

KWR 2024.009 | Maart 2024

# **Verstopping van een winput bij de injectie van een actief koolsuspensie op PS Grubbenvorst**

**Evaluatie van de veldproef, regeneratie  
en kolomexperimenten**





## Samenwerkingspartners



**KWR**



# Colofon

## Verstopping van een winput bij de injectie van een actief koolsuspensie op PS Grubbenvorst: Evaluatie van de veldproef, regeneratie en kolomexperimenten

**KWR 2024.009 Maart 2024**

### Opdrachtnummer

403876

### Projectmanager

Johan van Leeuwen, PhD

### Opdrachtgever

WML

### Auteur(s)

Alex Hockin MSc, Gilian Schout, PhD, Niels Hartog, PhD

### Kwaliteitsborger(s)

Niels Hartog, PhD

### Verzonden naar

Birgitta Putters, Weren de Vet (WML)

Deze activiteit is mede gefinancierd met PPS-financiering uit de Toeslag voor Topconsortia voor Kennis en Innovatie (TKI's) van het Ministerie van Economische Zaken en Klimaat en de resultaten zijn openbaar.

Werkwijzen, rekenmodellen, technieken, ontwerpen van proefinstallaties, prototypen en door KWR gedane voorstellen en ideeën alsmede instrumenten, waaronder software, die in het onderzoeksresultaat zijn opgenomen, zijn en blijven het eigendom van KWR. Ook alle rechten die voortvloeien uit intellectuele- en industriële eigendom, alsmede de auteursrechten, blijven bij KWR berusten en derhalve eigendom van KWR.

### Keywords

Ondergronds zuiveren, actief kool, kolomexperimenten, veldproef, putverstopping

[Jaar van publicatie](#)  
2024

[Meer informatie](#)  
Alex Hockin  
T 06-15608101  
E alex.hockin@kwrwater.nl

PO Box 1072  
3430 BB Nieuwegein  
The Netherlands

T +31 (0)30 60 69 511  
E info@kwrwater.nl  
I www.kwrwater.nl

**KWR**

Maart 2024 ©

Alle rechten voorbehouden aan KWR. Niets uit deze uitgave mag - zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van KWR - 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.





# Samenvatting

## Achtergrond

In oktober 2021 is een veldproef uitgevoerd waarbij een actief koolsuspensie in een grondwaterput van WML bij Grubbenvorst is geïnjecteerd. Dit met het doel een reactieve zone rond de put te creëren waar ondergrondse zuivering kan plaatsvinden. Vooraf was het doel van de proef om 8000 kg kool met een concentratie van 0,5 g/L te injecteren in een straal van 25 m rond de put. Tijdens de injectie nam de injectiedruk echter snel toe en moest de proef stopgezet worden. Tot op dat punt was tussen de 1000-1800 kg kool geïnjecteerd met een gemiddelde concentratie tussen 0,6 en 1,1 g kool/l. Door middel van een boring na afloop van de proef is aangetoond dat het kool hierbij in ieder geval tot 4,4 meter van PP08 in de formatie is doorgedrongen. Om de put te regenereren is op basis van een aantal batchexperimenten gekozen voor chemische reiniging met waterstofperoxide en zoutzuur (HCl). In juli en augustus van 2022 is de put succesvol geregenereerd, waarbij het specifiek debiet hersteld is tot dat van voor de veldproef en ongeveer 60-70% van het specifieke debiet bij oplevering van de put in 1969.

## Methoden

Om de procedure voor actief koolinjectie in grondwaterputten voor de toekomst te verbeteren zijn vervolgens een vijftal kolomexperimenten uitgevoerd. Het doel van deze experimenten was om, in combinatie met de analyse van de injectie en regeneratie in het veld, verschillende hypothesen te toetsen over de factoren die de mate van putverstopping het sterkst beïnvloed hebben en waar deze verstopping primair moet zijn opgetreden. Bij deze experimenten is gewerkt met hetzelfde actief koolpoeder als in het veld (Cabot SA UF,  $d_{50} = 3.7 \mu\text{m}$  en  $d_{90} = 9.45 \mu\text{m}$ ) en met zowel kolommen gevuld met een middelgrof zandmengsel ( $d_{50}$  van 0,4 mm), analoog aan het minder doorlatende maar dikke bovenste deel van de aquifer in Grubbenvorst, en een fijn grindmengsel ( $d_{50}$  van 2,9 mm), analoog aan het zeer goed doorlatende maar dunne onderste deel van de aquifer. Ook zijn stroomsnelheden en koolconcentraties toegepast die vergelijkbaar zijn met die van de veldproef, en enkele variaties daarop.

Bij de experimenten is de afname in doorlatendheid bepaald aan de hand van de continue gemeten druk bij de inlaat. Ook is de massabalans van het kool bepaald aan de hand van frequente concentratiemetingen van het influent en effluent (en teruggespoelde water), zodat inzicht kon worden verkregen in het deel van geïnjecteerde kool dat immobiliseerde in de kolom en het deel dat er doorheen stroomde. Extra inzicht in het transportgedrag van actief kooldeeltjes is verkregen door time-lapse fotos van de kolomopstelling tijdens de experimenten te maken en na afloop van de experimenten autopsie op de kolommen te plegen, zodat ook het transport van het kool in het binnenste deel van de kolommen bekeken kon worden.

## Resultaten

De resultaten van het onderzoek wijzen uit dat de verstopping die optrad bij de veldproef hoogstwaarschijnlijk is veroorzaakt door blokkades van de poriënruimten door een fractie te grote kooldeeltjes (ofwel 'straining') in het zandige deel van de formatie, op en nabij bij het grensvlak met de boorgatwand. Dit blijkt onder meer uit de geringe afname in doorlatendheid na injectie van ruim 288 g actief kool in de grindkolom (0,03% per gram kool) terwijl deze afname na injectie van slechts 24 g actief kool in de in de zandkolommen zeer substantieel was (2,5% en 1,4% per gram kool). Het significante effect van de kleine fractie te grote kooldeeltjes blijkt ook uit de analyse van de putregeneratie in het veld. Juist bij de chemische reinigingsstappen werden de grootste deeltjes versterkt gemobiliseerd en werd ook veruit het grootste effect op het herstel van de putcapaciteit behaald.

Bij de experimenten in de met fijn grind gevulde kolom waren perioden van geleidelijk drukopbouw en doorlatendheidsafname te zien, gevolgd door plotse drukval en herstel van de doorlatendheid. Dit patroon wordt vermoedelijk veroorzaakt door brugvorming en coagulatie van deeltjes in het poreuze medium, wat dus vooral een rol zal spelen wanneer de verhouding tussen de korrelgrootte van de getransporteerde deeltjes en het poreus

medium groter wordt (ofwel als straining minder belangrijk wordt). De oorzaak van het herstel van de doorlatendheid is dat de gevormde deeltjesbruggen en geocoaguleerde deeltjes zich kunnen herschikken of ook weer uit elkaar kunnen vallen als gevolg van de toename van de druk of veranderingen en onderbrekingen in de stroomsnelheid.

Naast de verhouding tussen de grootte van de kooldeeltjes en die van de poriën in het sediment blijkt uit de experimenten dat ook de injectieconcentratie een belangrijke invloed heeft op het transportgedrag. Zo werd bij experiment 1 (zandkolom, 5,9 g/l) een veel hogere concentratie toegepast dan bij experiment 5 (aanvankelijk 1,2 g/L en daarna 0,36 g/L). De lagere concentratie bij experiment 5 leidde tot een veel gelijkmatiger indringend koolfront en een veel hogere door kool bezette volumefractie van de porieruimte. Hierdoor drong het kool uiteindelijk ook veel minder ver de kolom in (max 21 cm t.o.v. max 87 cm), ondanks dat de doorlatendheidsafname per gram kool vergelijkbaar was.

### Vooruitblik

Om de mate van verstopping bij een toekomstige poging tot koolinjectie in dezelfde put (of andere grondwaterputten in soortgelijke grondlagen) substantieel te verminderen is dus een actief koolpoeder nodig met een kleinere gemiddelde korrelgrootte, zodat er geen te grote deeltjes in zitten of waar de fractie te grote kooldeeltjes er vooraf uit is gefiltreerd. Initiële pogingen tot dergelijke filtratie van te grote deeltjes binnen dit onderzoek waren niet erg efficiënt en effectief, waardoor dit geen overtuigend verminderde mate van verstopping tot gevolg had. Op basis van de resultaten lijkt ondergronds zuiveren met het hier gebruikte actief koolpoeder wel goed toepasbaar bij grondwaterputten die voornamelijk onttrekken uit grindige formaties, vergelijkbaar aan dat in de onderste paar meter van het putfilter van PP08 (fijn grind,  $d_{50} = 0,4$  mm). Gezien de onzekerheden in dit onderzoek verdient het echter de aanbeveling om voorafgaand of parallel aan een nieuwe veldproef ook nog een aantal additionele kolomexperimenten uit te voeren, idealiter met een koolpoeder waar de grote fractie deeltjes afwezig is of er vooraf uit is gefilterd.

# Inhoud

<b>Samenwerkingspartners</b>	<b>2</b>
<b>Colofon</b>	<b>3</b>
<b>Samenvatting</b>	<b>5</b>
<b>Inhoud</b>	<b>7</b>
<b>1    <b>Introductie</b></b>	<b>9</b>
1.1    Leeswijzer	9
<b>2    <b>Veldproef injectie actief koalsuspensie</b></b>	<b>10</b>
2.1    Veldproef opzet	10
2.1.1    Bodemopbouw en putafwerking	10
2.1.2    Injectie van actief kool suspensie en putverstopping	10
2.1.3    Verspreiding van het actief kool in het watervoerend pakket	12
2.2    Regeneratie van PPO8	13
2.2.1    Batchexperimenten ten behoeve van bepaling regeneratiemethode	13
2.2.2    Verslag en analyse uitgevoerde regeneratie activiteiten	14
2.3    Experimenten met meeloop-kolommen	20
2.4    Conclusies veldproef en regeneratie	22
<b>3    <b>Onderbouwing methodiek kolom experimenten</b></b>	<b>23</b>
3.1    Onderzoeksvragen	23
3.2    Opzet en uitvoering kolomexperimenten	23
3.2.1    Kolomopstelling	23
3.2.2    Bereiding gebruikte filterzandmengsels voor aanvullen kolommen	24
3.2.3    Aanvulmethode kolommen	25
3.2.4    Uitvoeren tracertest voor bepaling doorlatendheid kolommen	25
3.2.5    De injectiviteits-experimenten	26
3.2.6    Experimentele procedure, monitoring en verwerking uitkomsten	26
3.2.7    Vooraf filteren van de actiefkoalsuspensies	27
<b>4    <b>Resultaten kolomexperimenten</b></b>	<b>29</b>
4.1    Concentratiemetingen via troebelheid vs. gewogen massa	29
4.2    Vooraf filtreren koalsuspensie	29
4.3    Kolomexperimenten	31
4.3.1    Experiment 1: Medium zandmengsel	32



