eliminatiecapaciteit (DEC) van de bacteriofagen en *E. coli* door de kolommen onder de verschillende condities is op twee manieren berekend:

- DEC_C op basis van de influent concentratie bij de berekening en de maximale doorbraakconcentratie met $\log(C_{in}/C_{max, uit})$;
- DEC_M op basis van de massabalans: het volledige volume filtraat $\log(M_o/M_{t1+tn})$ waarin $M_o = V_r * C_{in}$ met V_r het totale volume berekend met micro-organismen (ml) C_{in} de gemiddelde influent concentratie (n/ml) en $M_{t1+tn} = \sum(V_{ti+tn} * C_{t1+tn})$ met V_{ti+tn} het volume en C_{t1+tn} de concentratie (n/ml) in de deelmonsters van de tijdsintervallen t_i tot t_n (einde van de proef).

Omdat steeds het volledige volume is opgevangen en geanalyseerd op de micro-organismen kan van de gegevens de cumulatieve massa doorbraak worden weergegeven. Dit toont wanneer de eerste doorbraak plaatsvond, hoe snel de doorbraak verloopt en welke maximale massa aan micro-organismen in het filtraat is waargenomen (M_{t1+tn}). In Figuur 4-17 staan de cumulatieve massa doorbraakcurven voor de MS2 fagen en *E. coli* weergegeven voor de kolommen met verschillende lengtes en berekend onder verschillende condities. Hieruit blijkt dat de grootste en snelste massa doorbraak is waargenomen bij de kolom met de lengte van 0,5 m. Bij de andere kolommen nam de snelheid van doorbraak af met de lengte van de kolom. De uiteindelijke massa doorbraak bij de kolommen met een lengte van 1,0 en 1,5 m bleek onderling weinig te verschillen. Door het relatief hoge aantal negatieve monsters (monsters waarin geen *E. coli* is aangetroffen) zijn de doorbraakcurven van de massa *E. coli* bacteriën minder eenduidig en betrouwbaar.

Verwijdering van bacteriofagen. Uit Tabel 4-9 (MS2) en Tabel 4-10 (PhiX174) blijkt dat de DEC_C-waarden, de verwijdering gebaseerd op de maximale doorbraakconcentraties, in 5 van de 12 situaties enkele tienden van een log hoger waren en in 5 van de 12 situaties enkele tienden van een log lager waren dan de DEC_M-waarden gebaseerd op de massa-balans. Bij een dikte van 1,5 m en een regenintensiteit van 25 mm/d plus mestmatrix, waren beide DEC-waarde gelijk en voor PhiX174 was de DEC_M-waarde duidelijk hoger dan de DEC_C-waarde bepaald voor de 1,5 m kolom. Conclusie is dat de DEC-waarde van de verschillende kolommen sterk wordt bepaald door de maximale doorbraakconcentratie. De meest nauwkeurige schatting van de verwijdering wordt verkregen met de massa-balans.

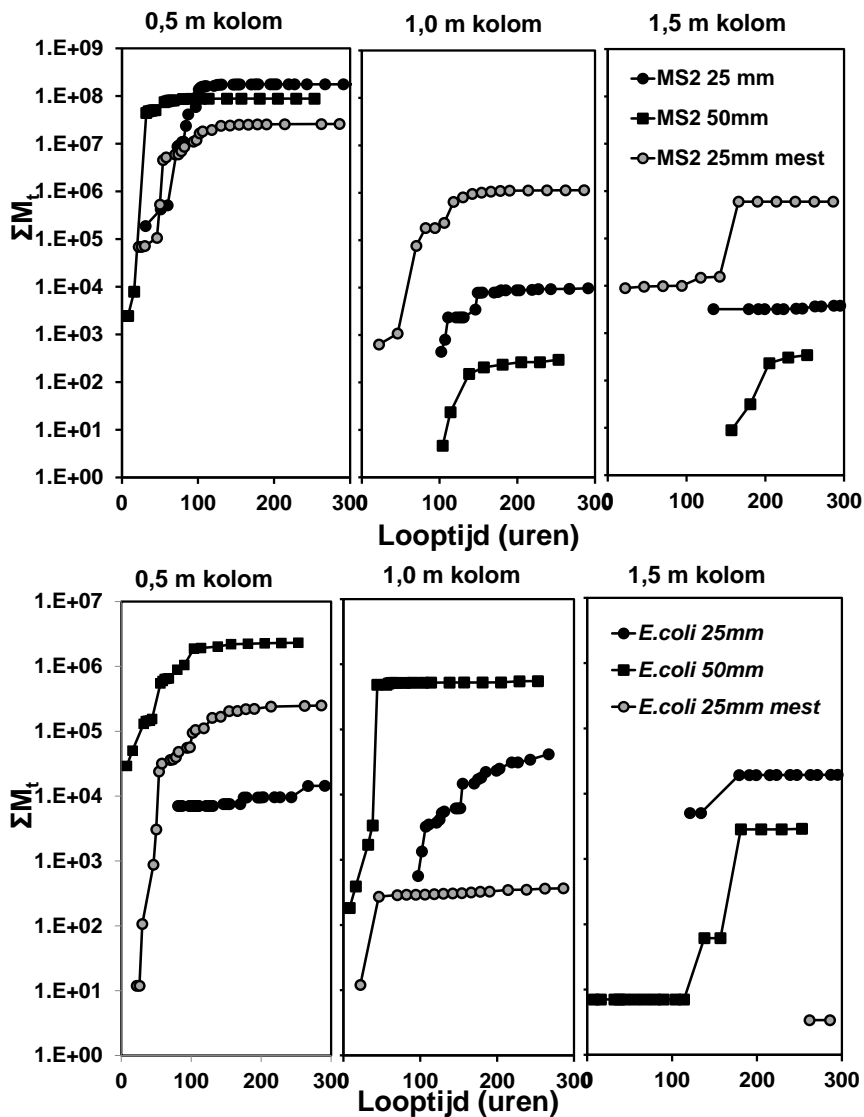
Om het effect van de grondwaterstand of dikte van de onverzadigde zone op de verwijdering weer te geven, zijn in Figuur 4-18 de DEC_M-waarden voor de bacteriofagen uitgezet tegen de grondwaterstand (kolomlengte). Hieruit blijkt dat de verwijdering toeneemt met afnemende grondwaterstand of de dikte van de onverzadigde zone maar dat dit niet altijd lineair verloopt.

Tabel 4-9 De DEC-waarden berekend op basis van maximale concentratie of cumulatieve massa voor MS2 fagen bepaald voor de kolommen met verschillende grondwaterstanden (dikte van onverzadigde zone) en berekend onder verschillende condities

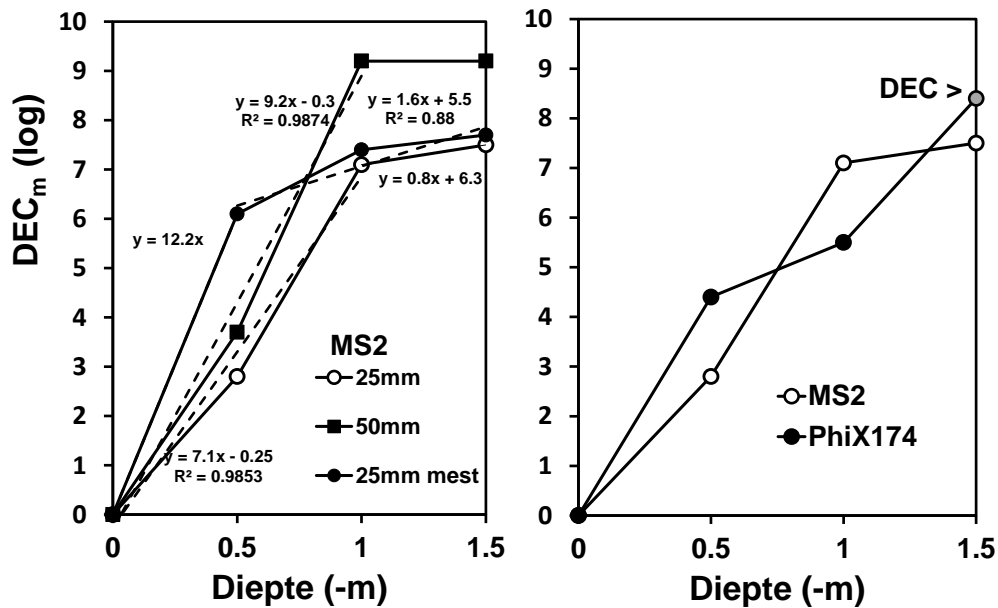
Grondwater Stand (m)	25 mm/d		50 mm/d		25 mm/d+mest	
	DEC _C	DEC _M	DEC _C	DEC _M	DEC _C	DEC _M
-0,5	2,9	2,8	3,9	3,7	6,2	6,1
-1,0	5,9	7,1	8,2	9,2	7,7	7,4
-1,5	5,9	7,5	8,2	9,2	7,7	7,7

Tabel 4-10 De DEC-waarden berekend op basis van maximale concentratie of cumulatieve massa voor MS2 en PhiX174 bepaald voor de kolommen met verschillende dikte en berekend met 25 mm/d

Diepte	MS2		PhiX174	
	DEC _C	DEC _M	DEC _C	DEC _M
-0,5	2,9	2,8	4,8	4,4
-1,0	5,9	7,1	5,0	5,5
-1,5	5,9	7,5	>5,2	>8,4



Figuur 4-17 De doorbraak van de cumulatieve massa voor MS2 fagen (boven) en *E. coli* (onder) berekend voor de verschillende kolommen berekend onder verschillende condities



Figuur 4-18 Het verloop van de verwijdering (DEC_m) als functie van de dikte van de onverzadigde zone voor MS2 fagen bij de drie experimenten (links) en voor MS2 en PhiX174 bacteriofagen in het eerste experiment (rechts) (opmerking: de invloed van de lengte is onderzocht in drie afzonderlijke kolommen met toenemende lengte)

Opmerking vooraf. Bij de bespreking van het effect van de dikte zoals weergegeven in Figuur 4-18 en hierna in Figuur 4-19 wordt aangenomen dat de verwijdering van de drie afzonderlijke kolommen gelijk is aan de verwijdering in één kolom van 1,5 meter en bemonsterd op drie verschillende dieptes.

Voor MS2 bacteriofagen neemt de verwijdering bij het eerste en tweede experiment meer dan lineair toe bij een verdubbeling van de diepte van -0,5 naar -1,0 m, terwijl in aanwezigheid van organische verbindingen van een mestmatrix de verwijdering minder dan lineair toeneemt met verdubbeling van de diepte (Figuur 4-18). In de laatste 0,5 m lengte van totaal 1,5 m werd een duidelijke afname van de MS2 verwijdering waargenomen bij de drie verschillende de regencondities (25, 50 mm/d en 25 mm+mest). De PhiX174 verwijdering was hogere in de kolommen van 0,5 en 1,5 m dan de MS2 verwijdering in dezelfde kolommen gebaseerd op de massabalans (Tabel 4-10). De bijdrage van de afsterving van MS2 in het regenwater van het tweede experiment (§4.5) aan de totale verwijdering geschat uit de kortste en gemiddelde verblijftijd en de afstervingsconstanten en varieert tussen 0,2 en maximaal $1,2 \log_{10}$ (Tabel 4.11). Deze kwantitatieve bijdrage van de afsterving aan de verwijdering verklaart niet volledig het verschil in verwijdering tussen de doorbraak in het eerste en tweede experiment. De verwijdering in het tweede experiment met een tweemaal hogere regenintensiteit was $1,0-2,0 \log_{10}$ hoger (Tabel 4.9). Mogelijk dat de werkelijke bijdrage van afsterving in de kolommen van het tweede experiment hoger is geweest door een extra bijdrage van afsterving aan het lucht/water-grensvlak in de onverzadigde zone.

Tabel 4-11 De bijdrage (\log_{10}) van afsterving in het tweede experiment aan de verwijdering in de kolommen berekend met de afstervingsconstanten gemeten in de doseersuspensie en de kortste en gemiddelde verblijftijden (T_o , eerste doorbraak en T_p , maximale piek van de tracertest gegevens van de betreffende kolommen (Tabel 4-4)

Diepte (m)	MS2 afsterving (\log_{10})		<i>E. coli</i> afsterving (\log_{10})	
	Zout T_o	Zout T_p	Zout T_o	Zout T_p
-0,5	0,2	0,5	0,5	1,1
-1,0	0,4	0,8	0,9	1,8
-1,5	0,7	1,2	1,6	2,7

In de 0,5 en 1,5 m kolommen van het eerste experiment was de verwijdering van MS2 fagen minder dan de verwijdering van PhiX174 fagen en in de 1,0 m kolom was dat omgekeerd (Tabel 4.10). De lage concentraties na de kolommen van 1,0 en 1,5 m met veel monsters onder de analysegrens (Figuren 4-14 en 4-15) maken de onderlinge vergelijking van beide fagen minder betrouwbaar. Na de 1,0 m kolom werd in 17% van de monsters nog een enkele PhiX174 faag gedetecteerd en na de 1,5 kolom waren de concentraties in alle monsters lager dan de detectiegrens (0% positieve metingen). De MS2 fagen verwijdering in beide kolommen is op grond van een hoger aantal positieve monsters in het filtraat meer betrouwbaar (53 en 39% positieve waarnemingen). Uitgaande van met name de kolom van 0,5 m wordt MS2 minder verwijderd dan PhiX174. De volgende verschillen in eigenschappen zijn hier mogelijk een verklaring voor:

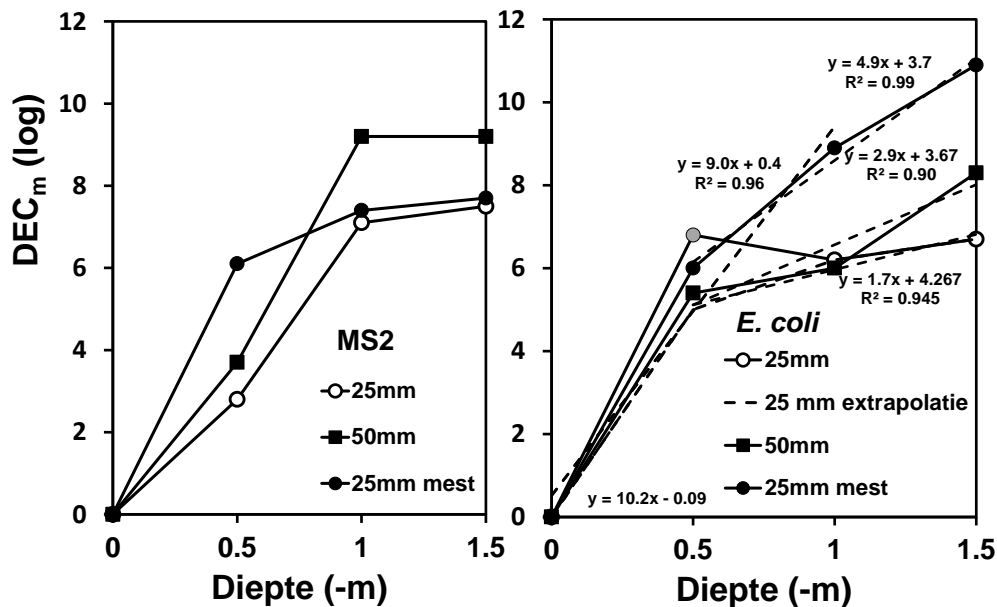
- De iso-electrisch punten (neutrale lading) liggen voor MS2 en PhiX174 bij een pH van respectievelijk 3,9 en 6,6. Bij de pH van het experiment van 5,0 voor regenwater en 7-8 voor de doseersuspensies is MS2 negatief geladen en PhiX174 positief geladen of neutraal. Bij een veelal negatieve lading van zand zal PhiX174 beter hechten.
- Daarnaast zijn de MS2 fagen meer hydrofoob dan de hydrofiele PhiX174 fagen: MS2 zal daarom meer naar het lucht-water grensvlak worden aangetrokken dan PhiX174 die meer naar de waterfase zal worden getrokken.

In het discussie hoofdstuk wordt dit verder behandeld.

Verwijdering van *E. coli*. De verwijdering van *E. coli* door de kolommen onder de verschillende regencondities staat samengevat in Tabel 4-12 en weergegeven als functie van de diepte van de grondwaterstand in Figuur 4-19. Zoals hiervoor vermeld zijn de gegevens van de 0,5 m kolom bij het eerste experiment onbetrouwbaar. *E. coli* wordt in de eerste 0,5 m van de onverzadigde zone bij het tweede experiment met 50 mm/d beter verwijderd dan MS2 en bij dosering van mest-eluaat in het derde experiment lag de verwijdering van beide organismen in de 0,5 m kolom in dezelfde orde van grootte. Ook voor *E. coli* nam de verwijdering af als functie van de diepte van de grondwaterstand. In de eerste twee experimenten nam de verwijdering van MS2 fagen af in het laatste deel van de onverzadigde zone na 1,0 m. Voor *E. coli* nam de verwijdering bij deze experimenten al af in het tweede deel na de eerste 0,5 m. Hierdoor was de *E. coli* verwijdering na 1,0 m onverzadigde zone bij experiment 1 en 2 lager dan de MS2 verwijdering. In het experiment met het mest-eluaat werd voor beide organismen een vergelijkbaar patroon waargenomen: een sterke afname van de verwijdering vanaf de tweede laag tussen een -0,5 tot -1,0 m.

Tabel 4-12 De DEC-waarden berekend op basis van maximale concentratie of cumulatieve massa voor *E. coli* bepaald voor de kolommen met verschillende dieptes en berekend onder verschillende condities

Diepte (m)	25 mm/d		50 mm/d		25 mm/d+mest-eluaat	
	DEC _C	DEC _M	DEC _C	DEC _M	DEC _C	DEC _M
-0,5	(5,0)	(6,8)	5,7	5,4	6,5	6,0
-1,0	6,2	6,2	5,2	6,0	9,2	8,9
-1,5	6,8	6,7	8,1	8,3	9,5	10,9



Figuur 4-19 Het verloop van de verwijdering (DEC_m) als functie van de diepte van de onverzadigde zone voor MS2 fagen (links) en *E. coli* bacteriën (rechts)

Invloed van de diepte: bifasische lineaire extrapolatie. De verwijdering voor MS2 en *E. coli* blijkt over de gehele diepte van 1,5 m niet lineair toe te nemen met de diepte van de grondwaterstand. De verklaring hiervoor zal nader worden besproken in de discussie in samenhang met de hydrologische gegevens. De gegevens wijzen op een gradiënt in de verwijdering: een hoge verwijdering in de bovengrond en een lagere verwijdering in de ondergrond. Wanneer de richtingscoëfficiënt (\log_{10}/m) van de verschillende laagdiktes voor MS2 fagen en *E. coli* bacteriën wordt bepaald dan is deze voor MS2 in de eerste 0-1,0 m voor de eerste twee experimenten 7,2 - 9,3 en in het derde experiment 12,2 \log_{10}/m over de eerste 0,5 m (Tabel 4-13). Voor *E. coli* is de verwijdering 10,2-12,0 \log_{10}/m in de eerste 0,5 m laagdikte. In de tweede fase van het transport door de onverzadigde zone neemt de verwijdering van MS2 sterk af naar 0,0-1,6 \log_{10}/m . Deze afname is voor *E. coli* ook duidelijk maar minder groot dan voor MS2 naar 1,7-4,9 \log_{10}/m afhankelijk van de regencondities.

Tabel 4-13 De richting coëfficiënt (\log/m) van de lineaire relatie tussen de verwijdering en de dikte van de onverzadigde zone over het eerste en tweede lineaire deel van de relatie

MS2

E. coli

Regen	0,0-1,0 m	1,0-1,5 m	0,0-0,5 m	0,5-1,5 m
25 mm	7,2	0,8	10,2	1,7
50 mm	9,3	0,0	10,2	2,9
25 mm+mest	12,2 ^a	1,6 ^a	12,0	4,9

^a 0,0-0,5 m en 0,5-1,5 m;

4.8 Vergelijking met eerdere BTO studies

Er zijn tweemaal eerder experimenten uitgevoerd naar de verwijdering van micro-organismen in de onverzadigde zone. Het eerste onderzoek (Nobel et al., 1999) is uitgevoerd met gestoken kolommen op laboratoriumschaal met materiaal van de infiltratiegebieden van PWN (ICAS) en Dunea (Berkheide). Het tweede experiment (Nobel en Cirkel, 2005) was een veldexperiment in het infiltratiegebied van Solleveld (Dunea). De gegevens van deze studies zijn in Tabel 4-14 vergeleken met de gegevens van de onderhavige kolomstudie.

Tabel 4-14 Vergelijking van de experimentele condities van drie onverzadigde zone studies en de verwijdering van bacteriofagen en *E. coli* die is bepaald met doseerproeven

Gegevens	Nobel e.a. 1999	Nobel/Cirkel, 2005	Dit onderzoek
Pakking	gestoken kolom	Natuurlijk veld	Gepakte kolom
Materiaal	ICAS/Berkheide	Solleveld	Solleveld
Vegetatie	+	-	-
Organische stof %	0,2;0,1	0,2-1,16	0,8-1,3
Kalk %	0,7;2,3	0.23-3.3	0,1
Fe _{TOT} g/kg	1,9;1,5	2,8-3,6	2,4
pH H ₂ O	7,6;8,2	4,5-5,3	5,3
Dikte (m)	0,5	0,5	0,5 (1,0;1,5) ^a
Diameter (m)	0,33	>>0,4	0,4
Regenregiem (mm/d)	50	50	50
Tijd (uur)	4	4	4
Water (pH)	Regen (4,2)	Drinkwater (7,5-8,5)	Regen (5,0)
Geleidbaarheid (µS/cm)	35	(530-570)	1300; 185;120
Organische stof (mg/l)	0,0	2,0	0,0 (79) ^b
Temperatuur	16±0,5	6-12	16±0,5
DEC <i>E. coli</i>	5,8;5,8	3,5	5,4 (6,0;8,3) ^a (6,0) ^b
DEC MS2	3,3;2,9	1,1	3,7 (9,2;9,2) ^a (6,1) ^b
DEC PhiX174	Nb	2,7	4,4

^a grotere kolomlengtes; ^b Galloway mest-eluaat tijdens de dosering

Gelijke experimentele condities. Uit de tabel blijkt dat twee condities in de onderzoeken van Nobel gelijk zijn: de dikte van de zone (0,5 m) en het regenregiem (50 mm/d in 4 uur). In het huidige experiment zijn deze twee condities gevarieerd.

Andere experimentele condities. De condities van de verschillende pakketten waren verschillend op basis van pakking (gestoken, natuurlijk, gepakt), wel of geen vegetatie, materiaalsamenstelling, temperatuur en beregeningswater (regenwater of drinkwater).

Verwijdering per 0,5 m dikte. Uit een vergelijking van de verwijderingsgegevens van de drie studies blijkt dat de verwijdering bepaald in de veldstudie duidelijk lager was dan de verwijdering in beide kolomstudies en dat de waarden van beide kolomstudies in orde van grootte overeenkomen.

Naast het verschil in pakking en schaal tussen de veldstudie en de kolomstudies, zijn verschillen in de watersamenstelling (geleidbaarheid en pH) en de watertemperatuur mogelijk van invloed op het waargenomen verschil in de verwijdering van MS2 bacteriofagen en *E. coli* bacteriën in de studies. In de discussie zullen deze verschillen nader worden besproken.

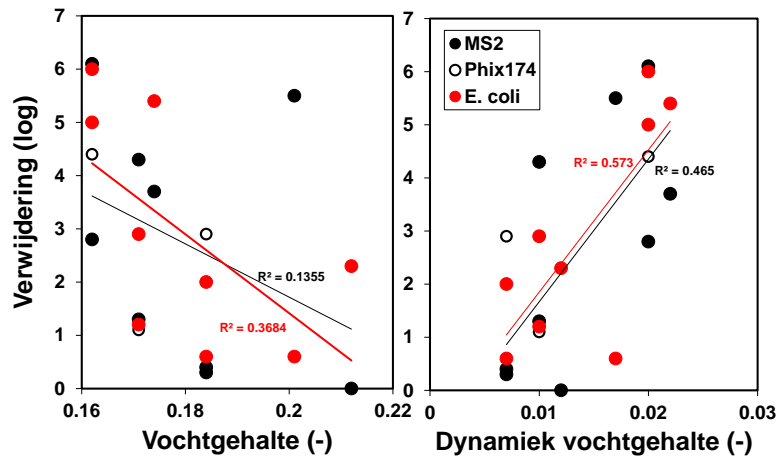
5 Discussie

5.1 Bodemfysische condities tijdens de proeven

In deze studie is de verwijdering van micro-organismen onderzocht bij drie lengtes van grondwaterafhankelijke bodemprofielen. Hierbij is gebruik gemaakt van gepakte kolommen. Omdat de dikte van een onverzadigde zone wordt bepaald door de waterstand in de bodem en dit van invloed is op de waterhuishouding in de bovenstaande onverzadigde zone is ervoor gekozen om het onderzoek in drie afzonderlijke kolommen uit te voeren en niet door in één kolom te bemonsteren over de hoogte. Als uitstroom is gekozen voor vrij drainerende condities. Als gevolg hiervan ontstaat onderin elke kolom een (dunne) vol capillaire zone. Er is voor deze uitstroom gekozen omdat het opleggen van een bepaalde onderdruk met bijvoorbeeld een druk plaat, gezien de dan benodigde kleine poriediameter van de plaat, mogelijk de verwijdering van *E. coli* zou kunnen beïnvloeden. Consequentie van deze keuze is dat niet zozeer de verwijdering over verschillende intervallen van een bepaald onverzadigd bodemprofiel zijn onderzocht, maar de verwijdering bij verschillende dieptes van de grondwaterstand.

Cruciaal voor het slagen van de proef is de onderlinge vergelijkbaarheid van de kolommen ten aanzien van bodem-fysische eigenschappen. Uit een vergelijking van onder meer de bulkdichtheid, de porositeit en de op de hydraulische meetgegevens gefitte retentiecures blijkt dat de kolommen onderling qua hydraulisch gedrag goed vergelijkbaar zijn. Ook blijkt uit de retentiecures dat de eigenschappen van de kolommen representatief zijn voor matig fijnzandige (duin)bodems die veel in Nederland voorkomen. Dit blijkt onder meer uit het karakteristieke vlakke verloop van de retentiecure waardoor onder veldvochtige condities het vochtgehalte bij kleine drukveranderingen sterk zal variëren. Vergeleken met de gemodelleerde eigenschappen van de Solleveld proef, blijkt dat de bodemfysische eigenschappen van de veld en kolomcondities goed overeenkomen en alleen afwijken ten aanzien van het met het Solleveld model (de Vries, 2013) ingeschatte residuele vochtgehalte voor de veldsituatie. Door de gekozen proefcondities (geen verdamping, constant buien patroon over de tijd) bevindt het gemiddelde vochtgehalte zich permanent op of boven veldcapaciteit in al de drie kolommen. Op basis van de drukmetingen met de tensiometers blijkt dat bovenin de kolommen zowel gemiddeld de laagste druk als de grootste dynamiek in druk optreedt. Deze drukvariatie (globaal tussen -6 en -35 cm) resulteert eveneens in variaties in het vochtgehalte waardoor de menisci zullen vervormen. Dit verschijnsel speelt een rol bij de retentie van colloïden in het zand zoals uit de rest van de discussie zal blijken. Tijdens de buien droogt de bodem niet sterk uit en blijven de variaties in vochtgehalte beperkt. De optredende dynamiek in vochtgehalte en zuigspanning wordt hierdoor bepaald door het buienpatroon, de bodem hydraulische eigenschappen en de verzadigde onderrand. De dynamiek is hierbij het grootste bovenin de bodemkolom en dempt uit met de diepte tot er nagenoeg geen dynamiek meer aanwezig is net boven de verzadigde onderrand van de kolom. Deze vochtcondities voor de verschillende lagen van de onderzochte lengte van de onverzadigde zone van 1,5 m (Tabel 4-3) zijn gecorreleerd met de verwijdering van MS2 en *E. coli* in deze lagen berekend uit het verschil in verwijdering van de kolommen met toenemende lengte (Figuur 5-1). Hieruit lijkt dat de verwijdering afneemt met het

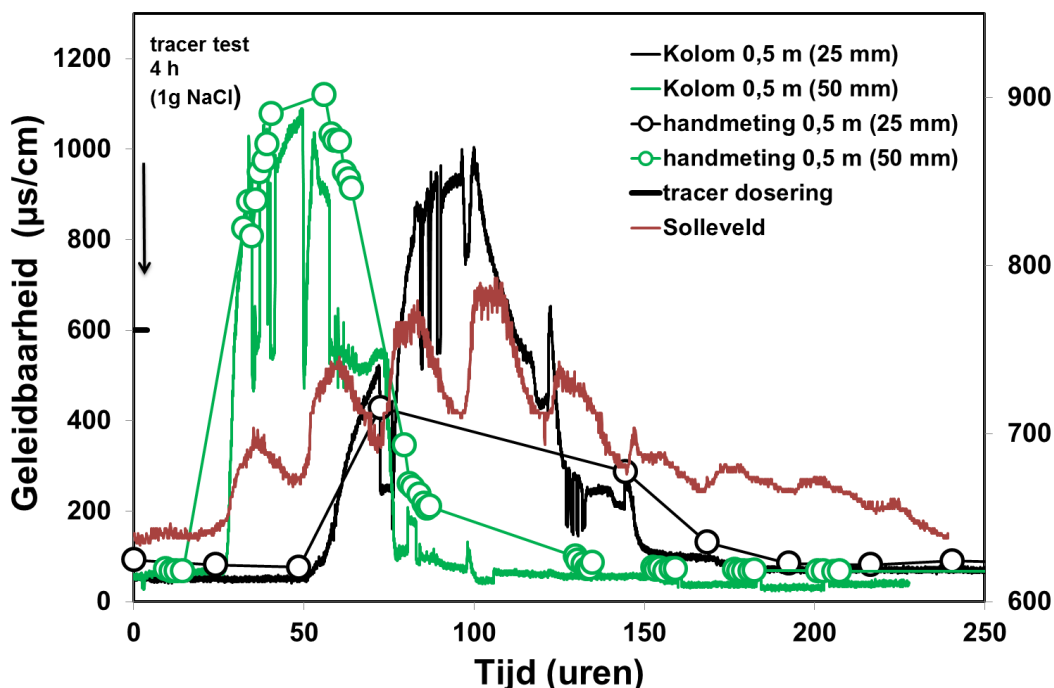
gemiddelde vochtgehalte (correlatie is echter niet significant; $P > 0,05$) en significant toeneemt met de dynamiek in het vochtgehalte ($P < 0,05$).