4.3.2	Experiment 2: Fijn grindmengsel	34
4.3.3	Experiment 3: Fijn grindmengsel, 0,5 x stroomsnelheid	35
4.3.4	Experiment 4: Fijn grindmengsel, 2 x stroomsnelheid	36
4.3.5	Resultaten van opeenvolgende injecties experimenten 2, 3 en 4	36
4.3.6	Experiment 5: Gefiltreerd actief kool (medium zandmengsel)	37
<b>5</b>	<b>Discussie</b>	<b>41</b>
5.1	Bepalende factoren doorlatendheidsreductie bij actiefkoolinjectie	41
5.1.1	Verhouding korrelgrootte sediment en actief kool	41
5.1.2	Blokkade door coagulatie en brugvorming van kooldeeltjes	43
5.1.3	Effect van filtratie koalsuspensie en suspensieconcentratie op verstopping	44
5.1.4	Effect van de injectiesnelheid	44
5.2	Ruimtelijke verspreiding van actief kool	45
5.3	Mate van immobilisatie actief kool in poreus medium	46
5.4	Belangrijkste lessen voor toepassing in de praktijk	47
<b>6</b>	<b>Conclusies</b>	<b>49</b>
	<b>Referenties</b>	<b>51</b>
<b>I</b>	<b>Data veldmetingen putregeneratie</b>	<b>52</b>
<b>II</b>	<b>Deeltjesteller metingen bij regeneratie</b>	<b>53</b>
<b>III</b>	<b>Gehanteerde aanvulmethode kolomexperimenten</b>	<b>54</b>
<b>IV</b>	<b>Eigenschappen kolom</b>	<b>56</b>
<b>V</b>	<b>Batchexperimenten suspenderen van actief kool</b>	<b>57</b>

# 1 Introductie

Organische microverontreinigingen (OMVs), zoals bestrijdingsmiddelen en geneesmiddelen, komen in steeds meer grondwaterbronnen voor. Dit levert een direct probleem voor de drinkwaterproductie. In de huidige praktijk worden deze stoffen bovengronds verwijderd, veelal door inzet van actief kool filters. Ondergrondse verwijdering van dit type verontreinig wordt echter ook onderzocht als mogelijkheid. Hierbij wordt bijvoorbeeld gekeken naar het injecteren van een actieve kool (AC) suspensie in een winput, om zo een reactieve zone in de ondergrond te creëren. Vanwege de langere contacttijden in de ondergrond dan bij bovengrondse zuivering kan ondergrondse zuivering vóór winning in theorie een effectieve en goedkope zuiveringsmethode zijn (Hartog et al., 2018). Bijkomend voordeel is dat de zuivering eenvoudig gericht kan worden toegepast op die winputten waar de concentraties OMVs het grootste probleem vormen.

In dit project is deze techniek nu voor het eerst in de praktijk getoetst bij een grondwaterwinning voor drinkwaterproductie van WML (Grubbenvorst). Als testput voor de veldproef is de put met de hoogste concentraties OMVs gekozen (PP08). In oktober 2021 is tijdens deze praktijktest zeker 1000 kg actief poederkool geïnjecteerd. Tijdens de proef werd echter een sterk toelopende weerstand in de put waargenomen door vermeende putverstopping en is de proef gestaakt.

Om de precieze oorzaak van de verstopping te kunnen achterhalen en uiteindelijk de koolinjectiemethodiek te kunnen verbeteren is vervolgens veldonderzoek uitgevoerd. Daartoe zijn eerst waarnemingsfilters rond de put geboord om te bepalen tot waar en in welke mate het actief kool in de formatie was doorgedrongen. Daarna is in juli en augustus van 2022 een regeneratie van de put uitgevoerd door VOF van Emmen waarbij ook uitvoerig metingen zijn uitgevoerd van het ‘teruggewonnen’ kool.. De putcapaciteit van PP08 is daarbij hersteld naar het niveau van voor de koolinjectie.

In aanvulling op de veldmetingen en inzichten uit de putregeneratie zijn een serie kolomexperimenten uitgevoerd waarbij de omstandigheden van de veldproef in het lab konden zo goed als mogelijk zijn nagebootst. Daarbij zijn variaties toegepast in bijvoorbeeld de koolconcentratie, korrelgrootteverdeling van het kool en de stroomsnelheid om het belang van deze verschillende mogelijke oorzaken van de verstopping te kunnen onderscheiden.

In dit rapport zijn al de hierboven genoemde activiteiten beschreven en geanalyseerd, om uiteindelijk tot conclusies te komen over de specifieke oorzaak van de verstopping die bij de veldproef optrad en mogelijkheden om deze bij een toekomstige injectie te voorkomen.

## 1.1 Leeswijzer

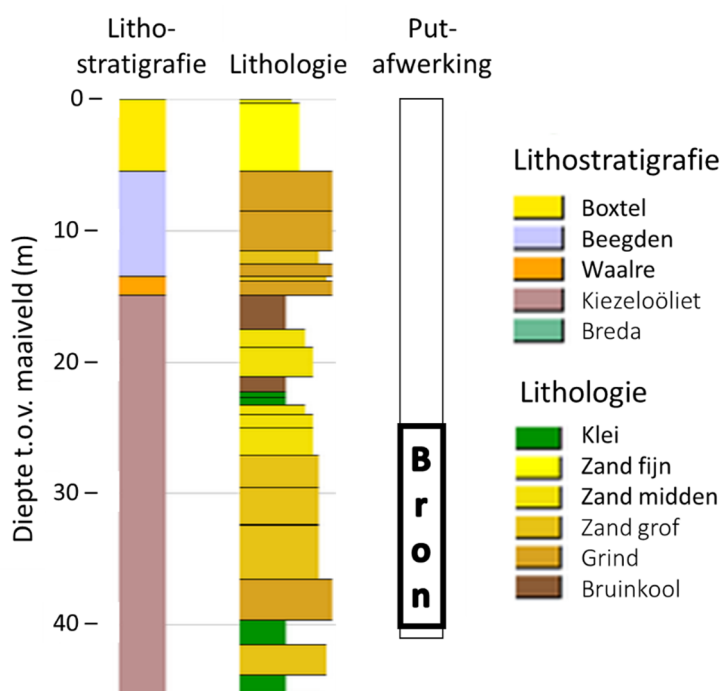
De veldproef met de injectie van de actief koelsuspensie in en de verstopping en regeneratie van winput PP08 op Grubbenvorst worden beschreven in hoofdstuk 2. De opzet van de vijf kolomexperimenten die vervolgens zijn uitgevoerd om verschillende mogelijke oorzaken voor de verstopping te testen zijn beschreven in hoofdstuk 3. De resultaten van de kolomexperimenten worden beschreven in hoofdstuk 4. In hoofdstuk 5 (discussie) worden alle resultaten en inzichten te samen beschouwd, om te komen tot een hypothese voor de meest waarschijnlijke oorzaak van de verstopping, en hoe dit te voorkomen bij toekomstige injecties van actief koelsuspensies. De belangrijkste conclusies van het onderzoek worden gepresenteerd in hoofdstuk 6.

## 2 Veldproef injectie actief koolsuspensie

### 2.1 Veldproef opzet

#### 2.1.1 Bodemopbouw en putafwerking

De veldproef met de injectie van een actief kool suspensie is ontworpen en uitgevoerd door WML in Oktober van 2021 in pompput 8 (PP08) van hun grondwaterwinning Grubbenvorst. Deze put is opgeleverd in 1969 en heeft een filterstelling van 27,63 tot 42,08 meter onder maaiveld. De diameter van het filter is 0,231 m en dat van het boorgat is 0,5 meter. Het filter bevindt zich in een overwegend grofzandige laag behorend aan de Kiezeloöliet Formatie en is gesitueerd tussen twee kleilagen. Boven de bovenliggende kleilaag zijn ook bruinkoolhoudende lagen aangetroffen. In het filtertraject zelf neemt de korrelgrootte toe met de diepte. De onderste ~2 a 3 meter bestaan overwegend uit grind (Figuur 2-1). Het is aannemelijk dat er door dit contrast in korrelgrootte in de diepte van het filterbereik ook een sterk contrast in doorlatendheid is, waarbij het diep gelegen grindige interval vermoedelijk een aanzienlijk hogere doorlatendheid heeft. Dit komt ook naar voren uit flowmetingen van de winputten bij Grubbenvorst.



Figuur 2-1: Bodemopbouw en filterstelling bij PP08.

#### 2.1.2 Injectie van actief kool suspensie en putverstopping

Enkele dagen voorafgaand aan de injectie van de actief kool is drinkwater geïnjecteerd (50 a 75 m<sup>3</sup>) met een debiet van 120 m<sup>3</sup>/uur om de injectiecapaciteit van de put voorafgaand aan het experiment te toetsen, en de opstelling voor de koolinjectie te toetsen. Vlak voor de start van de koolinjectie is nogmaals drinkwater geïnjecteerd, het maximale debiet was toen slechts ~90 m<sup>3</sup>/uur. De reden voor deze verlaging is onbekend.

Bij aanvang van de veldproef (Figuur 2-2) was gepland om 8.000 kg kool te injecteren in een suspensie met een massaverhouding van 0,05%. In de door Logisticon ontworpen opstelling (Figuur 2-3) werd in een eerste stap het koolpoeder in een mengvat gemengd tot een stockoplossing met een massaverhouding van 10%. Deze suspensie



werd in een volgende stap in-line gesonificeerd met een sonificator (Hielscher, Germany) met een vermogen van 2 kW en daarna verdund tot de beoogde concentratie van 0,5 g/l of 0,05%. Doel van de sonificatie was het dispergeren van de kooldeeltjes voorafgaand aan injectie in PP08.

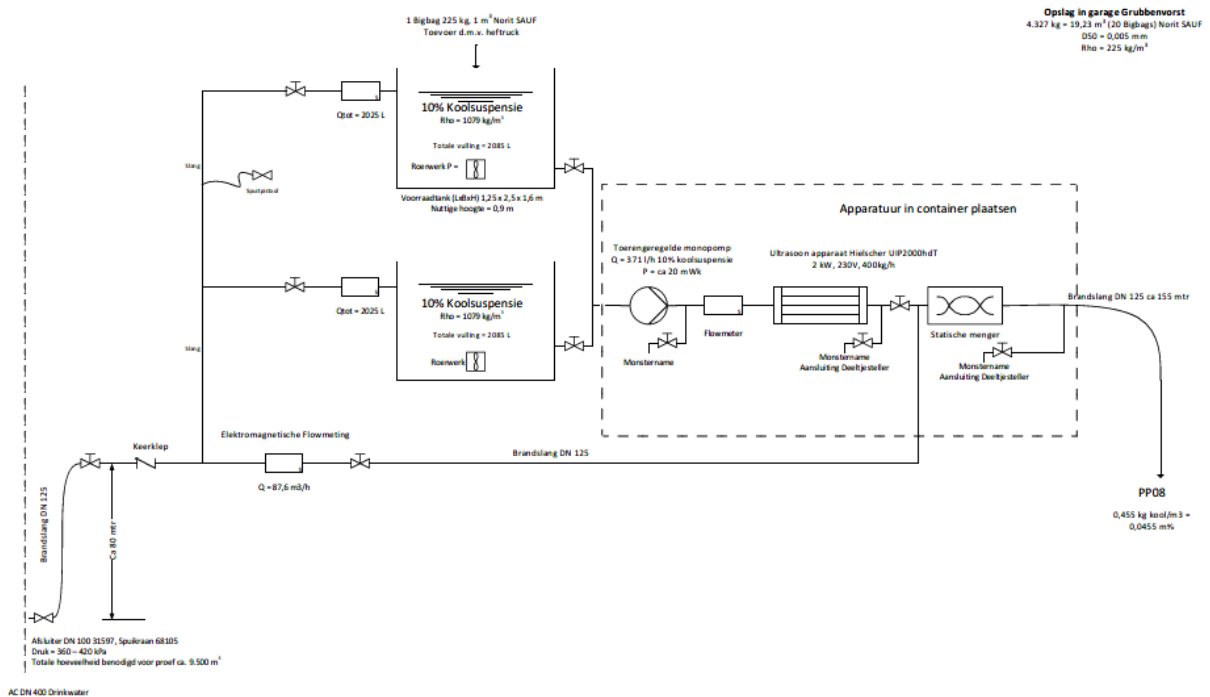
Er is onzekerheid over de precieze massa kool en de concentratie van de suspensie welke uiteindelijk daadwerkelijk de formatie in zijn gegaan. Vast staat dat ten minste 4 big bags actief kool van 250 kg per stuk zijn gebruikt, ofwel minimaal 1000 kg. De berekende hoeveelheid die tijdens de veldproef geregistreerd is door WML op basis van het volume verpompte stockoplossing ligt echter hoger (1739 kg). In totaal is er tijdens de dosering van actief kool 1633 m<sup>3</sup> water geïnjecteerd, wat een minimale gemiddeld geïnjecteerde concentratie geeft van 0,61 g/l (0,06%, 1000 kg / 1633 m<sup>3</sup>). Dit komt goed overeen met de vooraf in het ontwerp beoogde concentratie van 0,5 g/l. Uitgaande van de hoeveel verpompte stockoplossing levert dit een hogere gemiddelde concentratie van 1,06 g/l (0,1% , 1739 kg / 1633 m<sup>3</sup>).