Figuur 5-1. Correlatie tussen de gemeten vochtcondities (gehalte links en dynamiek rechts) in de verschillende lagen van de onverzadigde zone met een maximale lengte van 1,5 m en de verwijdering gemeten over deze lagen bepaald uit het verschil in verwijdering tussen de kolommen met toenemende lengte

De reistijd in de kolom is onderzocht door keukenzout (NaCl) toe te voegen aan het beregende water (concentratie: 1 g/l). Vervolgens is de doorbraak van deze tracer gemeten met een EGV sensor in een doorstroomcel in de uitstroom aan de onderzijde van de kolom. Zoals beschreven bleek dat de op zich goed functionerende EGV sensoren afwijkende EGV waarden doorgaven. Nadere bestudering leerde dat dit werd veroorzaakt door de zeer geringe verversing van het water in de doorstroomcellen tijdens de periode met een extreem lage afvoer. Deze lage afvoerperiodes kwamen in de kolommen ongeveer dagelijks voor, terwijl de tracerdoorbraak meerdere dagen in beslag nam. Om dit probleem te ondervangen zijn kleine volumes (ca. 2-3 ml) van het uit de kolom stromende water met een hogere frequentie handmatig bemonsterd, en is in dit water de EGV gemeten. Op deze manier is een realistische indruk verkregen van de tracerdoorbraak. Het exacte moment van de (piek)doorbraak is hierdoor echter lastiger vast te stellen, waardoor de berekende reistijden en poriesnelheid met enige onzekerheid zijn omgeven. De onzekerheid in de inschatting van de piekdoorbraak tijd is voor de eerste tracerproef (25 mm beregening) gezien de lagere frequentie van de handmetingen geschat op ± 10 uur. Bij de tweede tracerproef (50 mm beregening) is deze onzekerheid geschat op ± 5 uur gezien de frequentere handmetingen. Omgerekend resulteert dit in een onzekerheid in de poriesnelheid variërend van ca. 4% voor de anderhalve meter kolommen tot 10-11 % voor de halve meter kolommen. De twee regen regimes bieden een goed handvat voor het onderling vergelijken van de kolommen. Uitgaande van een veldvochtige beginconditie en geen overschrijding van de infiltratiecapaciteit zou bij min of meer gelijke bodemcondities het verdubbelen van de beregening een gelijk effect op de reistijd van de kolommen moeten hebben. Uit de metingen resulteert een verdubbeling van de neerslagintensiteit bij alle drie de kolommen in een bijna verdubbeling van de reistijd (respectievelijk 1,90, 1,87 en 1,95). Gezien de onzekerheid in de reistijdschatting, kan gesteld worden dat bij alle drie de kolommen een verdubbeling van de neerslagintensiteit resulteert in een verdubbeling van de poriesnelheid.

De proef richtte zich primair op het vaststellen van lengte-effecten op de verwijdering van micro-organismen. Voor de vertaling van de kolomgegevens naar de praktijk is het van belang om de representativiteit van het zandbed voor natuurlijke condities te toetsen. Hiervoor is de tracerdoorbraak van de halve meter kolom vergeleken met de tijdens de Solleveld proef gemeten tracerdoorbraak (Figuur 5-2). Hieruit blijkt dat de tracerdoorbraak bij 50 mm berekening tijdens de Solleveldproef ongeveer 1,4 keer sneller is verlopen dan in de kolommen (36 uur tot eerste piek vs. 52 uur bij de halve meter kolom). Dit verschil is waarschijnlijk toe te schrijven aan verschillen in doorlatendheid tussen het natuurlijke zandbed bij Solleveld en het verstoorde (gezeefde en gepakte) zandbed bij de kolommen. Zo zijn helmwortels en ander grover materiaal uit het zand van de kolommen verwijderd en kan tijdens het pakken enige ontmenging van de zandfractie hebben plaatsgevonden. Op grond hiervan is een grotere homogeniteit te verwachten in de kolommen. Zo bezien zou een grotere afwijking verwacht mogen worden en zijn de kolommen zelfs een redelijke afspiegeling van de praktijksituatie.



Figuur 5-2. Vergelijking zout doorbraakcurves halve meter kolom met de zout doorbraakcurve bij de Solleveld proef

Over de invloed van preferente stroming in de onverzadigde zone is door de grote heterogeniteit nog geen echte kwantitatieve kennis beschikbaar zoals ook bleek uit een verkenning van dit fenomeen (Bron: Vink, Hoofdstuk 6 in Hijnen et al., 2012). Het is een wijd verbreid fenomeen dat op zowel zand, klei als veenbodems voorkomt en wordt veroorzaakt door (combinaties van) aanwezigheid van macroporiën, bioporiën, waterafstotendheid en verschillen in maaiveldhoogte. Een belangrijk gevolg van preferente stroming is dat een deel van het infiltrerende water, al dan niet met daarin opgeloste contaminanten via een “snelwegroute” de onverzadigde zone kan passeren. Een aantal factoren die in dat rapport worden genoemd die de mate waarin preferente stroming optreedt bepalen, zijn de structuur van de bodem, de mate waarin grondbewerking is toegepast, de hydraulische conductiviteit (doorlatendheid) van de bodem en de flux van de neerslag, het vochtgehalte en de waterafstotendheid

(hydrofobie) van de bodem en de vorm van het maaiveld (voorkomen van hellingen die de oppervlakkige afstroming sturen).

5.2 Verwijdering van bacteriofagen en bacteriën in een onverzadigde zandbodem

Het onderzoek beschreven in dit rapport heeft aanvullende gegevens opgeleverd over de verwijdering van bacteriofagen als procesindicatoren voor virus verwijdering en *E. coli* als procesindicator voor de verwijdering van pathogene bacteriën als *Campylobacter* in de onverzadigde zone van een freatische duinwaterwinning. In tabel 5-1 zijn de kwantitatieve gegevens samengevat.

Tabel 5-1. De DEC-waarden van de bacteriofagen en *E. coli* berekend op basis van de massabalans voor MS2 en PhiX174 bacteriofagen en *E. coli* bepaald voor onverzadigde zandkolommen met verschillende grondwaterstanden (dikte van onverzadigde zone) en berekend onder verschillende condities

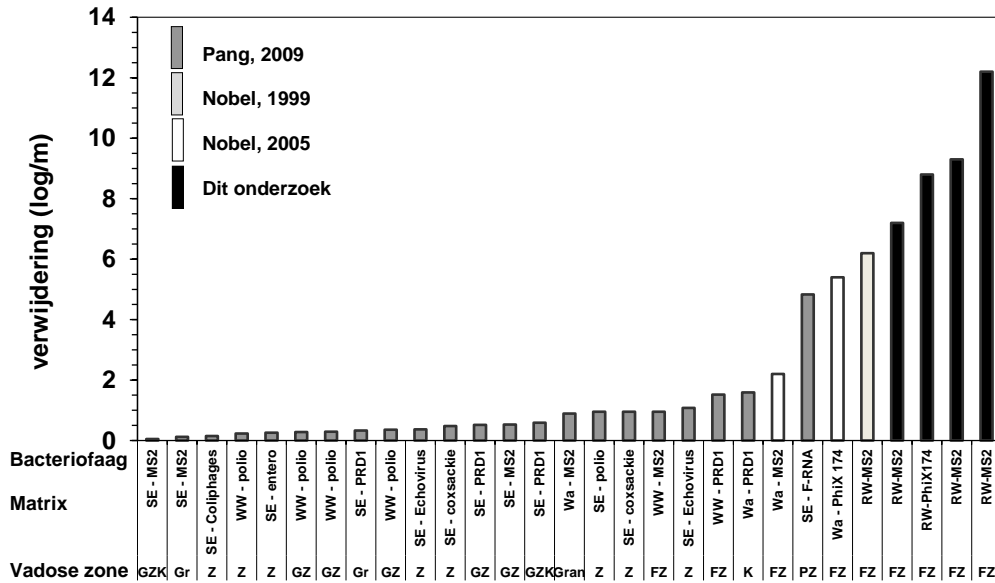
Grondwater Stand (m)	25 mm/d		50 mm/d		25 mm/d +mest-eluaat	
	MS2/PhiX174	<i>E. coli</i>	MS2	<i>E. coli</i>	MS2	<i>E. coli</i>
-0,5	2,8; 4,4	(6,8) ^a	3,7	5,4	6,1	6,0
-1,0	7,1; (5,5) ^a	6,2	9,2	6,0	7,4	8,9
-1,5	7,5; >8,4	6,7	9,2	8,3	7,7	10,9

^a minder betrouwbare waarden door gering aantal positieve monsters

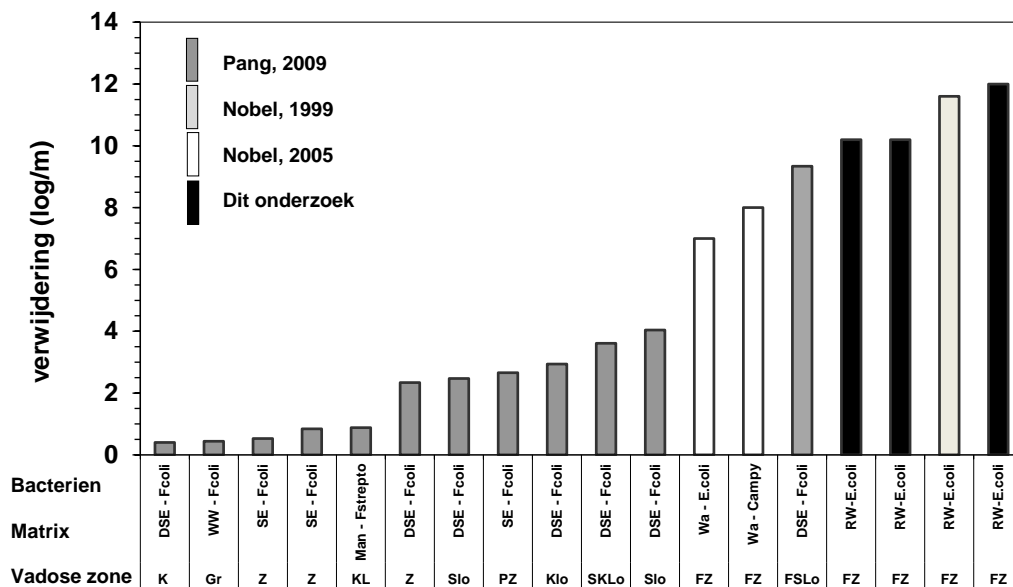
Hieruit blijkt dat de twee bacteriofagen onderling verschillen in mate van verwijdering. PhiX174 wordt beter verwijderd dan MS2 fagen. Het verschil in verwijdering van bacteriofagen en *E. coli* is variabel. Bij de experimenten zonder mest-eluaat wordt *E. coli* in de 0,5 m kolommen beter verwijderd dan de bacteriofagen, maar in de kolommen met grotere lengte is de verwijdering van *E. coli* onder deze condities lager dan van de bacteriofagen. In aanwezigheid van mest-eluaat bij de berekening is de verwijdering van *E. coli* en MS2 fagen in de eerste 0,5 m van de onverzadigde zone gelijk, maar bij de kolommen met grotere lengte is de *E. coli* verwijdering groter dan de MS2 verwijdering.

In de afgelopen jaren zijn (Nobel et al., 1999) in het kader van het BTO onderzoek en in opdracht van individuele waterbedrijven (Nobel e.a., 1999; Nobel en Cirkel, 2005) experimenten uitgevoerd naar de verwijdering in de onverzadigde zone. Een uitgebreide literatuurstudie naar dit onderwerp is uitgevoerd in het kader van de ontwikkeling van een stochastisch model om de belasting van freatisch grondwater met pathogene micro-organismen te bepalen (Hijnen e.a., 2012). In deze studie is gebruik gemaakt van de uitgebreide review van Pang (2009) over bodemtransport. Alle gegevens zijn samengevat in de figuren 5-3 en 5-4, inclusief de gegevens van het huidige onderzoek, waarbij de richtingscoëfficiënten (log/m) uit tabel 4-13 zijn gebruikt.

Uit deze gegevens blijkt dat de logverwijdering van de BTO experimenten voor zowel de bacteriofagen als de bacteriën hoger zijn dan de logverwijdering in meeste studies die door Pang (2009) zijn samengevat. Het grote verschil tussen de studies van Pang met de BTO studies is de watermatrix waarvoor de verwijdering is bepaald. De studies die Pang beschrijft gaan over een verwijdering uit afvalwater (direct Waste Water) of effluent van behandeld afvalwater (diluted Sewage Effluent; DSE) of zelfs mest (manure), terwijl het bij de BTO studies gaat om de verwijdering uit drinkwater (WA) of regenwater (RW).



Figuur 5-3. De verwijdering van virussen en bacteriofagen in diverse onverzadigde bodemtypen zoals samengevat door Pang (2009) aangevuld met de BTO studies van de afgelopen jaren; Matrix - org.: SE = sewage effluent, WW = waste water, Wa = water, RW = regenwater; Vadose of onverzadigde zone: GZK = grof zand/klei, GZ = grof zand, Gr = grind, Z = zand, FZ = fijn zand, PZ = pumice zand, K = klei, Gran = graniet. Alle gegevens lineair doorberekend naar log/m; geen rekening gehouden met conclusie van huidige onderzoek



Figuur 5-4. De verwijdering van bacteriën (*E. coli* of *F. coli* = fecale coli) in diverse onverzadigde bodemtypen zoals samengevat door Pang (2009) aangevuld met de BTO studies van de afgelopen jaren; Matrix - org.: (D)SE = (diluted) sewage effluent, WW = waste water, Man = manure, Wa = water, RW = regenwater; Vadose of onverzadigde zone: GZK = grof zand/klei, GZ = grof zand, Gr = grind, Z = zand, FZ = fijn zand, PZ = pumice zand, Kl = klei, Gran = graniet. Alle gegevens lineair doorberekend naar log/m; geen rekening gehouden met conclusie van huidige onderzoek

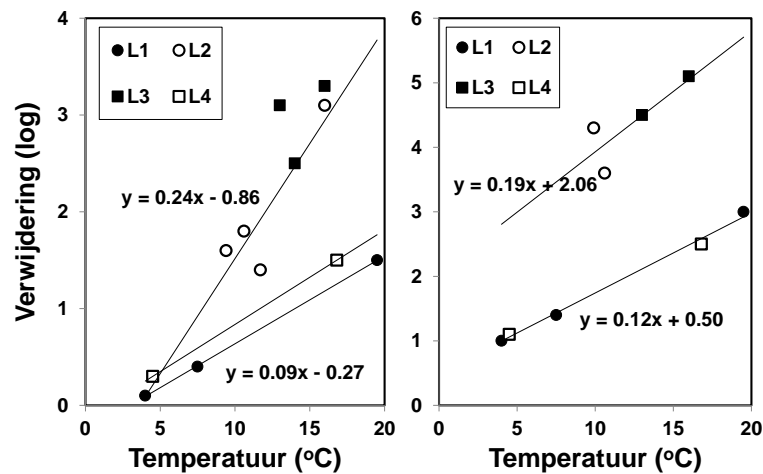
De huidige studie laat echter zien dat de aanwezigheid van een organische matrix afkomstig uit mest de verwijdering verhoogt. Hierover kan worden gespeculeerd dat een permanente belasting van een onverzadigde zone met sterk verontreinigd afvalwater verrijkt met micro-organismen in de studies beschreven door Pang, leidt tot oververzadiging van de onverzadigde zone met deze micro-organismen en uitspoeling naar het grondwater. Omdat deze condities niet lijken op de mogelijke microbiologische risico's van begrazing, recreatie en natuurlijk fauna in de freatische duinwaterwinningen, wordt geconcludeerd dat de gegevens van Pang (2009) een duidelijke onderschatting geven van de verwijdering in de onverzadigde zone en dat de in BTO verband verzamelde gegevens beter passen bij de te beoordelen situaties in de duinen.

5.3 Gegevens van kolomexperimenten versus de veldproef

In Tabel 4-14 zijn de gegevens van de drie BTO studies naar de verwijdering in de onverzadigde zone samengevat. Uit die tabel bleek een duidelijk grotere verwijdering van beide micro-organismen (bacteriofagen en *E. coli*) in de kolomstudies in vergelijking tot de verwijdering in de veldstudie. De in dit rapport beschreven hydrologische condities zuigspanning en vochtgehalte in de kolommen blijken goed overeen te komen met deze gegevens van de veldstudie afgeleid uit de retentiecurven (de Vries, 2013). Een verschil die een lagere verwijdering in de veldproef zou kunnen verklaren is de grotere doorlatendheid van het pakket in de veldstudie afgeleid uit de tracertest gegevens dan die van de gestapelde kolommen van de huidige studie. De verwijdering in beide kolomstudies lagen in dezelfde orde van grootte (Tabel 4-14). De belangrijkste verschillen in experimentele condities tussen de studies waren de volgende

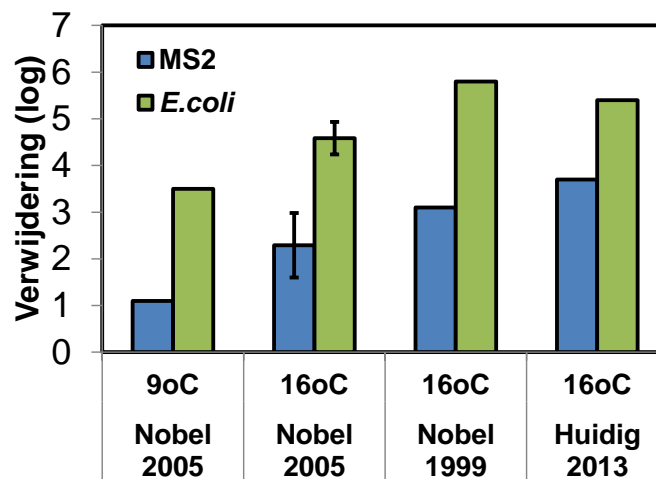
- Kolommen 1999 en 2013: gestoken en gestapelde zandkolom
- Kolom 1999 en veld: vegetatie/gestoken, pH, temperatuur, geleidbaarheid, DOC
- Kolom 2013 en veld: gestapeld, pH, temperatuur, geleidbaarheid, DOC,

Op grond hiervan lijken naast een verschil in doorlatendheid, de pH en temperatuur de belangrijkste condities te zijn die het verschil tussen veld en kolomgegevens bepaald kunnen hebben. Buiten het verschil in vulling van de kolommen zijn de overige condities bij de kolomproeven redelijk gelijk en komt ook de verwijdering van MS2 en *E. coli* overeen. De hoge pH in de veldstudie kan een lage verwijdering van beide micro-organismen veroorzaken doordat de negatieve lading van de bio-colloïden en het zand toeneemt en daarmee de elektrostatische repulsie. De temperatuur heeft een effect op de biologische processen in het zandpakket. Uit de literatuur over langzame zandfiltratie is bekend dat door activiteit van andere micro-organismen (bacteriofagen, bacteriën en dierlijke organismen) de eliminatie van pathogene micro-organismen (virussen, bacteriën en protozoen) in een filterbed toeneemt door predatie, afsterving en/of desintegratie. Een voorbeeld van de invloed van de temperatuur op de eliminatie van MS2 fagen en *E. coli* bacteriën in langzame zandfilters wordt gegeven in Figuur 5-5.



Figuur 5-5. De invloed van de watertemperatuur op de eliminatie van MS2 fagen (links) en *E. coli* bacteriën (rechts) door langzame zandfilters met een dikte van ongeveer 1,0 m op vier verschillende locaties (Bronnen: Dullefont et al., 2006; Hijnen en Schijven et al., 2013)

Uit deze gegevens is een lineaire schatting gemaakt van de temperatuurinvloed op de eliminatie. Voor MS2 fagen varieert de invloed tussen 0,09 - 0,24 log per °C en voor *E. coli* tussen 0,12 - 0,19 log per °C. Wanneer de gegevens van de veldstudie worden gecorrigeerd voor de temperatuur dan blijkt de verwijdering onder deze condities nog steeds lager te zijn dan gemeten in de kolommen maar de verschillen zijn kleiner dan de verschillen zonder deze correctie (Figuur 5-6). De grotere doorlatendheid van het zandpakket onder veldcondities en/of de hoge pH zouden de rest van het verschil in verwijdering kunnen verklaren.



Figuur 5-6. Vergelijking van de MS2 en *E. coli* verwijdering in 0,5 m onverzadigde zone en 50 mm/d beregning bij de drie verschillende experimenten waarbij de waarden van de veldstudie wel en niet gecorrigeerd voor de temperatuur zijn weergegeven (foutenbalk = variatie in temperatuurcorrectie op basis van Figuur 5-5)

Deze resultaten zijn geen direct bewijs dat een mogelijk belangrijk deel van het verschil in verwijdering tussen veld en kolomstudies te verklaren is uit een hogere temperatuur, maar zijn daar een (sterke) aanwijzing voor. Deze gegevens lijken

eveneens te duiden op het relatieve geringe belang van de pakking of stapeling van de zandkolom voor de verwijdering van micro-organismen.

5.4 Bodem-chemische reacties

De berekening met kunstmatig regenwater heeft een uitloegend effect op de kolommen. Ten opzichte van het regenwater nemen de concentraties van de macroparameters toe in het effluent. Het grootste effect is waarneembaar bij Calcium waarbij de concentratie in het effluent een factor 10 toeneemt ten opzichte van de concentratie in het regenwater. Deze toename wordt waarschijnlijk hoofdzakelijk veroorzaakt door kationomwisseling met Natrium. Oplossing van kalk is minder van belang gezien de vrijwel constante pH en concentratie anorganische koolstof (IC) tijdens transport door de kolommen. De betekenis van deze bodem-chemische reacties voor de verwijdering van micro-organismen is niet duidelijk. Het uitspoelen van divalente ionen als Calcium, maar ook van Fe en organische stof door berekening (Tabel 4-7) heeft een effect op de eigenschappen van de bodem. Een verlaging van de positieve hechtingsplaatsen zou hiervan het gevolg kunnen zijn. Uit de resultaten blijkt dit echter niet want met toenemende looptijd van de kolommen nam de verwijdering alleen maar toe.

5.5 Theoretische beschouwing van de resultaten

Bij transport van micro-organismen door verzadigde poreuze media (grondwaterstroming) treedt hechting, afsterving en verdunning op. Zowel binnen als buiten BTO verband is in de afgelopen 10 jaar uitgebreid onderzoek gedaan naar deze processen (Schijven et al. 2002; 2005; 2006, van der Wielen et al. 2005; 2008, Hornstra et al., 2013). De in bovenstaande onderzoeken geobserveerde en gemodelleerde processen treden ook op in de onverzadigde zone van de bodem. Het transport wordt in de onverzadigde zone echter gecompliceerd door aanwezigheid van lucht in de poriën. Normaliter bevindt de lucht zich in het midden van de poriën en bevindt het vocht zich als een film over het oppervlak van de zandkorrels of als pendulaire ringen rond de korrels (Figuur 5-7a). Micro-organismen worden getransporteerd via dit vocht rond de korrels. Tijdens transport kan retentie optreden door hechting van de deeltjes aan grensvlakken, het gaat hierbij om het grensvlak tussen lucht en water (air-water: A-W), het grensvlak tussen water en vast materiaal (water-solid: W-S) en grensvlakken tussen lucht, water en vast materiaal (air-water-solid: AWS). Het lucht-vaste stof oppervlak speelt uiteraard geen rol voor transport. De fysische processen die bij colloïdaal transport in een dergelijk complexe drie-fase matrix spelen, zijn beschreven in een review (Bradford and Torkzaban, 2007). Uit deze review blijkt dat dit transport wordt beïnvloed door de electrostatische krachten van aantrekking en afstoting beschreven met het Derjaguin-Landau-Verwey-Overbeek (DLVO) model, die van invloed zijn op de interactie van de colloïden met het zowel het water-zand grensvlak, als ook het lucht-water grensvlak. Dit onverzadigde zandmodel is gepresenteerd in Figuur 5.7b. Maar de auteurs laten ook duidelijk zien dat naast deze krachten ook hydrodynamische krachten een rol spelen zoals de capillaire en schuifkrachten en ook de chemische hydrofobe kracht aan beide grensvlakken. Door Lazouskaya and Jin (2008) wordt deze laatste kracht op grond van zowel theoretische als experimentele waarnemingen als de belangrijkste kracht gezien bij de hechting van colloïdale deeltjes aan het lucht-water (A-W) grensvlak. De bijdrage van capillaire krachten hangt af van de dikte van de waterfilms in de onverzadigde zone in verhouding tot de grootte van het deeltje. Uit microscopisch onderzoek (o.a. Crist et al 2004) blijkt dat de rol van het A-W grensvlak voor retentie van colloïden in het algemeen beperkt is doordat dit grensvlak meebeweegt met het water. Retentie lijkt hierbij alleen op te treden als luchtbelletjes immobiel worden tussen grote korrels. Significante depositie lijkt echter vooral op te treden in waterfilms, op AWS grensvlakken en in immobiel water. Door Gao et al (2008)

is het gedrag van colloïden met een grootte die varieerde van 0,8 tot 5 μm (maatvoering van bacterie - *Cryptosporidium* oöcysten) in dunne waterfilms en op AWS grensvlakken theoretisch fysisch beschouwd. Zij concluderen hierbij dat capillaire krachten een grote rol spelen bij de retentie van colloïden waarbij zowel de voorwaartse beweging van een colloïde wordt gestopt en waarbij de verticale component van de capillaire kracht de colloïde tegen het oppervlak van bijvoorbeeld een zandkorrel drukt, waardoor een wrijvingskracht optreedt tegengesteld aan de laterale kracht. Dit wordt onderschreven door Morales et al., (2009), die aangeven dat de retentie wordt bevorderd door de ruwheid en daarmee de wrijvingskracht van het zand. Het tegen een oppervlak aangedrukt worden door capillaire krachten is belangrijk omdat in bulk oplossingen de Derjaquin-Landau-Verwey-Overbeek (DLVO) krachten van de diffuse dubbel laag de colloïde afstoten en de colloïden hierdoor onvoldoende dichtbij kunnen komen om door van der Waalskrachten te worden gebonden. Op AWS grensvlakken zijn de capillaire krachten echter veel groter dan de DLVO krachten en wordt een colloïde dicht genoeg tegen het oppervlak gedrukt om door van der Waals krachten te worden aangetrokken en gebonden aan het oppervlak. Gao et al. 2008 geven aan dat als bij opvulling van de poriën door stijging van de druk de capillaire krachten verdwijnen, de colloïden op de AWS grensvlakken weer vrijkomen en verder kunnen worden getransporteerd. Crist et al 2004 observeerden dit proces voor deeltjes met een grootte van ca. 5 μm (vergelijkbaar met *Cryptosporidium* oöcysten; factor 5-10 groter dan bacteriën), maar zagen ook dat bij verminderen van de doorstroming van de kolom en een zich terugtrekkende meniscus de colloïden op hun plek bleven op het oppervlak van de korrel. Na het weer verhogen van de stroming kwam de meniscus niet meer terug in dezelfde positie en bleven de colloïden op hun plek. Pas bij sterke toename van de stroming sprong de meniscus met een 'Haynes jump' terug en werden de colloïden vrijwel instantaan weggeveegd. Dit is mogelijk te verklaren doordat bij gelijke stroming het water niet noodzakelijkerwijs hetzelfde pad zal volgen.