De concentratie heeft tijdens de proef echter gevarieerd. Al kort na de start van de proef bleek dat de frequentie-geregelde substraatpomp te warm werd door het knijpen van het debiet waarna besloten is de dosering van kool naar de injectieleiding te verhogen. Bij een door KWR uitgevoerde veldmeting werd bijvoorbeeld een concentratie van 2,25 g/l (0,23%) geregistreerd. Samenvattend is de beste schatting dat geïnjecteerd is met een gemiddelde concentratie van tussen de 0,06 en 0,1%, maar tijdelijke uitschieters in concentratie tot zeker 0,23% hebben dus ook opgetreden.

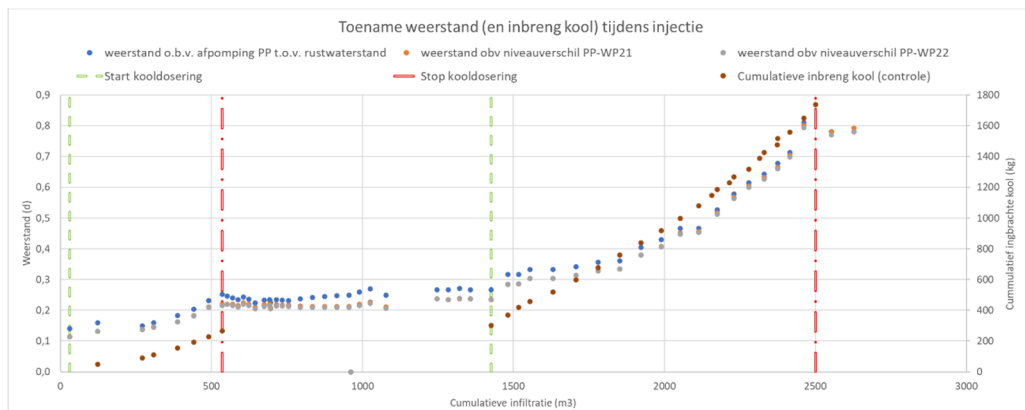
Tijdens de injectie liep de weerstand in de put snel op. Toen deze was toegenomen tot 0,8 dagen is de injectie stopgezet (Figuur 2-4). Het specifiek debiet bij infiltratie was bij aanvang van de injectie 13 m<sup>3</sup>/m/u. Aan het eind van de proef was dit nog 3,5 m<sup>3</sup>/m/u, een afname van ruim 75%.



Figuur 2-2 Vier foto's van de veldopstelling voor het injecteren van de actief koalsuspensie



Figuur 2-3: Installatie stroomschema ontworpen en uitgevoerd door Logisticon Groot-Ammers



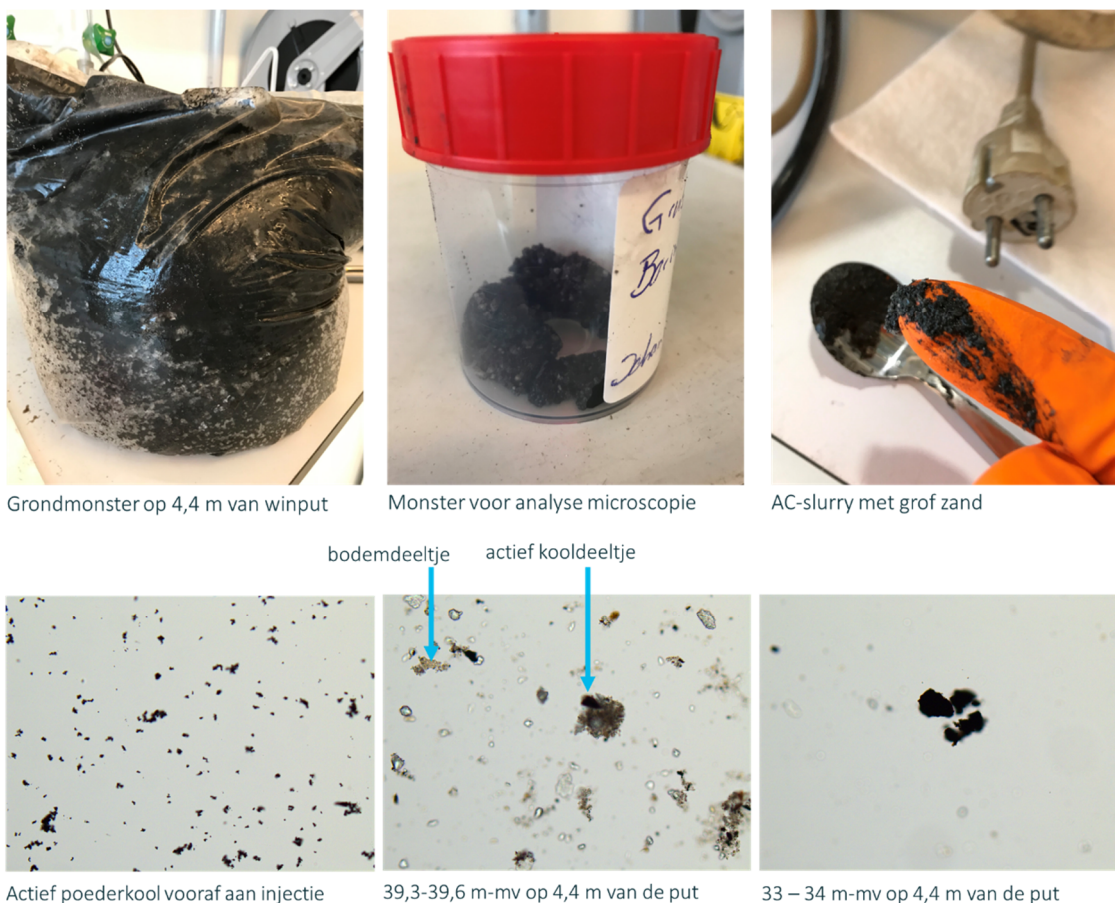
Figuur 2-4. Toename weerstand in de put tijdens injectie van reinwater en reinwater plus actief kool, bron: WML

### 2.1.3 Verspreiding van het actief kool in het watervoerend pakket

Na afloop van de injectie is grondwater bemonsterd uit 3 monitoringsputten gelegen op 2,2, 3,5 en 4,4 m afstand van de injectieput. Elk van deze putten is afgewerkt met drie peilbuizen met filterstellingen bovenin, middenin en onderin de aquifer. Het hieruit bemonsterde water is over een filtermembraam gehaald om te kijken of er actief kooldeeltjes aanwezig waren in de waterfase. Daarbij is alleen duidelijk kool aangetroffen in het diepste filter (gelegen in het onderste meer doorlatende deel van de aquifer) van de meest dichtbij zijnde monitoringsput op 2,2 m afstand van de injectieput, waar het gebruikte filtermembraam zwart kleurde.

De monitoringsput op 4,4 m afstand van de proefput is geboord na de injectieproef. In monsters van het bij deze boring bemonsterde sediment was duidelijk kool zichtbaar (Figuur 2-5, boven). Deze monsters waren afkomstig van 33-34 m-mv en 27-28 m-mv, wat aantoont dat het kool in ieder geval tot deze afstand in het zandige deel van de aquifer was binnengedrongen, ondanks dat dit niet visueel waarneembaar was in de grondwatermonsters uit deze put. De aanwezigheid van de kooldeeltjes in de bodemonsters is verder bevestigd door analyse van de monsters onder de microscoop (Figuur 2-5, onder).

Zoals omschreven in sectie 2.1.1 vertoont de doorlatendheid waarschijnlijk een grote variabiliteit over het bereik van het putfilter. In het diepe, grindige interval zal de stroomsnelheid daarom in de praktijk stukken hoger zijn geweest dan in het bovenste, minder doorlatende deel van het filterbereik. Ook de verstopping zal de stroomsnelheid hebben beïnvloed; langzamer waar de verstopping plaatsvond en sneller waar de verstopping (minder) optrad.



Figuur 2-5. Foto's van bodemonsters genomen rond PP08 na de koolinjectie (boven) en de weergave van deze monsters onder de microscoop (onder).

## 2.2 Regeneratie van PP08

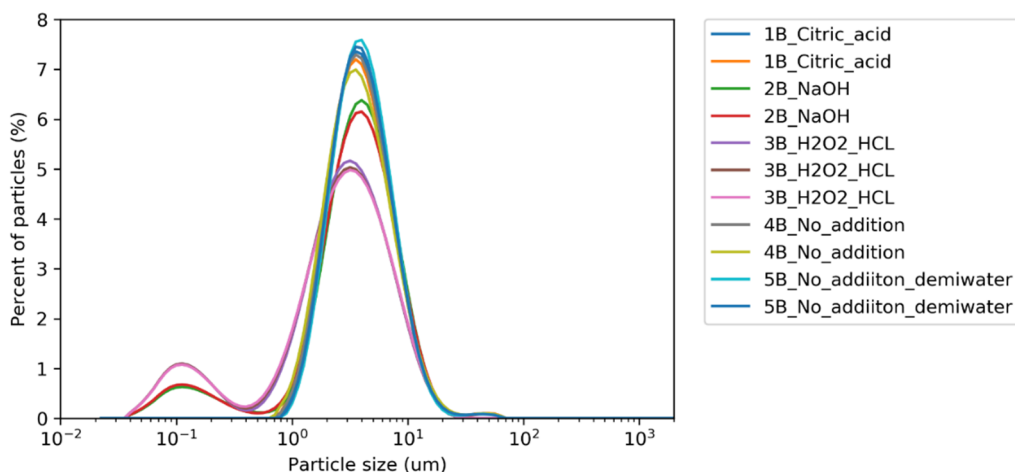
### 2.2.1 Batchexperimenten ten behoeve van bepaling regeneratiemethode

Om PP08 weer effectief in te kunnen zetten als productieput, en om mogelijke een nieuwe koolinjectie proef te kunnen doen in deze put, was regeneratie nodig. Een aantal verschillende bestaande regeneratie technieken behoorden tot de mogelijkheden, waaronder jutteren (geen chemische behandeling), injectie met zuur, loog of aangezuurde waterstofperoxide. Onbekend waren de effecten van deze regeneratie technieken op potentiële coagulatie of decoagulatie en daarmee mogelijke mobilisatie van actief kool deeltjes. Dit was vooraf ingeschat als een belangrijk onderdeel voor het slagen van de putregeneratie.