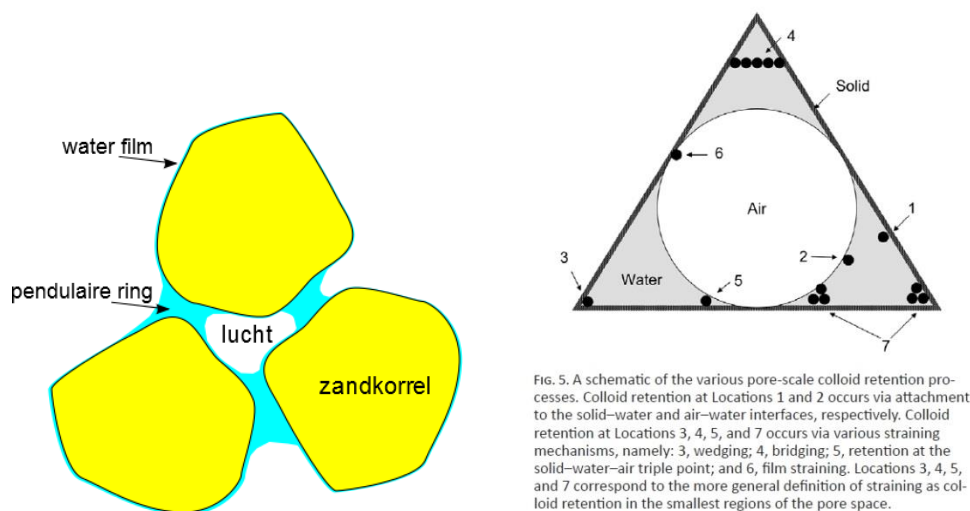


FIG. 5. A schematic of the various pore-scale colloid retention processes. Colloid retention at Locations 1 and 2 occurs via attachment to the solid-water and air-water interfaces, respectively. Colloid retention at Locations 3, 4, 5, and 7 occurs via various straining mechanisms, namely: 3, wedging; 4, bridging; 5, retention at the solid-water-air triple point; and 6, film straining. Locations 3, 4, 5, and 7 correspond to the more general definition of straining as colloid retention in the smallest regions of the pore space.

Figuur 5-7 Verdeling van vocht rond zandkorrels in een onverzadigde zone (a; Bron: Cirkel, 2014) en de verschillende grensvlakken waar micro-organismen kunnen aanhechten (b, Bron: Bradford and Torkzaban, 2007)

Crist et al (2004) laat verder (in overeenstemming met Gao et al (2008) zien dat het AWS grensvlak van minder groot belang is voor hydrofobe colloïden. Voor hydrofobe colloïden lijkt sedimentatie op korreloppervlakken en filtratie tussen korrels binnen

pendulaire ringen dominant. Verder geven Crist et al (2004) aan dat hydrofobe colloïden weer re-mobiliseren als wordt doorstroomd met colloïden-vrij water, resulterend in het intermitterend vrijkomen van hydrofobe colloïden en clusters van geaggregeerde colloïden. Volgens Crist zou een dergelijke re-mobilisatie tevens resulteren in een verhoudingsgewijs lange staart van de doorbraak curve.

Deze theoretische overwegingen tonen dat het transport van deeltjes zoals micro-organismen in de oververzadigde zone afhangt van een veelheid aan krachten. Belangrijk is natuurlijk het overall-effect hiervan en de uiteindelijke retentie of verwijdering. Uit het huidige onderzoek komt naar voren dat de verwijdering in de onverzadigde zone met een hoge dynamische bodemvochtigheid als gevolg van hoog frequente regenval groter is dan de verwijdering in de zones met een lage vochtigheidsdynamiek en meer verzadiging. Dit resultaat wordt bevestigd door enkele studies beschreven in de literatuur van de afgelopen dertig jaar (beperkt overzicht). Lance en Gerba (1984) beschrijven een studie met poliovirussen in zandkolommen waar de penetratie in het bed hoger was in een verzadigd bed dan in een onverzadigd zandbed. Wan et al., 1994 zagen dat adsorptie van bacteriën aan het A-W-S grensvlak een verhoging van de retentie in zandkolommen veroorzaakte en dat de retentie toenam naarmate de bacterie meer hydrofoob was. Ook Morales et al., (2007) toonden dat de colloïden retentie toeneemt met een afnemend watergehalte van het poreuze pakket. Zij voegden daaraan toe dat de retentie ook werd bevorderd door de ruwheid van het zand. Het effect van de ruwheid van het oppervlak neemt af met toenemende oppervlakte ruwheid.

Verschillen tussen twee bacteriofagen. Door een doseerproef uit te voeren met twee verschillende bacteriofagen met verschillende oppervlakte eigenschappen wordt mogelijk iets duidelijk over de invloed van bepaalde krachten bij het transport van deze deeltjes. MS2 bacteriofagen zijn hydrofoob en onder de in de kolommen overheersende condities (pH 5.3, lage ionsterkte) zijn de MS2 fagen (zwak) negatief geladen. De phiX174 virussen zijn juist hydrofiel en bij de pH van 5.3 licht positief geladen. Op basis van bovenstaande literatuur zou voor de hydrofobe MS2 virussen vooral sedimentatie en adsorptie de dominante retentie processen zijn, maar makkelijk re-mobilisatie kunnen optreden. Daarbij zal de grotere hydrofobiciteit veroorzaken dat MS2 meer aan het AW grensvlak zal ophopen en makkelijk getransporteerd zal worden (Lazouskaya and Jin (2008). Voor PhiX174 zou dan juist retentie op AWS grensvlakken het dominante proces zijn en deze fagen zitten liever in de waterfase en ondervinden een afstoting van het AW grensvlak. Uit de resultaten komt een hogere verwijdering naar voren van PhiX174. Ook uit de Solleveld veldproef (Nobel en Cirkel 2005) kwam een hogere verwijdering van PhiX174 naar voren. In de condities van deze twee proeven zijn echter twee verschillen aan te wijzen: bij de veldproef is berekend met drinkwater met een neutrale pH en een verhoudingsgewijs hoge ionsterkte, bij de kolomproeven is juist 'regenwater' met een lage pH en lage ionsterkte gebruikt. Onder de condities van de veldproef is MS2 sterk negatief geladen maar onder de kolomcondities met lage pH is MS2 minder negatief geladen. PhiX174 is onder de condities van de veldproef nagenoeg neutraal, maar onder de kolomcondities positief geladen. Zowel in de kolom als de veldproef zal MS2 door de negatieve lading (veldcondities) en de grotere hydrofobiciteit (liever op AW interface) minder goed hechten dan het hydrofiel en positief geladen PhiX174. Omdat in beide onderzoeken PhiX174 beter wordt verwijderd dan MS2, lijkt de ladingverandering van veld naar kolom door de gewijzigde pH van negatief naar neutraal voor MS2 en van neutraal naar positief voor PhiX174 van minder belang dan en het effect van verschil in hydrofobiciteit. De omstandigheden van de kolommen lijken in overeenstemming met

de proefcondities van Crist et al (2004) waar na het draineren van de kolom de flow weer hersteld werd naar het oude niveau. De op het AWS grensvlak ingevangen colloïden bleven daarbij op hun plek ondanks dat de menisci vervormden. Dit kan mogelijk ook gelden voor ingevangen PhiX174 virussen, wat een verklaring kan vormen voor de effectieve verwijdering van dit organisme ten opzichte van het hydrofobe MS2.

Verschillen tussen fagen en bacteriën. De verschillen in verwijdering tussen MS2 en *E. coli* kunnen ook op basis van de theoretische aspecten van de verwijdering (capillaire, electrostatische en schuifkrachten) worden beoordeeld. Uit de fysische eigenschappen van een colloïde kan de botsingskans met de collector (zand) worden berekend (collision efficiency of η). Bekend is dat deze waarde het kleinst is voor deeltjes die qua grootte overeenkomen met de grootte van een bacterie. Dus *E. coli* heeft een kleinere botsingskans. De andere factor die de verwijdering bepaald is het wederzijds ladingverschil tussen het deeltje en de collector. Bij verschillende lading van de deeltjes (positief en negatief) is er sprake van aantrekking en bij gelijke lading afstoting. Een grotere verwijdering van *E. coli* in de eerste 0,5 m dat in het huidige onderzoek is waargenomen wijst op een grotere betekenis van een positief ladingsverschil. De hogere invloed van capillaire krachten op *E. coli* dan op de veel kleinere MS2 fagen die theoretisch berekend kan worden, lijkt daarmee geen nadelige gevolgen te hebben voor de retentie van *E. coli* in de onverzadigde zone.

Afsterving in de onverzadigde zone. Een ander aspect van de aanwezigheid van een AWS grensvlak in de onverzadigde zone is het effect hiervan op de bijdrage van afsterving in de verwijdering. Thompson en Yates (1998) beschrijven dat in de literatuur door anderen is aangetoond dat virusafsterving in suspensies toeneemt door schudden, beluchten en verneveling van de suspensie. Thompson en Yates (1998) tonen aan dat het hierbij waarschijnlijk niet gaat om het AW grensvlak maar om het snijpunt van de drie fasen in de onverzadigde zone: lucht, water, vaste stof (AWS). Ook tonen ze aan dat de ophoping van virussen aan AW en AWS grensvlakken wordt bevorderd bij een hogere ionenconcentratie. Hierdoor neemt de invloed van de lading van een deeltje toe door het indrukken van de dubbellaag rondom het deeltje. Daarmee laten ze zien dat ook de electrostatische krachten een rol spelen bij de accumulatie van virussen aan het AW-grensvlak.

Invloed van organische stof en deeltjes. Inzicht in het transport van micro-organismen in de onverzadigde zone van een bodem is voornamelijk van belang in water wingebieden met ondiepe winningen en fecale belasting aan maaiveld. Dat betekent dat de micro-organismen direct afkomstig zijn uit de fecaliën en via beregening het grondwater kunnen bereiken. Consequentie hiervan is dat de micro-organismen worden getransporteerd via water dat verontreinigd is met bestanddelen uit de fecaliën zoals diverse biopolymeren en andere opgeloste (an)organische bestanddelen. Anorganische componenten (ionen) in de watermatrix hebben meestal een positief effect op de retentie van micro-organismen door een toename van de hechting. Het effect van colloïdaal materiaal en opgeloste organische stoffen is minder eenduidig. Walshe et al., 2010 beschrijft dat in de literatuur lagere retentie door aan 'deeltjes-gebonden' transport (colloid-facilitated transport) wordt beschreven. In de experimenten die zij uitvoerden laten ze echter zien dat het effect van de aanwezigheid van anorganisch kaoliniet colloïden transport vermindert en de retentie verhoogt in het zandbed. De retentie wordt verlaagd wanneer het water wordt verrijkt met humuszuren als organische matrix (15-30 mg/l). Dit is in tegenstelling met de gegevens van het huidige onderzoek waardoor de dosering van organische stof uit Galloway fecaliën de retentie wordt verhoogd.

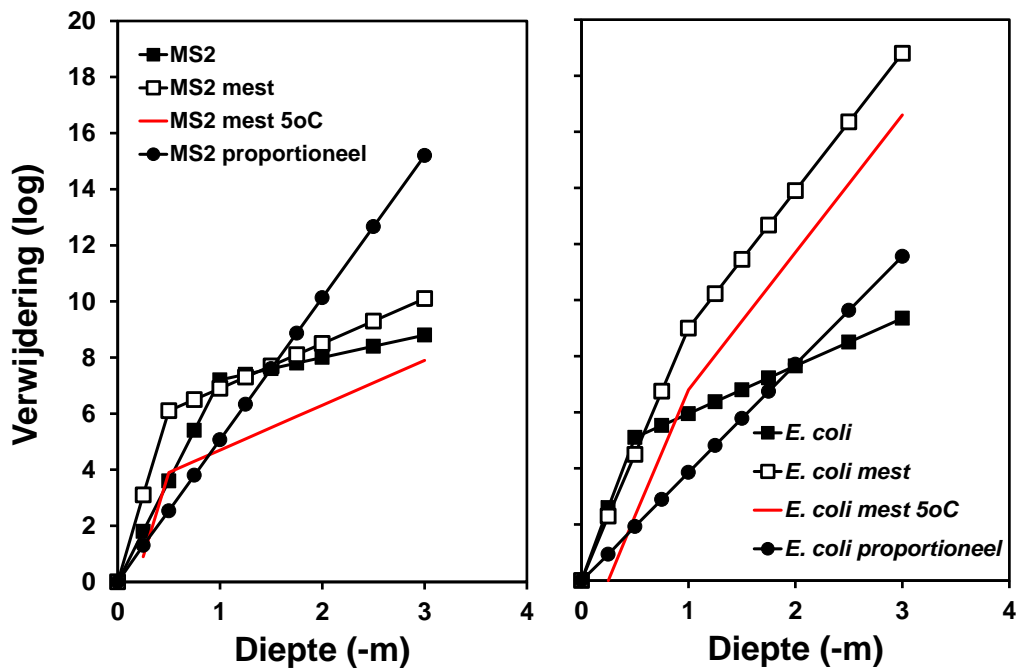
Deze resultaten laten zien dat het effect van (an)organische stoffen en colloïdale deeltjes op het transport van micro-organismen in de bodem sterk afhankelijk is van de samenstelling en eigenschappen van deze componenten en de interactie van deze bestanddelen met enerzijds de bodem en anderzijds de micro-organismen. Terwijl organische stof in de vorm van humuszuren het transport kan bevorderen door competitieve hechting aan de bodem, kan organisch colloïdaal materiaal (biopolymeren) door co-aggregatie met de micro-organismen de retentie juist verhogen. Een onzekere factor van de organische stof is het lange termijn effect. In het huidige onderzoek is tweemaal berekend met de mestmatrix, terwijl in de werkelijkheid de onverzadigde zone zo lang wordt belast met deze stoffen totdat het materiaal aan maaiveld is vervallen. De gegevens die Pang (2009) in een review beschrijft laten lage verwijdering zien onder infiltratiecondities met organisch verontreinigd water (al dan niet gezuiverd afvalwater). Het is dus de vraag of bij een langdurige belasting met deze organische stoffen de verwijderingscapaciteit van de bodem daalt.

5.6 Vertaling naar de praktijk

Uit de verwijderingsresultaten blijkt dat het vergroten van de onverzadigde zone door het verlagen van de grondwaterstand niet lineair doorwerkt in de verwijdering van de micro-organismen (Figuur 4-18, Figuur 4-19). Per halve meter diepere grondwaterstand neemt de verwijdering af. Dit is het duidelijkste zichtbaar bij *E. coli* zonder mest eluaat, maar ook bij de virussen is dit patroon waarneembaar. Deze afname in verwijdering is mogelijk te verklaren in de afname van het AW en AWS grensvlak met de diepte. De gemiddelde waterverzadiging neemt immers licht toe met de diepte. Daarnaast is de dynamiek in druk en vochtgehalte het grootst in het bovenste deel van de kolommen. Tussen de buien door worden hier de waterfilms het dunst en is het grensvlak van AW en AWS het grootst.

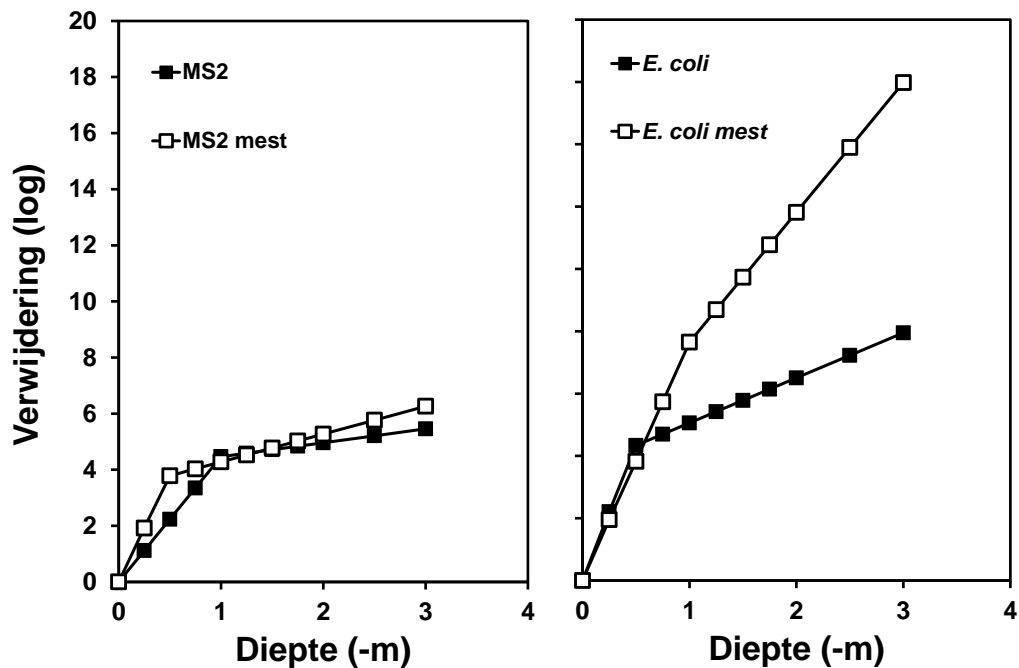
5.6.1 Extrapolatie van de verwijderingsgegevens

Onder de aanname dat de bodemsamenstelling en de gevonden vochtdynamiek in Solleveld, vergelijkbaar is met de bodemsamenstelling en vochtdynamiek bij andere duinwaterwinningen, kan op basis van extrapolatie de verwijdering door een onverzadigde zone met variabele grondwaterstand worden berekend uit de verwijderingsgegevens. Met de richtingscoëfficiënten van tabel 4-13 is de verwijdering in een variabele onverzadigde zone van 0 tot 3 m berekend op grond van een tweedeling van de gemeten verwijdering (optie i) in een vaste bovenlaag met hoog vochtdynamische condities en (optie ii) in een variabele onderlaag proportioneel berekend uit een vaste verhouding tussen de verwijdering in de dynamische bovenlaag en de minder dynamische onderlaag gemeten bij een regenval van 25 mm/d met en zonder de mestmatrix en 16°C (Figuur 5-8). Voor de vaste laagverdeling is met een rode lijn de verwachte verwijdering weergegeven bij een temperatuur van 5°C berekend met een verwijderingseffect van 0,2 log/°C.



Figuur 5-8. Berekende verwijdering van MS2 en *E. coli* als functie van de diepte van de grondwaterstand berekend uit de richtingscoëfficiënten van Tabel 4-13 op basis van een vaste (tweedeling) en proportionele verdeling (rechte lijn) van de verwijdering in de bovenlaag met hoge vochtdynamiek en de variabele diepere lagen zonder en met mestconcentraat en gecorrigeerd naar een temperatuur van 5°C

De berekende verwijdering getoond in Figuur 5-8 kan worden gecorrigeerd voor de verhouding tussen de verwijdering gemeten in 0,5 m onder veld en kolomcondities na temperatuurcorrectie (Figuur 5-6). Deze correctiefactor is voor MS2 0,62 lageren voor *E. coli* is de correctiefactor 0,85. Deze beide correctiefactoren liggen in dezelfde orde van grootte als het verschil in doorlatendheid van het veld en kolompakket gebaseerd op de tracertest gegevens: 1,4 snellere doorbraak onder veldcondities levert een correctiefactor op van 0,71. Dit levert dan uiteindelijk een geschatte verwijdering (alleen gegeven op basis van een vaste tweedeling met een bovenlaag met sterke vochtdynamiek, dus niet proportioneel) in een variabele onverzadigde zone van 0,25 – 3,0 m op zoals getoond in Figuur 5-9, waarbij duidelijk wordt dat de verwijdering van bacteriofagen in de onverzadigde zone duidelijk lager is dan de verwijdering van *E. coli* bacteriën als procesindicatoren voor respectievelijk enterovirussen en *Campylobacter*. Op grond hiervan is een tabel gemaakt voor de afgeleide verwijdering van enterovirussen en *Campylobacter* in een onverzadigde zone met vergelijkbare bodemeigenschappen en vochtdynamiek condities (Tabel 5-2).



Figuur 5-9. Berekende verwijdering van MS2 en *E. coli* als functie van de diepte van de grondwaterstand berekend uit de resultaten van dit onderzoek bij 16°C (Fig. 5-8) gecorrigeerd voor de waargenomen verhouding in verwijdering tussen veld en kolomstudie (Fig. 5-6)

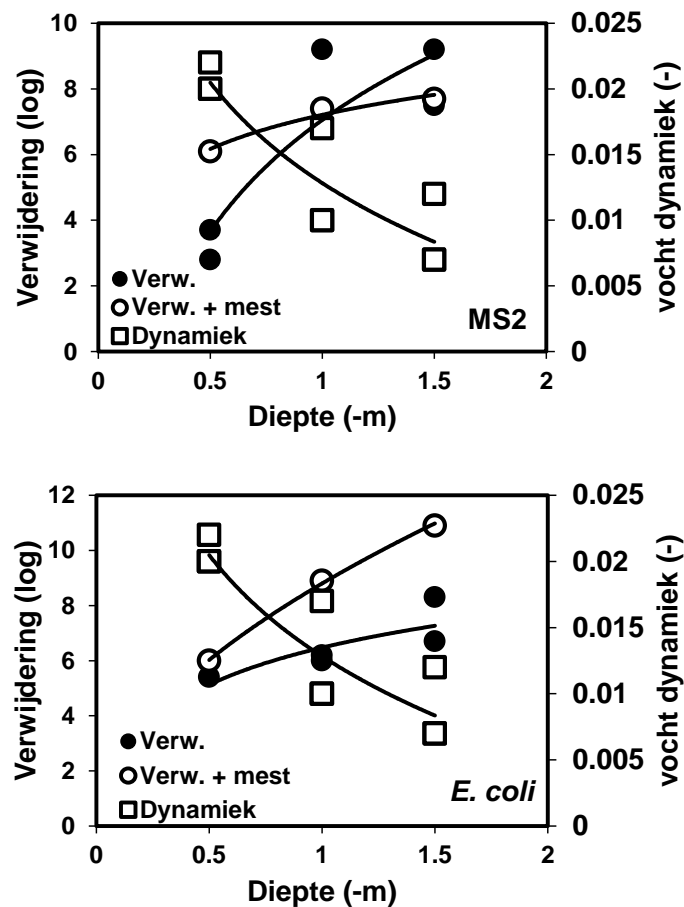
Tabel 5-2. De verwachte verwijdering van enterovirussen en *Campylobacter* (log) in een onverzadigde zone met een vergelijkbare bodemsamenstelling als Solleveld en een vochtdynamiek toegepast in het huidige onderzoek bij vier verschillende temperaturen (vaste verdeling hoge/lage verwijdering, zonder/met de aanwezigheid van een mest matrix en correctie naar veldsituatie voor virussen van 0,62 en *E. coli* van 0,85)

Enterovirussen					
Diepte (m)	16°C	20°C	15°C	10°C	5°C
0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
0.5	2,2/3,8 ^a	3,0/4,6	2,0/3,6	1,0/2,6	0,0/1,6
1	4,5/4,3	5,3/5,1	4,3/4,1	3,3/3,1	2,3/2,1
1.5	4,7/4,8	5,5/5,6	4,5/4,6	3,5/3,6	2,5/2,6
2	5,0/5,3	5,8/6,1	4,8/5,1	3,8/4,1	2,8/3,1
2.5	5,2/5,8	6,0/6,6	5,0/5,6	4,0/4,6	3,0/3,6
3	5,5/6,3	6,3/7,1	5,3/6,1	4,3/5,1	3,3/4,1
<i>Campylobacter</i>					
Diepte (m)	16°C	20°C	15°C	10°C	5°C
0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
0.5	4,3/5,1	5,1/5,9	4,1/4,9	3,1/3,9	2,1/2,9
1	5,1/7,2	5,9/8,0	4,9/7,0	3,9/6,0	2,9/5,0
1.5	5,8/9,3	6,6/10,1	5,6/9,1	4,6/8,1	3,6/7,1
2	6,5/11,3	7,3/12,1	6,3/11,1	5,3/10,1	4,3/9,1
2.5	7,2/13,4	8,0/14,2	7,0/13,2	6,0/12,2	5,0/11,2
3	7,9/15,5	8,7/16,3	7,7/15,3	6,7/14,3	5,7/13,3

^a zonder/met mest matrix

5.6.2 Koppeling van hydrologische en microbiologische gegevens

Uit paragraaf 5.1 en 5.3 blijkt dat de gegevens van dit onderzoek in orde van grootte overeen komen met wat onder veldcondities voor een onverzadigde zone eerder is waargenomen. Om vast te stellen op welke wijze de gegevens vertaald kunnen worden naar variabele onverzadigde zones in de praktijk worden de twee belangrijkste parameters die een verband toonden met de diepte van de grondwaterstand, de dynamiek in het vochtgehalte en de verwijdering van de MS2 bacteriofagen en *E. coli*, hierna in één figuur getoond (Figuur 5-10). Hieruit blijkt dat bij een afnemende vochtdynamiek ook de verwijdering per lengte van de zone afneemt. In Tabel 4-13 is voor de verschillende delen van de onverzadigde zone de verwijdering per m zone lengte gegeven.



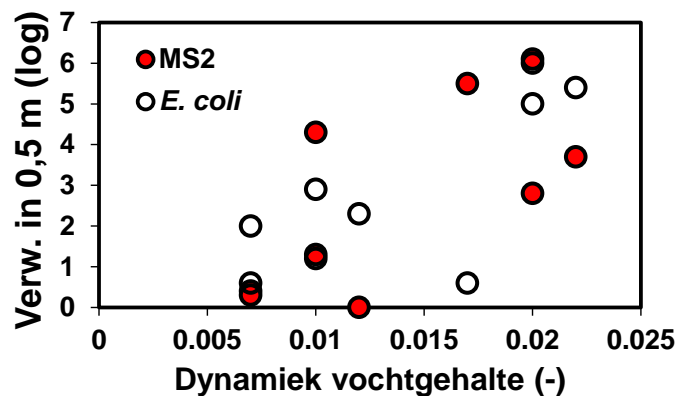
Figuur 5-10. Het verband van de verwijdering van MS2 (boven) en *E. coli* (onder) en van de dynamiek in vochtgehalte met de diepte van de grondwaterstand

Hydrologisch empirische relatie met het vochtgehalte. Er blijkt een significante lineaire relatie ($P < 0,001$) te zijn tussen de dynamiek van het gemeten vochtgehalte (standaard afwijking) en de verwijdering van MS2 en *E. coli* (Figuur 5-11) met de volgende constanten:

Coëfficiënt	Intercept	R^2
268,2 ($\pm 65,4$)	-0,93 ($\pm 0,98$)	0,51

Bij een vochtdynamiek $<0,015$ wordt voor MS2 en *E. coli* een gemiddelde verwijdering van 0,5 (0-0,8) en 3,3 (1,2-4,6) log per m berekend. Deze verwijdering komt overeen met de richtingscoëfficiënten genoemd in Tabel 4-13 (gemiddeld 0,8 (0-1,6) en 3,2 (1,7-4,9) log voor MS2 en *E. coli*). Deze waarden liggen in dezelfde orde van grootte als waargenomen bij verzadigde langzame zandfilters (Fig. 5-5). Bij de hoge vochtdynamiek neemt de verwijdering per m kolomlengte sterk toe: voor MS2 met een factor 7.6-9,3 en voor *E. coli* met een factor 1,8-6,0.

Wanneer de dynamiek van het vochtgehalte in de verschillende delen van de onverzadigde zone bekend is kan op grond van deze relatie de verwijdering van beide micro-organismen worden berekend in de lagen. De vochtdynamiek kan relatief eenvoudig berekend worden met bodemfysische modellen zoals SWAP of Hydrus-1D. Om deze modellen effectief toe te passen is lokale informatie over de grondwaterstandsdynamiek, bodemfysische eigenschappen (retentiecurve) en meteorologische condities nodig. Voor het vaststellen van bodemfysische eigenschappen van duinbodems bij verschillende vegetaties en vormen van beheer zijn recent op Meijndel een groot aantal bodemmonsters genomen in het kader van ecologisch onderzoek aan de grijze duinen. Deze dataset kan uitgebreid worden met andere locaties in Nederland.



Figuur 5-11. Verband tussen de verwijdering van MS2 en *E. coli* in 0,5 m kolomlengte en de vochtdynamiek in deze zone lengte

5.6.3 Betekenis voor de situatie bij Solleveld

Bij de duinwaterwinning van Dunea is op basis van de wens om te komen tot integrale begrazing zonder afrastering een nieuwe winputconstructie ontwikkeld. Bij deze constructie was de aanbeveling van het onderzoek van Nobel en Cirkel (2005) voor een minimale dikte van onverzadigde zone van 0,72 m leidraad. Er is bij de herinrichting van het infiltratiegebied uitgegaan van een dikte van 1,0 m. Op plaatsen in het duingebied waar deze eis niet werd gehaald is het talud rond de winput verhoogd.

Op grond van de resultaten van het huidige kolomonderzoek kan de verwijdering van enterovirussen en *Campylobacter* als indexpathogenen voor de microbiologische veiligheid van het drinkwater in een onverzadigde zone van 1,0 m in het Solleveld gebied kunnen worden berekend bij een temperatuur range van 5 - 20°C (Tabel 5-3). In deze berekening zijn de volgende correcties verdisconteerd (veldsituatie is Nobel en Cirkel, 2005):

- Heterogeniteitsverschil tussen de kolommen en de veldsituatie (kolom < veld);

- Effect van regenwater en mest-eluaat op de verwijdering (kolom > veld);
- Temperatureffect gebaseerd op de langzame zandfiltratie experimenten met MS2 en *E. coli*;
- Vertaling van *E. coli* naar *Campylobacter* (+0,5 log) op basis van de gegevens van het veldonderzoek.

Uit de gegevens blijkt dat de uitgevoerde maatregel in het duingebied die heeft geleid tot een onverzadigde zone van 1,0 m bij de winning in Solleveld een duidelijke verhoging van de veiligheid heeft opgeleverd (Tabel 5-3). De betekenis die dit heeft voor de microbiologische veiligheid van het opgepompte grondwater kan nader worden berekend met het stochastische model dat hiervoor is ontwikkeld (Hijnen et al., 2012) en recent aangepast en toegepast op nieuwe en aanvullende modelgegevens (Penders et al., 2015).