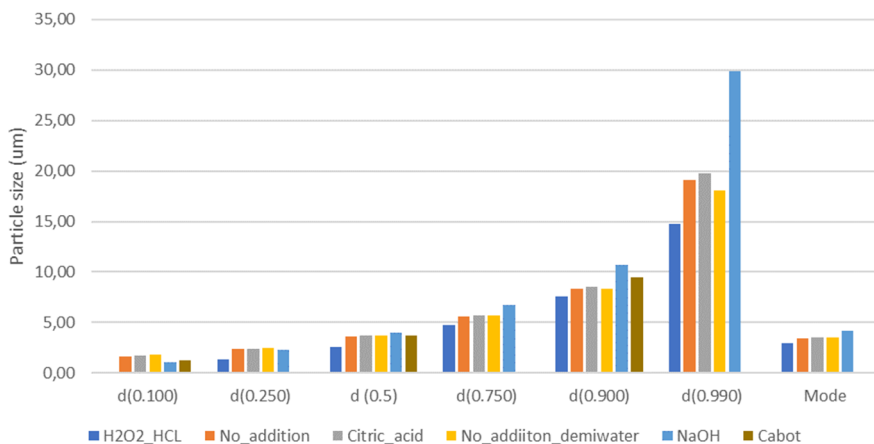
Om die reden zijn een aantal experimenten uitgevoerd waarbij batches met dezelfde actief kool dat bij de putinjectie is gebruikt zijn geprepareerd met verschillende toevoegingen. In de batches is 1 g actief kool vermengd met 400 ml water. Vervolgens is de korrelgrootteverdeling bepaald op de Universiteit Utrecht met een Malvern Mastersizer 2000 particle sizer, met een bereik van 0,01–2.000  $\mu\text{m}$ . Voorafgaand aan deze proeven is ook een test uitgevoerd met de toepassing van ultrasoon. Dit leek echter geen effect op de korrelgrootteverdeling te hebben. Ultrasoon is daarom in de verdere metingen niet meegenomen.



Figuur 2-6 toont de korrelgrootteverdeling van de verschillende batches. De analyses van de monsters zonder toevoegingen komen zeer goed overeen met de korrelgrootteverdeling van het actief kool zoals aangeleverd door Cabot. Zoals te zien heeft de toevoeging van citroenzuur (tot een pH van 3) nagenoeg geen effect op de korrelgrootteverdeling. Door toevoeging van natronloog tot een pH van 11 vindt wel een verschuiving plaats van de korrelgrootteverdeling naar een lager gemiddelde korrelgrootte. De toevoeging van aangezuurd waterstofperoxide (HCl + H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) heeft het grootste effect, met een verschuiving naar kleinere korrelgroottes. Dit effect is ook te zien in Figuur 2-7, waarbij de verschillende korrelgrootte fracties steeds het kleinst zijn bij behandeling met aangezuurd waterstofperoxide, evenals de modus. Op basis van deze experimenten is ervoor gekozen put PP08 chemisch te regenereren met HCl en H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>.



Figuur 2-6. Resultaat van batchexperimenten: effect van verschillende chemische toevoegingen op de korrelgrootteverdeling van het door Cabot geleverde actief kool.



Figuur 2-7. De korrelgroottes fracties bij verschillende chemische behandelingen.

### 2.2.2 Verslag en analyse uitgevoerde regeneratie activiteiten

#### Omschrijving uitgevoerde activiteiten en metingen

Op 13 juli 2022 is gestart met het regenereren van PP08, nadat de opbouw op de dagen hiervoor plaatsgevonden had. Het plan voor de regeneratie bestond uit hogedruk reinigen, gevolgd door een voorwas en een hoofdwas met waterstofperoxide. Tussentijds werden de ingebrachte chemicaliën verdreven door intermitterend pompen en jutteren. De regeneratie is uitgevoerd door VOF van Emmen. Het verloop van de regeneratie en de uitgevoerde stappen zijn weergegeven in Tabel 2-1. Visueel was goed te zien dat het opgepompte water kool bevatte (zie Figuur 2-8, links).

Gedurende de regeneratie zijn veldmetingen verricht. Dit begon vooraf met videoinspectie van de put, putcapaciteitsmeting, en een flowmeting. Daarnaast zijn analyses verricht van het opgepompte water tijdens verschillende stappen in het regeneratieproces (zie Figuur 2-8, rechts), ter bepaling van onder meer de troebelheid, MFI, zwevende stof, deeltjestelling, en de chemische samenstelling van het water. De volledige resultaten van deze analyses zijn te vinden in Bijlage I. Ook zijn tussentijds en achteraf capaciteitsmetingen uitgevoerd en achteraf nog een extra videoinspectie van de put.

Tabel 2-1. Verloop van de regeneratie, uitgevoerde stappen, en bijbehorende verpompte volumes.

datum	hoofdactiviteit(en)	start	einde	Beginstand (m3)	Eindstand (m3)	Totaal (m3)
12-jul	opbouw en referentiemeting	12-7-2022 15:00	12-7-2022 16:15	42.717,5	42.733,7	16,24
13-jul	flometingen en hogedrukreinigen	13-7-2022 08:00	13-7-2022 16:00	42.733,7	42.909,9	176,19
14-jul	hoge druk reinigen en intermitterend pompen	14-7-2022 08:00	14-7-2022 16:15	42.909,9	43.224,6	314,66
14-jul	intermitterend pompen	14-7-2022 16:15	15-7-2022 09:00	43.224,6	43.747,7	523,19
15-jul	capaciteitsmeting	15-7-2022 09:00	15-7-2022 16:00	43.747,7	43.798,9	51,20
25-jul	opbouw voor voorwas en jutteren	25-7-2022 08:00	25-7-2022 12:00	43.798,9	43.819,4	20,46
26-jul	voorwas en jutteren	26-7-2022 21:00	27-7-2022 05:35	43.819,4	43.947,6	128,20
27-jul	jutteren en intermitterend schoonpompen	27-7-2022 05:35	1-8-2022 08:00	43.947,6	44.403,6	455,97
2-aug	jutterend terughalen chemicalien	2-8-2022 08:00	2-8-2022 15:30	44.403,6	44.597,3	193,71
2-aug	intermitterd pompen	2-8-2022 15:30	3-8-2022 07:45	44.597,3	45.153,9	556,58
3-aug	intermitterd pompen	3-8-2022 07:45	4-8-2022 06:45	45.153,9	45.288,7	134,85
4-aug	camaperainspectie, spuien	4-8-2022 06:45	29-8-2022 13:00	45.288,7	46.767,1	1.478,43



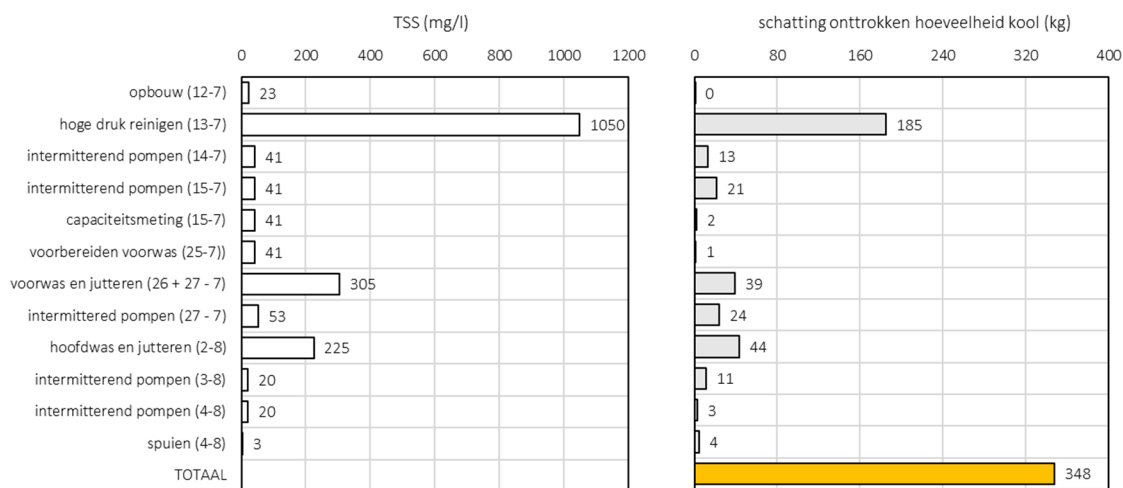
Figuur 2-8. Foto van het uit PP08 geproduceerde water (links) en verschillende gebruikte meet- en monsternameapparatuur (rechts) tijdens de regeneratie.

### Analyse meetgegevens putregeneratie

De effectiviteit van de drie regeneratiestappen is goed te zien in de gemeten concentraties totaal zwevend stof. Bij de nulmeting was deze 23 mg/l (Figuur 2-9, links). Bij het hoge druk reinigen was dat 1050 mg/l, bij de voorwas 305

mg/l en bij de hoofdwas 225 mg/l: deze lagen dus veel hoger dan voor en na deze reinigingsstappen, wat duidelijk maakt dat grote hoeveelheden kool zijn opgepompt. Ook valt op dat na afloop van de gehele regeneratie de concentratie zwevende stof bij het spuien met 3 mg/l stukken lager was dan bij de nulmeting. De MFI-meter was niet bestand tegen de hoge concentraties actief kool, waardoor het apparaat technische problemen kreeg en al snel niet meer inzetbaar was voor verdere metingen.

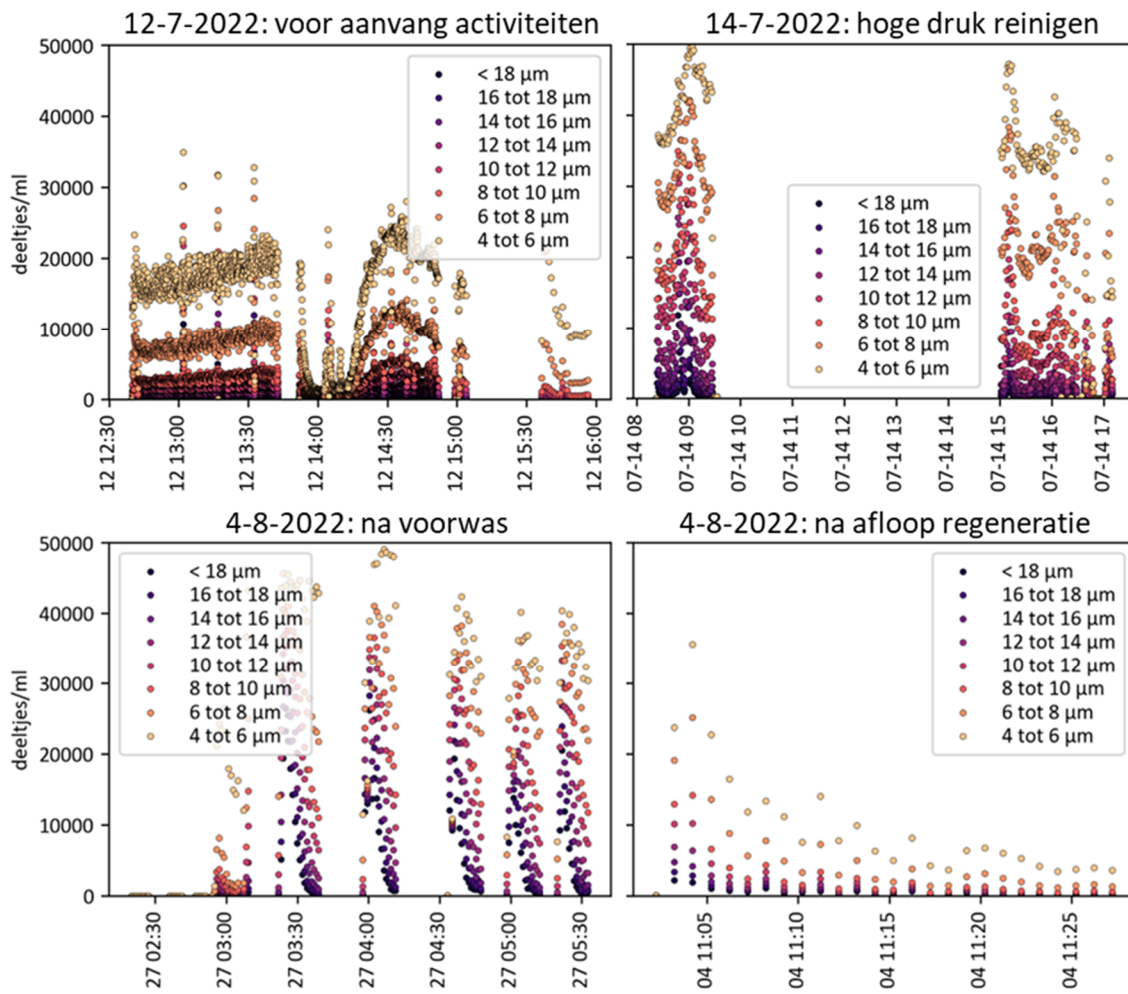
Op basis van de concentraties zwevende stof (TSS) en de verpompte volumes is een grove schatting gemaakt van de hoeveelheid kool die is onttrokken gedurende de putregeneratie (Figuur 2-9, links). Hierbij is te zien dat de grootste massa lijkt te zijn gemobiliseerd tijdens de hogedrukreinigingsstap. In totaal komt de schatting, welke een grote onzekerheidsmarge heeft, er op uit dat de totale massa van onttrokken kool rond de 350 kilo lag. Dit is ongeveer 1/5 van de hoeveelheid kool die is geïnjecteerd tijdens de injectieproef. Daarmee kan geconcludeerd worden dat een aanzienlijke hoeveelheid kool is onttrokken, maar ook dat een relatief groot deel van het geïnjecteerde kool zich nog in de formatie bevond na afloop van de regeneratie.



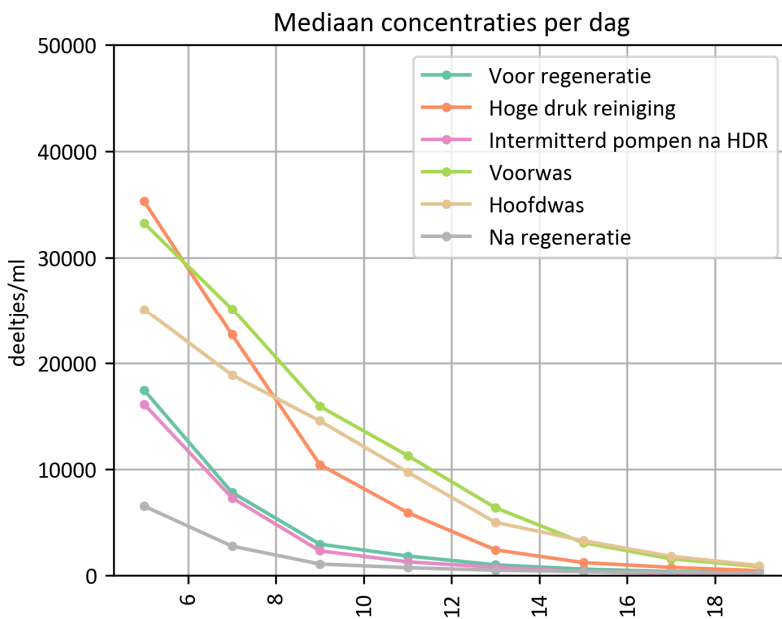
Figuur 2-9. Concentraties zwevende stof (TSS) in het opgepompte water (links) en geschatte massa opgepompt kool (rechts) gedurende de verschillende regeneratie stappen.

Met een deeltjesteller zijn de hoeveelheid deeltjes met korrelgroottes tussen de 4 en 18  $\mu\text{m}$  in hoge resolutie gemeten (Figuur 2-10). Dit bereik is gekozen omdat de mediaan van de korrelgroottes van het door Cabot geleverde actief kool rond de 4 a 5  $\mu\text{m}$  ligt, en er met het oog op verstopping vooral interesse is voor de grotere korrelgroottes. Duidelijk is dat gedurende de hoofdwas en de chemische reiniging de concentraties van deeltjes in het hele gemeten bereik hoger was dan op de andere dagen.

Vervolgens is voor elke dag en elke gemeten korrelgroottefractie de mediaan-concentratie berekend (Figuur 2-11). Uit deze gegevens blijkt dat de grovere korrelgroottefracties (> 10  $\mu\text{m}$ ) in de hoogste concentraties aanwezig waren op beide dagen waar chemische behandelingen werden toegepast (de voorwas op 27 juli en hoofdwas op 2 augustus). Alhoewel de grootste hoeveelheid kooldeeltjes dus bij de hogedruk reiniging werden teruggewonnen lijken de grotere deeltjes juist versterkt gemobiliseerd na de chemische behandelingen.

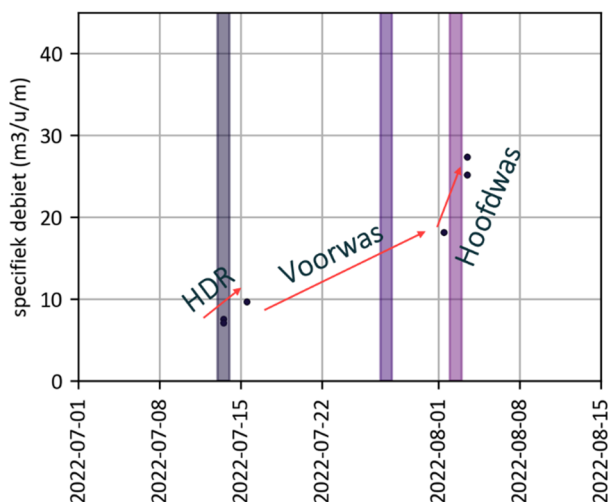


Figuur 2-10. Resultaten van de deeltjestellermetingen tijdens de opbouw (12-7, linksboven), het hoge druk reinigen (14-7, rechtsboven), de voorwas (27-7, linksonder) en na afloop van de regeneratie bij het spuien (4-8, rechtsonder). Volledige dataset is te zien in Bijlage II.



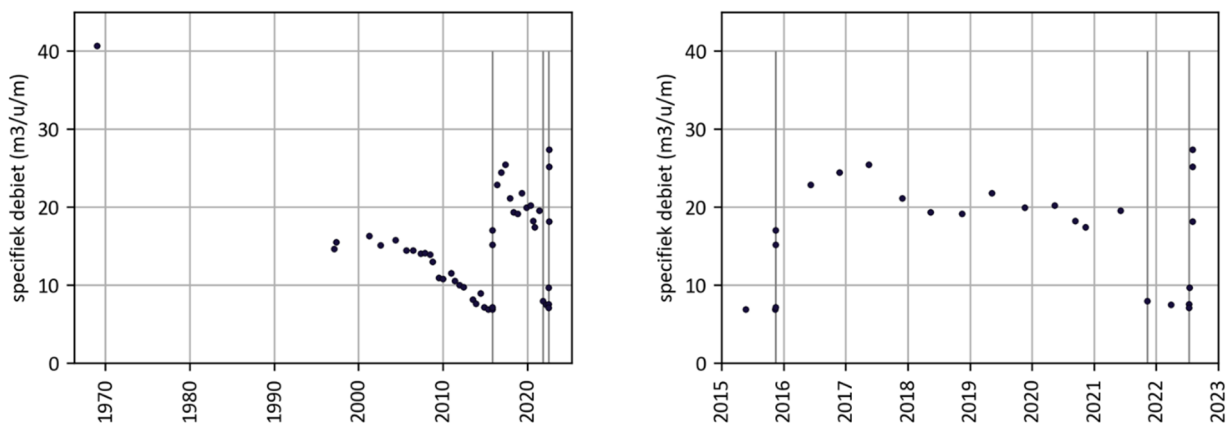
Figuur 2-11. Mediaanconcentratie voor iedere met de deeltjesteller gemeten korrelgroottefractie op verschillende dagen gedurende de regeneratie.

Het herstel van het specifiek debiet van PP08 als gevolg van de regeneratie is te zien in Figuur 2-12. In de figuur is duidelijk te zien dat de chemische reinigingen een sterker effect hadden op het herstel dan de hogedruk reiniging (HDR). Gezien bij de HDR meer actief kool is teruggewonnen maar met een gemiddeld kleinere korrelfractie dan bij de chemische reinigingen lijkt dit te suggereren dat de verstopping vooral veroorzaakt is door de grotere korrelgroottefracties.



Figuur 2-12. Het effect van de regeneratie op het herstel van het specifiek in PP08. De verticale gekleurde balken geven de dagen van (van links naar rechts) de hogedrukreiniging, de voorwas en de hoofdwas. Databron: WML.

Kijkend naar de ontwikkeling van het specifiek debiet van PP08 sinds realisatie van deze put (~1970, Figuur 2-13), valt op dat (1) het specifiek debiet herstelt tot ~60 a 70% van het specifiek debiet bij oplevering en (2) dit even hoog is of zelfs iets hoger dan het specifiek debiet voor aanvang van de koolinjectie. Daarmee kan geconcludeerd worden dat de regeneratie van de put succesvol was, maar ook dat de put dus al een significante mate van verstopping vertoonde voor de koolinjectie veldproef plaatsvond. In 2015 is de put daarom ook al geregeneerd; voor aanvang van deze regeneratie was het specifiek debiet even laag als na de koolinjectie.