Tabel 5-3. De waargenomen verwijdering (logeenheden) in een onverzadigde zone van 0,5 m gemeten in een winput (gecorrigeerd voor de verdunning in de put; Nobel en Cirkel, 2005) en de voor 0,5 en 1,0 m geschatte verwijdering op basis van de huidige kolomproeven zonder en met een mestmatrix (gegevens Tabel 5-2)

		Gemeten verwijdering Nobel/Cirkel, 2005 drinkwater 7°C (log voor 0,5 m)	Deze studie extrapolatie regenwater 5 – 10 – 15 - 20°C (log voor 0,5 m)	Deze studie extrapolatie regenwater 5 – 10 – 15 - 20°C (log voor 1,0 m)
MS2	-	0,7 - 1,1	0,0 – 1,0 – 2,0 – 3,0	2,3 – 3,3 – 4,3 – 5,3
	+	-	1,6 – 2,6 – 3,6 – 4,6	2,1 – 3,1 – 4,1 – 5,1
<i>E. coli</i>	-	2,8 - 3,5	2,1 – 3,1 – 4,1 – 5,1	2,9 – 3,9 – 4,9 – 5,9
	+	-	2,9 – 3,9 – 4,9 – 5,9	5,0 – 6,0 – 7,0 – 8,0
<i>Campylobacter lari</i>	-	3,5 - 4,0	2,6 – 3,6 – 4,6 – 5,6	3,4 – 4,4 – 5,4 – 6,4
	+	-	3,4 – 4,4 – 5,4 – 6,4	5,5 – 6,5 – 7,5 – 8,5

6 Conclusies en aanbevelingen

De doelstelling van het project was om te bepalen in welke de mate ziekteverwekkende micro-organismen worden verwijderd in de onverzadigde zone en wat de invloed is van de dikte van de zone, van de regenintensiteit en van organische bestanddelen van fecaliën bestanddelen op de verwijdering van micro-organismen in deze zone.

Uit de resultaten van het onderzoek kunnen de volgende conclusies worden getrokken:

- De verwijdering van MS2 bacteriofagen en *E. coli* in een onverzadigde zone is hoger dan de verwijdering in een verzadigde zone met dezelfde dikte;
- De verwijdering neemt minder dan proportioneel toe met de diepte. Met de drie onderzochte diktes kan de verwijdering worden beschreven met een bifasische lineaire extrapolatie. Hierin treedt voor MS2 afvlakking van de verwijdering op na de eerste 1,0 m en voor *E. coli* was dat na de eerste 0,5 m;
- De effectiviteit van de onverzadigde zone is gecorreleerd met de dynamiek in het vochtgehalte in de onverzadigde zone. Deze is hoog bovenin en neemt snel af met de laagdikte. Op grond van de theoretische overwegingen kunnen verschillende hydrodynamische processen die toenemen bij lucht in de bodem de verwijdering van micro-organismen verhogen maar ook verlagen. Uit de resultaten van de proeven blijkt de aanwezigheid van lucht in de bodem te leiden tot meer verwijdering. Dit wordt ook gevonden bij vergelijkbare studies in de literatuur. De hechting aan de zand-water, lucht-water en lucht-water-zand grensvlakken speelt daarbij een belangrijke rol. Voor de bacteriofagen speelt een toenemende afsterving door interactie met lucht mogelijk ook een rol;
- De resultaten van de invloed van de regenintensiteit toonden meer verwijdering bij hogere regenintensiteit en stroomsnelheden. Dit resultaat was onverwacht en mogelijk verklaarbaar uit een grotere afsterving in de beregende suspensie. Deze hoge afsterving in het regenwater werd niet gevonden in de suspensies met een hoog organische stofgehalte. Het kwantitatieve effect van de verhoogde regenintensiteit op de verwijdering in de onverzadigde zone is daarom niet vast te stellen;
- Uit het experiment met de organische fecale matrix blijkt dat deze de verwijdering van beide micro-organismen versterkt. Dit resultaat komt niet overeen met de gegevens over de invloed van organische stof die in de literatuur worden gepresenteerd: minder verwijdering bij hogere organische stof gehalten. Vermoedelijke oorzaak hiervan ligt in de samenstelling van de organische stof. De literatuurstudies doseren organische humuszuren, terwijl in deze studie het water bij de dosering verrijkt is met organische bestanddelen uit een fecaliën. Onzeker is nog het lange termijn effect van organische stof op de verwijdering.

Ten aanzien van de vertaling van de resultaten naar veldcondities kan het volgende worden geconcludeerd:

- De hydrologische condities als vochtprofiel en zuigspanning van de drie onverzadigde kolommen met een lengte van 0,5, 1,0 en 1,5 m kwamen

- onderling goed overeen en waren eveneens vergelijkbaar met deze condities onder veldcondities afgeleid uit de retentiegegevens van de tracertesten;
- De verwijdering van deze micro-organismen bepaald in de kolommen was duidelijk hoger dan de verwijdering voor deze micro-organismen bepaald in de veldstudie. Op grond van een uitgebreide discussie is het temperatuurverschil tussen de kolomstudie en de veldstudie van 7°C als een belangrijke factor oorzaak van de verschil genoemd. De twee andere mogelijke verklaringen zijn (i) een grotere doorlatendheid van het pakket onder veldcondities door heterogeniteit en preferente stroombanen en (ii) een hogere pH bij de veldstudie. Bij de extrapolatie van de gegevens van dit onderzoek naar de praktijk kan met de factor temperatuur rekening worden gehouden. Omdat voor heterogeniteit en pH geen kwantitatieve relaties bekend zijn geldt dat voor deze factoren niet;
 - De resultaten kunnen door extrapolatie vertaald worden naar de verwijdering per diepte van de grondwaterstand voor vergelijkbare bodems berekend onder vergelijkbare condities. Vertaling naar andere bodems met andere bodemfysische eigenschappen is mogelijk m.b.v. de lineaire empirische correlatie tussen de dynamiek van het vochtgehalte in de bodem en de verwijdering van beide micro-organismen. De onzekerheid van deze benadering is (niet gekwantificeerd) groot gezien
 - o de lage doorbraak concentraties waarop de verwijdering bij de diepere grondwaterstanden zijn gebaseerd;
 - o het geringe aantal waarnemingen waarop de extrapolatie is gebaseerd;
 - o de grote onzekerheid van de relaties tussen de vochtdynamiek en temperatuur enerzijds en de verwijdering per laag anderzijds.
 - De gegevens van het huidige onderzoek naar de invloed van de dikte van de onverzadigde zone zijn gebruikt om de invloed van de bij Solleveld uitgevoerde verhoging van de onverzadigde zone naar minimaal 1,0 m (Bijlage I) te berekenen. Hieruit blijkt dat dit een aanzienlijke verhoging van de effectiviteit van de bodempassage oplevert.

De aanbevelingen voor verder onderzoek om de onzekerheid over de vertaling te verkleinen zijn om meer kwantitatieve gegevens te verzamelen over:

- de invloed van de vochtdynamiek op de verwijdering door kolomstudies onder verschillende regenregiems;
- de invloed van een lage temperatuur op de verwijdering in de onverzadigde zone;
- de invloed van een langdurige belasting met organische stof uit mest op de verwijdering.

7 Referenties

- Buishand, A. en Wijngaard, J.(2007) Statistiek van extreme neerslag voor korte neerslagduren Technical report ; TR – 295, KNMI De Bilt.
- Bradford, S.A. and S. Torkzaban (2008). Colloid transport and retention in unsaturated porous media: a review of interface-, collector- and pore-scale processes and models. *Vadose Zone j.* 7: 667-681
- Cai, J. (2013). Internship report, University of Stuttgart, Germany eds. Hijnen and Cirkel, KWR Watercycle Research Institute, Nieuwegein, the Netherlands.
- Crist, J. T., et al. (2004), Pore-scale visualization of colloid transport and retention in partly saturated porous media, *Vadose Zone J.*, 3, 444– 450.
- de Vries, H. (2013). Modeling water movement and transport of bacteriophage MS2 through an unsaturated sandy soil, BTO 2014.///, KWR Watercycle Research Institute, Nieuwegein, the Netherlands.
- Dullemont, Y. J., J. F. Schijven, et al. (2006). Removal of micro-organisms by slow sand filtration. Recent progress in slow sand and alternative biofiltration, Mullheim, Germany, IWA publishing, London, UK.
- Gao, B., T. S. Steenhuis, et al. (2008). "Capillary retention of colloids in unsaturated porous media." *Water Resour. Res.* W04504, 44, doi:10.1029/2006WR005332.
- Hijnen, W. A. M., A. J. Brouwer-Hanzens, et al. (2005). Transport of MS2 phage, *Escherichia coli*, *Clostridium perfringens*, *Cryptosporidium parvum* and *Giardia intestinalis* in a gravel and a sandy soil. *Environ. Sci. Technol.* 39: 7860-7868.
- Hijnen, W. A. M., A. J. Brouwer-Hanzens, et al. (2013). Uitspoeling van pathogene micro-organismen uit Galloway mest en menselijke diarree tijdens regenval, KWR 2014.024, KWR Watercycle Research Institute, Nieuwegein, the Netherlands.
- Hijnen, W. A. M., A. Brouwer-Hanzens, et al. (2007b). De afstervingsconstanten van *E. coli* en enterococci in zoet en zout oppervlaktewater bepaald onder verschillende condities, KWR 07.080, KWR Watercycle Research Institute, Nieuwegein, NL.
- Hijnen, W. A. M., M. Blokker, et al. (2012). Gezondheidsrisico's van fecale verontreiniging in waterwingebieden door begrazing en recreatie: ontwikkeling van een stochastisch model. BTO 2012.015. Nieuwegein, the Netherlands, BTO 2012.015, KWR.
- Hijnen, W. A. M., J. F. Schijven, et al. (2013). Procesmodel voor de eliminatiecapaciteit van langzame zandfiltratie voor virussen en bacteriën en de rol van predatie in de verwijdering van micro-organismen. BTO 2013.020, KWR Watercycle Research Institute, Nieuwegein, the Netherlands.

Hornstra, L. (2013). Virusverwijdering door bodemtransport onder suboxische condities, BTO 2013.001, KWR Watercycle Research Institute, Nieuwegein, the Netherlands.

Lance, J.C. and C.P. Gerba (1984). Virus movement in soil during saturated and unsaturated flow. *Appl. Environ. Microbiol.* 47: 335.

Lazouskaya, V. and Y. Jin (2008) Colloid retention at air-water interface in a capillary channel. *Colloids and surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, 325: 141-151.

Medema, G. J. and P. J. Stuyfzand (2002). Removal of micro-organisms upon basin recharge, deep well injection and river bank filtration in the Netherlands. 4th international symposium on artificial recharge, Adelaide, Australia, September 22-26.

Morales, V. L., B. Gao, et al. (2009). Grain Surface-roughness Effects on Colloids Retention in the Vadose zone. *Vadose zone J.* 8: 11-20.

Nobel, P. J., M. J. C. Van Baar, et al. (1999). Effecten van begrazing op waterkwaliteit Studie bij DZH, GWA en PWN. Nieuwegein, the Netherlands, KOA 98.204, Kiwa NV, Nieuwegein. KOA 98.204.

Nobel, P. J. and D. G. Cirkel (2005). Effecten van begrazing Solleveld op de microbiologische waterkwaliteit Nieuwegein, the Netherlands, BTO 2005.006, Kiwa Water Research, Nieuwegein. BTO 2005.006.

Pang, L. (2009). "Microbial removal rates in subsurface media estimated from published studies of field experiments and large intact soil cores." *J. Environ. Qual.* 38: 1531-1559.

Penders, E., H. van Lieverloo, M. Blokker en W. Hijnen (2015). DPW project Microbiologische risico's bij de winning van drinkwater na duininfiltratie. Hetwaterlaboratorium, HWL, Haarlem, NL.

Pluis, J.L.A. (1993) The role of algae in the spontaneous stabilization of blowouts. PhD thesis Universiteit van Amsterdam

Schijven, J. F., H. H. J. L. van den Berg, et al. (2013). "A mathematical model for removal of human pathogenic viruses and bacteria by slow sand filtration under variable operational conditions." *Water Res.* 47: 2592-2602.

Stakman, W.P. (1969) Relation between Particle Size, pore size and hydraulic Conductivity of sand sepaeates. *Proc. Wageningen Symp. "Water in Unsaturated Zone" Vol.1: 373-384*

Thompson, S. S. and M. V. Yates (1998). "Bacteriophage Inactivation at the Air-Water-Solid Interface in Dynamic Batch Systems." *App. Envrion. Microbiol.* 65(3): 1186-1190.

Van der Wielen, P. W. J. J., W. J. M. K. Senden, et al. (2008). De microbiologische veiligheid van de 60-dagenzone rond grondwaterwinningen, BTO 2008.004, KWR Watercycle Research Institute, Nieuwegein, the Netherlands.

Van Genuchten, M.T., 1980. A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Science Society of America Journal*, 44: 892-898.

Van Genuchten, M. Th., Leij, F. J. and Yates S. R. (1991) The RETC Code for Quantifying the Hydraulic Functions of Unsaturated Soils, Version 1.0. EPA Report 600/2-91/065, U.S. Salinity Laboratory, USDA, ARS, Riverside, California.

Walshe, G.E., L. Pang, M. Flury, M.E. Close and M. Flintoft (2010). Effect of pH, ionic strength, dissolved organic matter, and flow rate on the co-transport of MS2 bacteriophages with kaolinite in gravel aquifer. *Water Research*, 44: 1255-1269.

Wan, J. J.L. Wilson and Th. L. Kieft (1994). Influence of gas-water interface on transport of micro-organisms through unsaturated porous media. *Appl. Environ. Microbiol.* 60: 509.

Bijlage I Verslag van de BTO mini workshop 'Microbiologische risico's van een freatische (duin)waterwinning in combinatie met begrazing, recreatie en natuurlijke fauna'

Datum: 10 november 2014

Locatie: Waterbedrijf Dunea, Zoetermeer

Voorzitter: Hein de Jonge

Verslag: W.A. Oorthuizen en W.A.M. Hijnen

Probleemstelling en Dunea aanpak

Hein de Jonge (Dunea) leidt de workshop in door een globaal overzicht te geven van de ontwikkelingen in het denken over microbiologisch veilig drinkwater in Nederland en daarbij het belang van het specifieke onderwerp van deze middag voor Dunea te noemen: veilige duininfiltratie.

Hij geeft daarbij het stokje over aan Wim Oorthuizen (Dunea) die dieper in gaat op de resultaten van de Analyse Microbiologische Veiligheid drinkwater (AMVD) bij de duinwaterwinningen van Dunea. Hieruit blijkt dat het drinkwatersysteem op grond van de gegevens veilig is voor alle index pathogenen. Er wordt wel herbesmetting in het duin waargenomen en op basis van de eerste onverzadigde proef bij Solleveld is voor Meijndel een uitgebreid duinrenovatieplan opgesteld (PIM) om hier wat aan te doen. De uitvoering hiervan is op schema en gaat over aanpassingen rond winputten en herinrichtingen in het gebied. Dunea heeft recentelijk een aantal vragen opgesteld rondom dit project en de huidige stand van zaken m.b.t. de veiligheid. Een van de meest prangende vragen is of er na de volledige renovatie integrale begrazing in de gebieden kan worden toegestaan zonder risico's van herbesmetting.