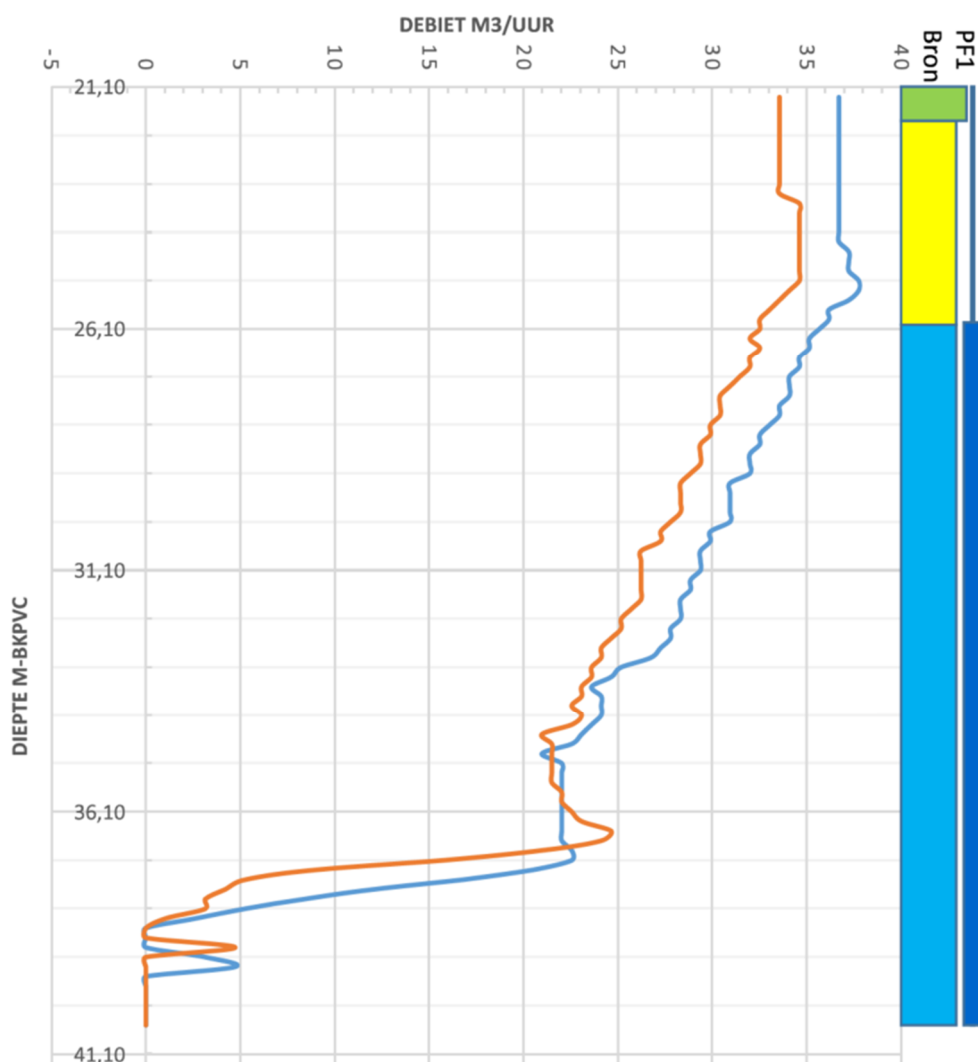
Figuur 2-13. Historische ontwikkeling van het specifiek debiet in PP08. Verticale grijze lijnen geven de data aan van (1) de eerdere putregeneratie in 2015, (2) de injectie veldproef en (3) de recente regeneratie na de veldproef. Databron: WML.

Zowel vooraf als na afloop van de regeneratie is door van Emmen een flowmeting uitgevoerd om de contributie te bepalen van de verschillende secties van het bronfilter aan de totale toestroom naar de put (Figuur 2-14). Hier is duidelijk te zien dat met name de 2 meter onderin de bron (het grindige gedeelte, zie 2.1.1) voor een belangrijk deel de totale putcapaciteit bepaald en de doorlatendheid hier dus inderdaad hoger is. Opvallend is verder dat rond de 36 m-mv een interval van ongeveer 2 meter is dat niet bijdraagt aan de stroming in de put (ofwel dat volledig verstopt lijkt te zitten). Het zandige interval daarboven tot aan de bovenkant van het bronfilter levert per



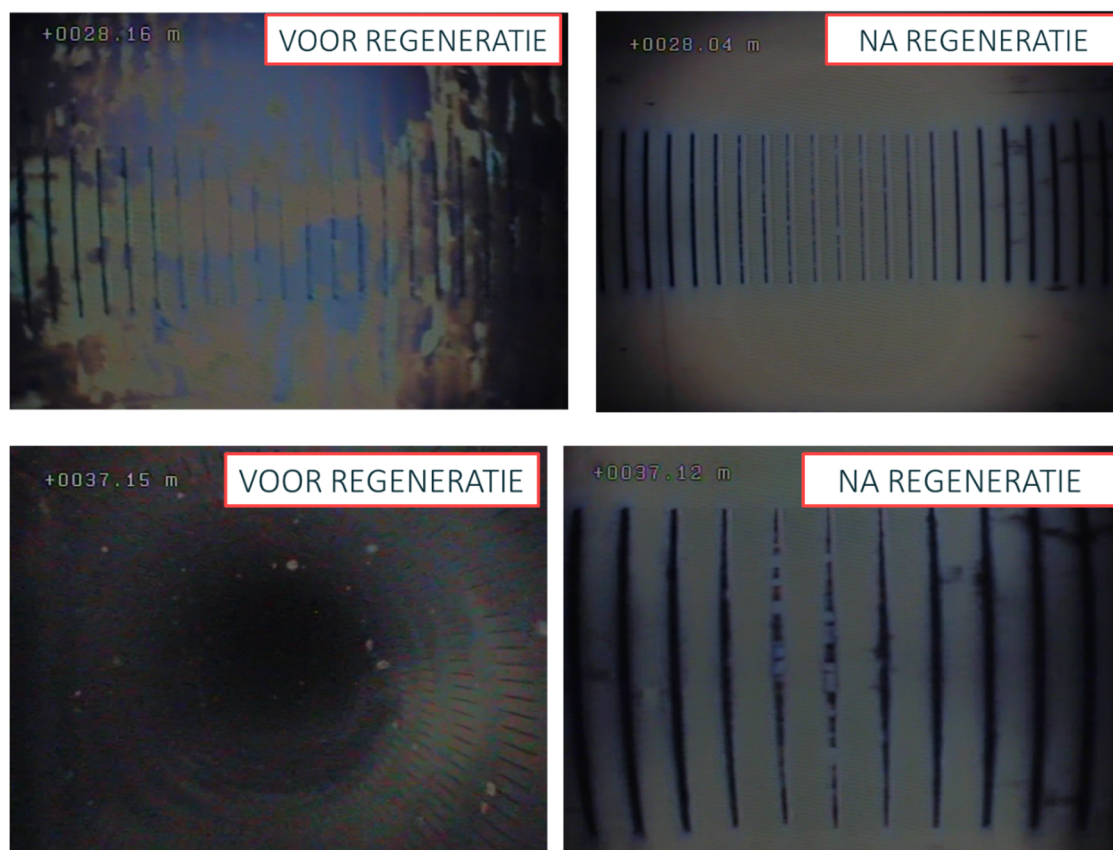
meter minder dan het beter doorlatende grindige gedeelte onderin, maar is cumulatief ook belangrijk. Uit een historische flowmeting van WML bleek dat dit algemene patroon ook al eerder zo was, ofwel, dat deze verdeling al tot stand was gekomen voorafgaand aan de koolinjectie veldproef.

De flowmeting na afloop van de regeneratie lijkt aan te tonen dat de regeneratie vooral effect heeft gehad op het minder goed doorlatende bovenliggende deel van de put, en mogelijk dat de verstopping door koolinjectie zich dus ook vooral daar afspeelde. Het lijkt echter niet mogelijk om op basis van de metingen tijdens en rond de regeneratie te herleiden waar de verstopping zich precies afgespeeld heeft: bijv. op de filterspleten, de boorgatwand, of dieper in de formatie.



Figuur 2-14. Resultaten van de flowmeting uitgevoerd door van Emmen in PP08 voor aanvang (oranje) en na afloop (blauw) van de regeneratie.

Ook uit de analyse van de videoinspectie-beelden (uitgevoerd door VOF van Emmen) voor en na de regeneratie kunnen verder geen conclusies worden getrokken aangaande de oorzaken van de verbetering van de putcapaciteit in het bovenliggende gedeelte van de put. Ook de reden voor de totale verstopping van de put op ~37 m diepte is hieruit niet duidelijk te herleiden (Figuur 2-15).



Figuur 2-15. Screenshots van de videoinspectie van op ~28 m (boven) en ~37 m (onder) diepte voor en na de regeneratie.

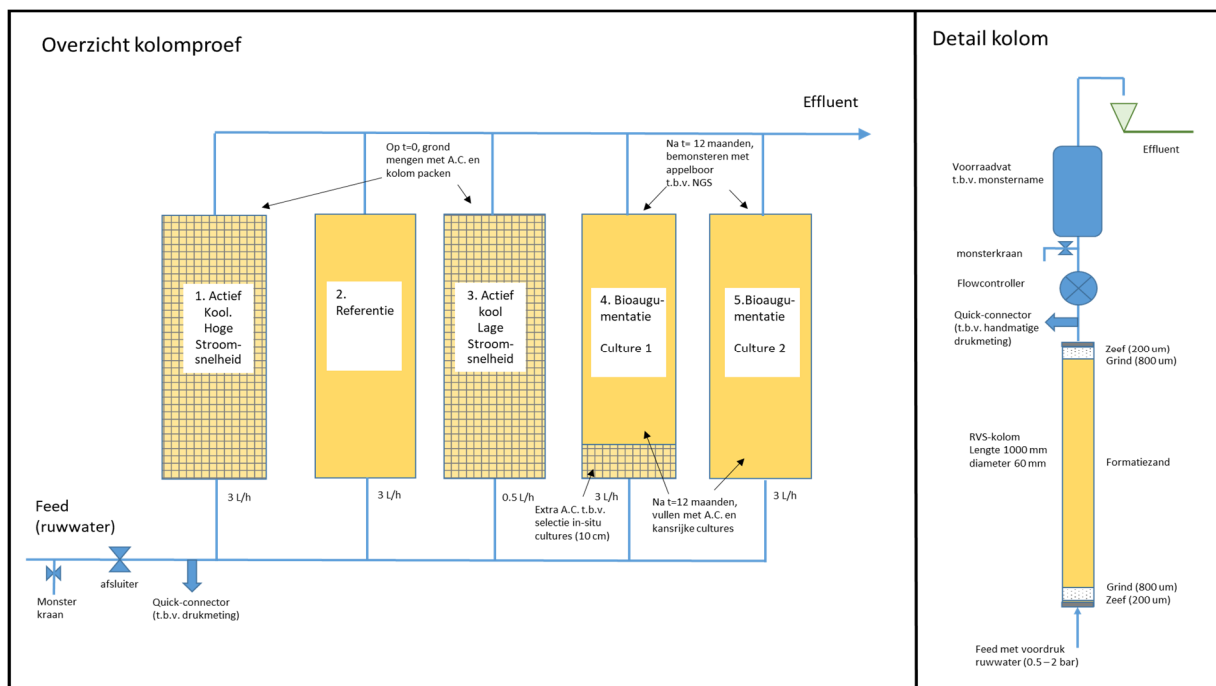
### 2.3 Experimenten met meeloop-kolommen

Naast de door WML uitgevoerde veldactiviteiten zijn ook 5 kolomopstellingen door KWR gemaakt en geïnstalleerd op locatie in Grubbenvorst als meeloopfilters (Figuur 2-16). Doel van deze kolomexperimenten was om de adsorptie en biologische afbraak van de bij Grubbenvorst opgepompte OMVs in verschillende omstandigheden te toetsen – en dus niet om de effectieve inbreng van kool en het stromingsgedrag ervan in de ondergrond beter te kunnen begrijpen. In deze paragraaf worden daarom alleen de bevindingen bij deze kolommen kort omschreven voor zover relevant aan het transport van kool.



Figuur 2-16. Foto van de 5 kolomopstellingen geïnstalleerd op locatie in Grubbenvorst.

In Figuur 2-17 is de opzet van de vijf experimentele kolommen (meeloopfilters) schematisch weergegeven. Noemenswaardig hier is dat kolom 1 en 3 vooraf volledig afgevuld zijn met een mengsel van zand en 0,17% actief kool, en in kolom vier was alleen de eerste 10 cm van het zand vermengd met 0,17% kool. Deze 0,17% komt dus achteraf goed overeen met de in het veld toegepaste concentratie (gemiddeld tussen de 0,06 en 0,1%, zie hoofdstuk 2). In de meeloopkolommen werd verder geen actief kool geïnjecteerd als suspensie maar werden de kolommen doorstroomd met het bij Grubbenvorst geproduceerde ruwwater. De stroomsnelheid in kolommen 1 en 4 was 3,2 m/uur en in kolom 3 0,5 m/uur. Deze stroomsnelheden zijn dus lager dan aanvankelijke snelheid op de boorgatwand bij de veldinjectieproef (~10 m/uur bij een injectiedebiet van 80 m<sup>3</sup>/uur).



Figuur 2-17. Schematische weergave van de vijf meeloop-kolomexperimenten.

Na enige tijd zijn kolommen 1 en 4 echter verstopt geraakt, ofwel de kolommen met de hoogste stroomsnelheid. Ondanks dat ook kolom 3 vooraf volledig is gevuld met het zand en 0,17% kool mengsel is deze dus niet verstopt. Dit doet vermoeden dat niet per se de aanwezigheid van het kool maar de stroomsnelheid voor de verstopping heeft gezorgd, welke 6x zo laag was in deze kolom. De twee verstopte kolommen zijn vervolgens door KWR in het lab geleegd om de verstoppingsoorzaak beter te kunnen herleiden. In beide kolommen kwam naar voren dat het kool zich voornamelijk had opgehoopt bij het uiteinde van de kolom (Figuur 2-18). Er lijkt dus mobilisatie van het vooraf geplaatste actief kool plaats te hebben gevonden naar het einde van de kolom, waardoor de kolommen verstopt zijn geraakt.

Het grote aantal doorstromingen van deze kolommen zal hierbij een grote rol gespeeld hebben. De kolommen zijn op 23 september 2021 gestart. Kolom 1 was op 6 december 2021 verstopt, en kolom 4 op 9 maart. Bij een flux van 3 l/uur en porievolumen van 0,93 liter komt dit overeen met verstopping na 5.710 doorstromingen van kolom 1 en 12.887 doorstromingen van kolom 4. Het lijkt er dus op dat door de langdurige inzet van deze kolommen en de continue doorstroming het actief kool zich langzaam opgehoopt heeft in het einde van de kolom, en de verstopping hierdoor is veroorzaakt. Bij kolom 4 ging dit proces langzamer omdat het kool alleen in het bovenstroomse deel van de kolom was ingebracht.



Figuur 2-18. Foto's genomen bij het legen van kolom 4 van de meeloopkolommen. Links: hoge concentratie kool in het poriewater aan het uiteinde van de kolom. Rechts: ophoping van koollurry bij de uitstroom van de kolom.

## 2.4 Conclusies veldproef en regeneratie

In oktober 2021 is actief kool geïnjecteerd in pompput 08 (PP08) van de drinkwaterproductielocatie Grubbenvorst van WML. Door toenemende mate van verstopping van de put tijdens deze injectie is het niet gelukt de vooraf geplande 8000 kg actief kool in te brengen, maar is tussen de 1000 en 1800 kg geïnjecteerd, samen met 1633 m<sup>3</sup> water. De gemiddeld geïnjecteerde concentratie lag dus op grofweg 0,6 of 1 g actief kool/l (massaverhouding van 0,06 of 0,1%). De put is vervolgens in juli en augustus van 2021 succesvol geregenereerd door een combinatie van chemische (HCl en H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) en fysische reiniging. Het specifiek debiet van de put is daarbij hersteld tot ~60 a 70% van de capaciteit bij oplevering van de put, waarmee het minstens even groot is als voorafgaand aan de koolinjectie en vergelijkbaar aan de putcapaciteit na de laatste regeneratie in 2015.

De grootste hoeveelheid massa kool is tijdens regeneratie teruggewonnen bij het hoge druk reinigen (HDR), maar de chemische reinigungsstappen hadden een veel groter effect op het herstel van de putcapaciteit dan de HDR. Deeltjestellermetingen toonden aan dat bij de chemische reinigingen de grotere korrelgroottefracties sterker gemobiliseerd werden, wat vermoedelijk de verklaring is voor het grotere effect op het herstel van de putcapaciteit. Uit analyse van de flowmetingen en videobeelden wordt niet volledig duidelijk waar de verstopping primair heeft plaatsgevonden (bijv. verstopping van de filterspleten, de boorgatwand, in de formatie, etc.). Op basis van de flowmeting lijkt de regeneratie wel meer effect te hebben gehad op het meer zandige bovenste interval van de put, en minder op het dunne grindige interval onderin de put.

## 3 Onderbouwing methodiek kolom experimenten

### 3.1 Onderzoeksvragen

Bij de veldproef met koolinjectie is door verstopping niet de gewenste hoeveelheid kool ingebracht. De precieze oorzaak en het achterliggende proces wat de verstopping heeft veroorzaakt kon op basis van de in het veld uitgevoerde metingen niet met zekerheid worden bepaald. Door deze onzekerheid kon ook niet een goed onderbouwd nieuw plan worden opgesteld voor het voorkomen/reduceren van de mate van putverstopping bij een volgende koolinjectie.

In overleg met WML is er daarom voor gekozen om met behulp van een aantal kolomexperimenten eerst beter uit te zoeken welke factoren het grootste effect moeten hebben gehad op de mate van verstopping, zodat bij nieuwe veldtoepassingen het procedé voor de inbreng geoptimaliseerd kan worden. In de volgende hoofdstukken van dit rapport worden de opzet en resultaten van nieuwe kolomexperimenten beschreven die zijn uitgevoerd om een aantal verschillende hypothesen hierover verder te testen.

Deze experimenten zijn vormgegeven met als doel om na afloop zowel de vraag waar de verstopping heeft plaatsgevonden als waardoor deze plaatsvond beter te kunnen beantwoorden. De mogelijke redenen voor verstopping worden onderzocht aan de hand van de volgende specifieke onderzoeksvragen:

1. Welke factor heeft de mate van putverstopping het sterkst beïnvloed?
  - a. de grootte van de kooldeeltjes t.o.v. de poriegrootte van het poreuze medium (de formatie of het filtergrind)
  - b. immobilisatie van het kool op afstand van de injectieput door afname van de stroomsnelheid
  - c. de concentratie actief kool in de suspensie
  
2. Op welke plek in de ondergrond is de verstopping voornamelijk opgetreden?
  - a. Alleen in het zandige bovenste gedeelte van de aquifer of ook in het hieronder gelegen grindige deel?
  - b. Op de filterspleten, de boorgatwand, of op enige afstand van de put in de formatie?

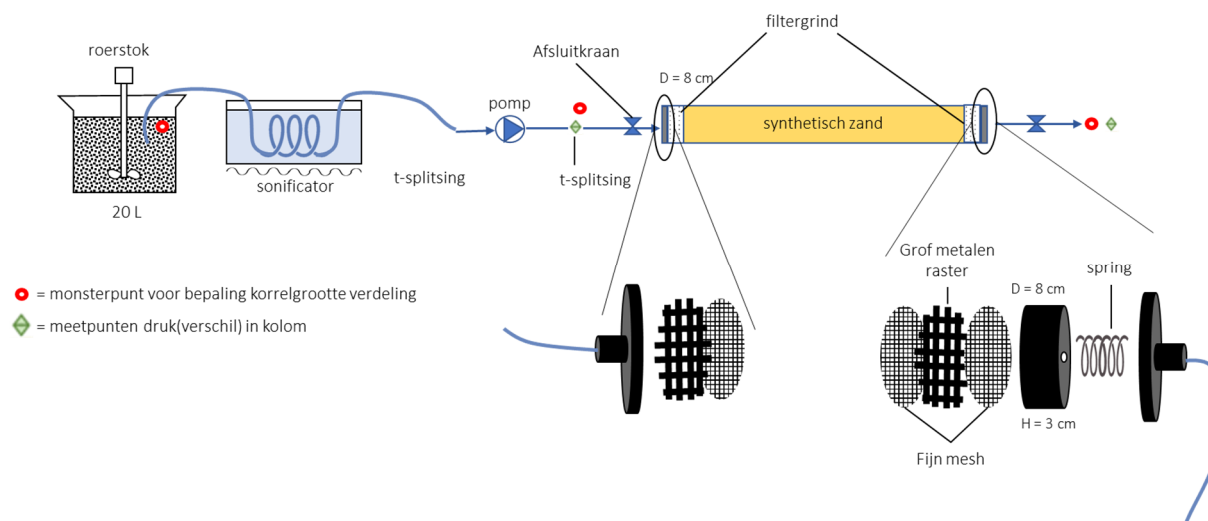
### 3.2 Opzet en uitvoering kolomexperimenten

#### 3.2.1 Kolomopstelling

De uiteindelijk gebruikte experimentele opstelling voor de experimenten is schematisch weergegeven in Figuur 3-1. Voor de kolomexperimenten is gebruik gemaakt van een cilindrische (lineaire) kolom van 1,1 meter lang. Vanwege deze cilindrische vorm is het debiet van en de stroomsnelheid in de kolom gelijk over de hele lengte. Aan de instroom- en uitstroomzijde van de gebruikte kolom zijn twee filters met een doorlaatdiameter van 0,2 mm geïnstalleerd, die op hun plaats worden gehouden met een grof metalen raster (Figuur 3-1). Aan de uitstroomzijde zit een rubberen stop en een veer. De veer zorgt voor extra druk op de uitstroom. Dit is cruciaal omdat de kolom verticaal is aangevuld en er altijd een bepaalde mate van bezinking optreedt wanneer de kolom weer horizontaal wordt geplaatst. De extra druk op de op de uitlaat voorkomt daarmee kortsluitingstroming. Aan de instroomzijde is 0,125 meter blauw filtergrind aangebracht. Dit filtergrind heeft een korreldiameter van 0,8-1,25 mm. Aan de

uitstroomzijde is ook filtergrind aangebracht, zodat het zand zelf niet direct aansluit op het uitstroomfilter. Zo wordt uitstroom van zanddeeltjes voorkomen.