Het verhaal over integrale begrazing wordt uiteengezet door Harrie van der Hagen (Dunea). Onbekend met de mogelijke gevolgen van besmetting is bij Dunea N.V. door het wegvallen van natuurlijke begrazers zoals konijnen, in 1990 gestart met vee begrazing met exclusie van de winningen. De wens is om in het kader van Natura 2000 er één integraal gebied van te maken met behoud van de duingraslanden met hoge diversiteit. Bij uitbreidingen van begrazing door vee zijn geen winseries opgenomen in het begraasde gebied, waardoor er meer scheidingen door waterwinning zijn ontstaan. Wanneer de winmiddelen niet begraasd mogen worden staat dat de wens tot integrale begrazing in de weg. De veiligheid wordt door het PIM project gebaseerd op 1 meter onverzadigde zone en er is nog steeds sprake van veel kilometers afrastering. Vanwege andere redenen wordt mogelijk niet overgegaan tot integrale begrazing, echter het begrazen van de sprongen met de winputten heeft financiële voordelen ten opzichte van het moeten maaien.

Pieter Dammers (Dunea) vertelt over het PIM project. Er is voor en na het project een inventarisatie gepleegd en er zijn functionele generieke eisen opgesteld voor integrale begrazing zonder afrastering. Het veiligheidsaspect recreatie/mens is aangepakt door

de inrichtingseis van vrij van begroeiing rond de winmiddelen. Er is een nieuwe putconstructie ontwikkeld met een aflopend talud en afstandseisen wat betreft dikte van de onverzadigde zone rond de put met als basis een eis van 1,0 m. Hiervoor is zandaanvulling toegepast voor het realiseren van voldoende afschot bij de putten.

De voorzitter stelt vervolgens de volgende stelling aan de orde met de vraag om voor/tegen te stemmen:

‘Integrale begrazing, recreatie en natuurlijke fauna in freatische (duin)waterwinningen levert géén risico voor de microbiologische veiligheid van het drinkwater’.

Stemming in de zaal: 19 mee eens en 20 mee oneens.

Onderzoeksvorderingen

In het vervolg van de workshop presenteerde Wim Hijnen (KWR) een overzicht van het onderzoek dat in BTO en DPW-verband en door individuele bedrijven na het veldonderzoek van Solleveld (2003) is uitgevoerd naar microbiologisch veilig duinwater. In BTO verband is een uitgebreid modelonderzoek gestart om de veiligheid stochastisch (met kansverdelingen) te beschrijven: meten van de relevante concentraties pathogenen in het duinwater is door de lage concentratie en detectiekans geen optie. Op basis van het conceptuele model zijn van de verschillende onderdelen van het model kwantitatieve literatuurgegevens verzameld en is in Matlab een eerste risicoschatting van een pilotgebied uitgevoerd. PWN heeft vervolgens met Viaeterna de modellering verder geoptimaliseerd en beter toepasbaar gemaakt voor de praktijk met een stochastische model in Excel. Ontbrekende kwantitatieve kennis over uitspoeling uit fecaliën, mestverspreiding in het veld en aanwezigheid van pathogenen in fecaliën van wilde fauna zijn in DPW-verband verzameld. Dit jaar is daar een nieuwe modellering en risicoschatting van hetzelfde pilot gebied verricht die eind dit jaar beschikbaar komt.

In BTO verband is verder gegaan met de kwantificering van de verwijdering in de onverzadigde zone waarbij de belangrijkste vraag was de invloed van de dikte van zone op de verwijdering: kan de verwijdering gemeten bij Solleveld in een pakket van 0,5 m lineair worden geëxtrapoleerd naar andere dieptes van de grondwaterstand. Wim Hijnen en Gijsbert Cirkel (KWR) presenteren de hydrologische en microbiologische resultaten van dit BTO onderzoek met een beregeningsopstelling en drie kolommen met verschillende lengte. Belangrijkste conclusie was dat lineaire extrapolatie niet kan. De verwijdering in het bovenste deel van de zone is door een sterke variatie in vochtgehalte hoog en neemt af met de diepte. Tevens bleek dat bij vertaling naar het Solleveld experiment in het veld de temperatuur waarschijnlijk de meest invloedrijke factor is bij het geconstateerde verschil in verwijdering (kolom > veld). Door de experimenten uit te voeren in aanwezigheid van een gefiltreerd extract van Galloway mest werd duidelijk dat onder deze conditie de verwijdering toeneemt. De resultaten zijn lineair geëxtrapoleerd naar onverzadigde zones van hetzelfde duinzand met variabele dikte bij verschillende temperaturen. Nadere onderbouwing van deze gegevens kan worden verkregen door de invloed van de temperatuur experimenteel te bepalen en de relatie met de vochtdynamiek verder te onderzoeken. Voor een modelmatige vertaling naar andere situaties kan het bestaande bodem transportmodel empirisch worden aangevuld met deze twee factoren.

Discussie: overzicht

In de discussie over de vraag of integrale begrazing/recreatie een aanvaardbaar risico vormt voor de kwaliteit van het duinwater werd ingegaan op het voorkomen van fecaliën in het veld en de afstand tot de winmiddelen. Dit blijkt in de verschillende

gebieden nogal variabel en er is geen eenduidig beeld van te krijgen. Belangrijk in relatie tot de seizoenen is het beeld van het voorkomen van besmettingen in relatie tot specifieke aspecten als grondwaterstanden, seizoenbegrazing en aanwezigheid van wilde fauna. Er bestaat een behoefte om de historische microbiologische meetgegevens over duinbesmettingen eens systematisch te evalueren om na te gaan hoe de metingen worden uitgevoerd in tijd en ruimte, met welke methoden en volumes, wat zegt het over de integriteit van (i) de bodem, (ii) de put en (iii) het watertransportsysteem naar de zuiveringen. Belangrijke vraag die met het gericht meten van fecale besmetting kan worden beantwoord, is welk van deze drie routes de belangrijkste is. Aangevuld met meer inzicht in de bronnen van fecale besmettingen (source tracking) en de microbiële ecologie van fecale indicatoren (*E. coli* en enterococci) in het milieu, worden de ontbrekende puzzelstukjes verzameld om antwoord te geven op de ultieme vraag of pathogenen in het duinwater voorkomen.

Voor Dunea is het belangrijk te weten, wat te doen met winningen die niet aangepast zijn aan de PIM uitgangspunten van 1,0 m verticaal en 1,5 m horizontaal uit de put. Wat moet de bedrijfsvoering van de duinwinning in de toekomst zijn? De vraag of duinfiltratie ooit besmettingsvrij gemaakt kan worden wordt gesteld. Gezien het open karakter van het systeem en de alom aanwezige fecale bronnen lijkt dat bij ondiepe winningen toch een utopie. Van belang is vast te stellen of er sprake is van een aanvaardbaar risico. Vitens heeft het beleid om recreatie met honden te weren in waterwingebieden. Dit levert aanzienlijk minder verontreiniging op aan maaiveld.

De stelling wordt opnieuw door Hein de Jonge ter stemming gebracht:

‘Integrale begrazing, recreatie en natuurlijke fauna in freatische (duin)waterwinningen levert géén risico voor de microbiologische veiligheid van het drinkwater’.

Stemming in de zaal: 18 mee eens en 19 mee oneens.

Conclusie: De BTO mini workshop heeft inclusief de discussie niet geleid tot een verschuiving in de aantallen.

Q&A: beknopte weergave van de details van de discussie

Q: Als integraal begrazen wordt geïntroduceerd, verspreiden de grote grazers zich dan ook over het volledige duingebied?

A: Er is een risico op clustering en dus concentratie van ontlasting, met dien verstande dat dit vooral op de plekken waar eiwitrijk voedsel is zal gebeuren. Dat zijn vooral de vochtige duinvalleien en niet de droge sprangen.

Q: Waarom worden in sommige sprangen de bomen nabij de winputten niet verwijderd? Dit levert toch door de wortelgroei extra risico op voor kortsluitstromen vanaf het maaiveld?

A; Die (oude) bomen / boomgroepen zijn beschermd: Natura 2000. Jong opschot wordt zoveel mogelijk voorkomen in de bodem van de sprang.

Q: PWN heeft onder het maaiveld - om kortsluitstroming directe onder de putkop te voorkomen - een groter 'kraag' dan Dunea met een diameter van zelfs ca 3 meter en geen begrazing bij de winputten.

A: Ook bij PWN is er sprake van 'herbesmetting'. Vooral enterococci maar ook coliformen worden bij GROVOL onderzoek teruggevonden in het gewonnen water. Hydrologisch lijkt een grotere beschermende 'kraag' om een winput geen voordeel te hebben voor de integriteit van de put door optreden van voorkeurstromingen.

Q: Een vacuüm win/transport systeem zoals bij Dunea wordt toepast, kan als een extra risico voor de microbiologische veiligheid worden beschouwd

A: De dreinerleidingen van het vacuümsysteem die tevens een transportfunctie hebben, liggen ca. 5 meter onder maaiveld. Ze liggen in het grondwater met daarboven voldoende onverzadigde zone. Wel is er een risico is dat de rivierwater aanvoerleiding soms dicht bij het vacuüm transportsysteem is aangelegd. Is historisch zo gegroeid. In dit kader wordt voorgesteld onderzoek te doen naar de waterkwaliteit in een vacuüm transportleiding: (1) met veel lekkages en (2) met weinig/geen lekkage om te zien of lekkage een risico is. Misschien ligt hier het grootste risico waar de putten zijn vernieuwd.

Q: Zijn de resultaten van het hier gepresenteerde BTO onderzoek vertaalbaar naar een grondwater situatie?

A: Is zeker vertaalbaar naar grondwater situaties met arme zandgronden

Q: In welke mate zijn uitdrogende bodems met preferente 'snelwegen' inclusief wortelgroei een risico voor herbesmetting?

A: Kan (nog) geen gekwantificeerd antwoord op gegeven worden, maar kan een zeer belangrijk aspect zijn. Bij de modellering is hier geen rekening mee gehouden.

Q: Is het Dunea ontwerpcriterium van 1 meter onverzadigde zone op 1,5 m afstand van de put nu goed of niet goed?

A: Een onverzadigde zone zonder preferente stroombanen van $\geq 1,0$ m op 1,5 m afstand van de put is op grond van de resultaten een effectieve barrière voor micro-organismen uit fecaliën. De bijdragen van heterogeniteit en 'snelwegen' aan het transport van micro-organismen naar het grondwater, winput en/of lekkende transportleidingen blijft een moeilijk te kwantificeren aspect. Er zijn nog twee andere aspecten die hierbij van belang zijn: mestverspreiding en variatie in grondwaterstanden.

- Grazers willen niet graag in een kale (weinig voedingsstoffen) en laag liggende sprang met winningen gaan grazen/licgen. De hoogste mestconcentraties worden gevonden waar de grote grazers rusten voor het herkauwen/slapen. De plek waar dat is hangt sterk van het seizoen af. In de winter is begrazen risicovoller door de lagere temperatuur (minder verwijdering in de bodem).

- In een natte zomer met hogere grondwaterstanden en dus dunnere onverzadigde zones kunnen de transportwegen (tijdelijk) korter zijn.

Nog onzekerheden dus

Deze onzekerheid kan mogelijk worden weggenomen door een optimaler meetnet: bepaal directer en beter wat het effect is van bepaalde beheersmaatregelen in het duin. Met modelleren kun je inzichten krijgen maar niet in alles: daarmee zal je de onzekerheden kunnen aangeven maar niet wegnemen!

Er wordt een voorstel gedaan voor begrazingspilot bij Dunea: bepalen microbiologische waterkwaliteit in twee separate delen van het winsysteem waar (1) wél en waar (2) niet wordt begraasd. Er zal goed over nagedacht moeten worden over de opzet van een dergelijk project: grootte van beide gebieden, nulsituatie en bemeting ...

Q: Welk risico introduceren we als drinkwaterbedrijf zelf door menselijk handelen bij en in een winput?

A: Is gering: Immers elke put wordt slechts 1x/5 jaar geopend.

Q: Welke parameter is het best geschikt om een besmetting vast te stellen?

A: Discussie over pathogene, index- en indicator organismen. Coliformen/E-coli's en Enterococci zijn het beste wat we nu hebben. Met MALDI-TOF en moleculaire source-tracking kunnen we nu wel steeds beter de bron achterhalen.

Q: Wat is nu eigenlijk het nut van integraal begrazen: wat levert het op?

A: Er liggen afspraken die vooral de verbetering van de kwantiteit en kwaliteit van de duingraslanden betreft. Het konijn deed dat beheer en is door twee virusziekten tot 95% afgenomen en heel langzaam weer klimmende in delen van het terrein. Vee vervangt voor een deel de activiteiten van het konijn. Dus betere kwaliteit natuur: Natura 2000. Is het konijn weer op sterkte gaat het vee eruit.

Wat doen we nu met de andere 'oude' winningen dan die (PIM) worden gerenoveerd? Hoe kunnen we die nu het beste bedrijven om microbiologische risico's te vermijden? Is nu onduidelijk.

Wat levert eigenlijk een groter risico op: een mierennest of grote grazers?

Q: Kunnen we de duinpassage met alle uitgevoerde maatregelen en op termijn beschouwen als een volledig integer systeem?

A: Compleet integer krijg je zo'n complex open systeem met allerlei milieu invloeden nooit!

Je ziet bij Dunea een seizoensinvloed: In het voorjaar en zomer zien we meer coliformen, en enterococci voorkomen in GROVOL analyses dan in de winter.

Bij de niet gerenoveerde winningen zien we in het voorjaar en in de zomer bij hevige buien nog wel eens water op het maaiveld. Dat levert dan dus door afwezigheid van een onverzadigde zone i.c.m. mogelijke kortsluitstromingen herbesmetting op.

Vitens heeft het beleid om recreatie met honden te weren in waterwingebieden. Dit levert aanzienlijk minder verontreiniging op aan maaiveld.

Q: Het BTO onderzoek in het KWR lab is zonder vegetatielaag uitgevoerd: heeft dat invloed op de resultaten?

A: Uit de kolomproeven met een vegetatielaag bij dezelfde temperatuur zijn dezelfde verwijderingsgegevens gehaald als zonder deze laag. De rol van vegetatie op bodemtransport is niet geheel bekend.

Open gelaten vragen:

Q: Als het PIM project in Meijndel gereed is, dan levert begrazing geen onaanvaardbaar risico op. Niet iedereen onderschrijft dit zo blijkt uit de discussie.

Q: Weten we nu eigenlijk wel/niet of begrazing een probleem is t.o.v. de andere routes van herbesmetting?