Bij de proeven is gebruik gemaakt van een mengvat van 20 liter waarin de stockoplossing continue geroerd werd met een roerstick. Vanuit het mengvat werd deze oplossing naar de kolom verpompt door een buis dat in een ultrasoon was opgerold (Figuur 3-1). Hiermee werd zo goed mogelijk de veldopstelling nagebootst, waar ook een mengvat is gebruikt gevolgd door een in-line ultrasoon apparaat (Figuur 2-3).



Figuur 3-1. Schematische weergave van de kolomopstelling die is gebruikt voor de experimenten.

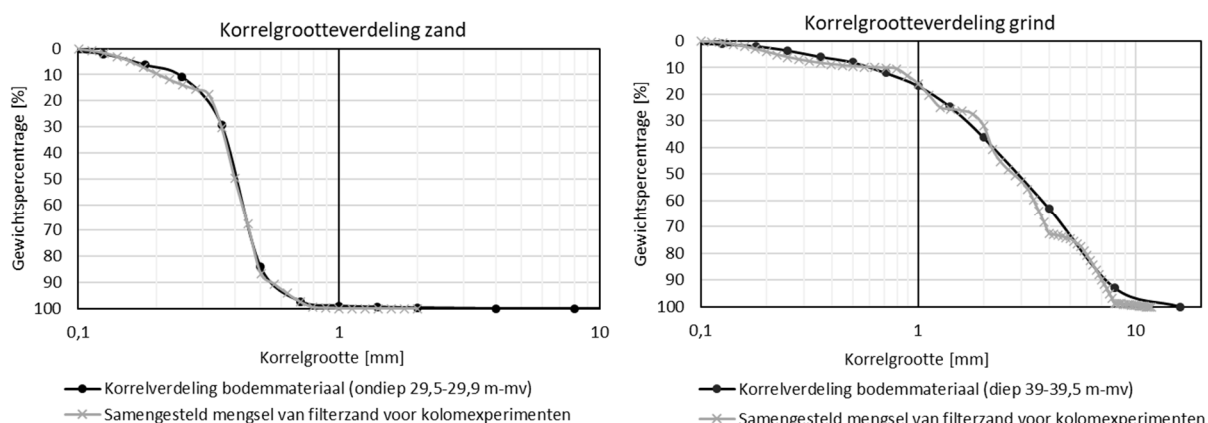
Aanvankelijk was de intentie om een conische kolom te gebruiken, maar deze speciaal vervaardigde (glas-geblazen) kolom bleek niet werkbaar. Een dergelijke opstelling zou ideaal zijn om de verandering in de stroomsnelheid met de afstand tot de injectieput vast te leggen, maar met name het afdichten van deze kolom bleek niet goed mogelijk, mede omdat het zeer kwetsbaar is voor barsten.

### 3.2.2 Bereiding gebruikte filterzandmengsels voor aanvullen kolommen

Voor het aanvullen van de kolommen is gebruikt gemaakt van mengsels van filterzand die dusdanig zijn samengesteld zodat de korrelgrootteverdeling overeenkwam met bepaalde delen van de formatie bij de pompput (Figuur 2-1). In het filtertraject van deze put neemt de korrelgrootte toe met de diepte. De onderste ~2 a 3 meter bestaan overwegend uit grind en zijn dus veel doorlatender dan het bovenste deel van het filtertraject, hetgeen ook blijkt uit flowmetingen (Figuur 2-14). Op basis van korrelgrootteverdelingen van bodemonsters uit het veld zijn twee zandmengsels aangemaakt voor de kolomproeven:

- Middelgroot zand met een  $d_{50}$  van 0,4 mm en een Cu-waarde van 2,1 voor het bodemmateriaal in het bovenste filtergedeelte van de winput (Figuur 3-2, links).
- Fijn grind met een  $d_{50}$  van 2,9 mm en een Cu-waarde van 5 voor het bodemmateriaal in het onderste filtergedeelte van de winput (Figuur 3-2, rechts).





Figuur 3-2. Korrelgrootteverdelingen van het natuurlijke bodemmateriaal (zwart) en de samengestelde filterzandmengels die dit natuurlijke zand nabootsen (grijs). Voor het zandige bovenste deel van de aquifer (links) en het grovere grindige onderste deel van de aquifer (rechts). Zie voor bodemopbouw Figuur 2-1.

### 3.2.3 Aanvulmethode kolommen

Het aanvullen van de kolommen heeft niet alleen betrekking op het vullen van de kolom met materiaal (sediment), maar ook op de genomen stappen om de dichtheid te verhogen tot de gewenste staat. Om korstluitstroming, wandeffecten en het ontstaan van preferentiële stroombanen in het zand bij hoge drukken te voorkomen moet de compactiegraad zo groot mogelijk zijn. Er is gekozen om aan te vullen met de ‘optimum moisture content’ methode (bij 15% saturatie van grond met water, ASTM D698), met aanvullende verdichtingsmethoden.

Om ingesloten lucht te minimaliseren en de verzadiging van de kolom te maximaliseren, werd de kolom na het aanvullen eerst gespoeld met CO<sub>2</sub>-gas. Door de kolom met CO<sub>2</sub> te spoelen, wordt de omgevingslucht uit de kolom gespoeld. Omdat CO<sub>2</sub> beter in water oplost dan lucht zal de CO<sub>2</sub> veel sneller weer in het water oplossen wanneer de kolom vervolgens langzaam met water doorspoeld wordt bij een lage stroomsnelheid. Vervolgens werd de kolom gespoeld met ten minste drie porievolumes water om ervoor te zorgen dat de CO<sub>2</sub> volledig wordt weggespoeld. Hierna werd de kolom verder verdicht met een klopper. Zie bijlage III voor een gedetailleerde uitleg van de aanvulprocedure.

### 3.2.4 Uitvoeren tracertest voor bepaling doorlatendheid kolommen

Voordat de kolomexperimenten met actief kool zijn uitgevoerd is voor elke kolom eerst een tracer test uitgevoerd met een zout-fluoresceïne tracer waarmee de doorlatendheid van de kolommen is berekend. Visuele tracers zoals fluoresceïne kunnen fingering, gebieden met preferente stroming of wandstroming in de kolom zichtbaar maken en fungeert daarmee ook als extra kwaliteitscontrole. De elektrische geleidbaarheid (EGV) van de traceroplossing werd tijdens de tracertest geregistreerd om een doorbraakcurve te produceren, zodat ook de dispersiviteit van de kolom kan worden bepaald.

Voor de experimenten is een zout-fluoresceïne traceroplossing gebruikt met 1 g/L NaCl en 0,1 g/L fluoresceïne natriumzout. Het injectievolume van de tracer was ongeveer 1/3 van het porievolume van de kolom. De tracer werd geïnjecteerd bij het testdebiet van de kolom (Tabel 3-1). Na injectie van de tracer werd leidingwater geïnjecteerd totdat de EGV terugkeerde naar de beginwaarde. De EGV werd gemeten met een draagbare EGV-meter (WTW Cond 3310) en doorstroomcel. De EGV en de temperatuur werden elke 10 seconden geregistreerd. De EGV van de traceroplossing (gemiddeld: 4200  $\mu\text{S}/\text{cm}$ ) en het kraanwater (gemiddeld: 284  $\mu\text{S}/\text{cm}$ ) werd voorafgaand aan het experiment gemeten.

### 3.2.5 De injectiviteits-experimenten

In totaal zijn vijf kolomexperimenten uitgevoerd. Het referentie-experiment (experiment 1) is zo ontworpen dat de stroomsnelheid in de kolom hetzelfde is als de stroomsnelheid op de boorgatwand in het veld, bij een debiet van 80 m<sup>3</sup>/uur. Dit komt neer op een instroomdebiet van 18 l/uur in de kolomopstelling (zie Tabel 3-1).

Voor de experimenten is gebruik gemaakt van hetzelfde actief poederkool dat ook bij de veldproef is gebruikt (SA UF, Cabot) met een mediaankorrelgrootte van 4 µm. Er is voor gekozen om de experimenten uit te voeren met een concentratie van 2 g/l (hoger dan de 0,6 tot 1,0 g/l die is toegepast bij de veldproef). Om deze oplossing te bereiden is eerst een stockoplossing van 20 g/L gemaakt van waaruit werd verdund tot de gewenste 2 g/L concentratie voor de experimenten. De massaconcentraties zijn bepaald aan de hand van de troebelheid (HACH 2100n IS troebelheidsmeter) en een vooraf bepaalde ijklijn voor de relatie tussen de troebelheid en de massaconcentratie (zie bijlage V.II).

**Experiment 1 en 2:** Het watervoerend pakket in Grubbenvorst heeft twee verschillende korrelgrootteverdelingen, zie hoofdstuk 3.2.1. Met deze experimenten wordt het verstoppingsgedrag van het actief kool in het middelgrootte zand en het fijne grind en de invloed van de verhouding tussen de poriegrootte van de formatie en de korrelgrootteverdeling het actief kool hierop.

**Experiment 3 en 4:** Er is nagegaan of bij lagere of hoger injectiedebieten er een lagere/hoger verstoppingsnelheid is. De injectiesnelheid wordt eerst verlaagd tot de helft en vervolgens verhoogd tot tweemaal de injectiesnelheid. Voor deze experimenten werd dezelfde grind kolom uit experiment 2 gebruikt.

**Experiment 5:** Voor experiment 5 werd de suspensie van koolstof vooraf gefilterd met een kaarsfilter (zie 3.2.7), om te testen of verwijdering van de grotere fractie actief kool verstopping kan voorkomen. Hiervoor is de kolom opnieuw gevuld met een mengsel met dezelfde korrelgrootteverdeling als bij proef 1 (middelgroot zand).

Tabel 3-1. De verschillen in debiet, stroomsnelheid, filtering en zand type die bij de nieuwe kolomexperimenten die zullen worden getoetst.

No.	Experiment	Debiet (l/uur)	Darcysnelheid (m/uur)
1	Middelgroot zandmengsel	18	3.52
2	Fijn grindmengsel	18	3.52
3	Fijn grindmengsel, 0,5 x stroomsnelheid referentieexperiment	9	1.76
4	Fijn grindmengsel, 2 x stroomsnelheid referentieexperiment	36	7
5	Middelgroot zandmengsel – gefiltreerd actief kool	18	3.52

### 3.2.6 Experimentele procedure, monitoring en verwerking uitkomsten

Voor elk experiment werd elke 15 seconden de druk bij de inlaat gemeten met een WIKA CPG 1500 druklogger. De experimenten werden ook elke 10 seconden van bovenaf gefotografeerd voor het creëren van een time-laps video. Tijdens de experimenten werden regelmatig instroom- en uitstroommonsters genomen, en in enkele gevallen na afloop ook terugspoelmonsters. Deze monsters zijn vervolgens getest op het gehalte gesuspendeerde stoffen en de deeltjesgrootteverdeling. Gesuspendeerde vaste stoffen werden gemeten door monsters over een 0,45 µm filter te filteren, te drogen en te wegen. Deze metingen geven een exacte concentratie actief kool in elk monster. Daarnaast werden de monsters gemeten op deeltjesgrootteverdeling met een Pamas WaterViewer deeltjesteller. Twee verdunningen per monster werden gemeten en de gemiddelde concentratie werd berekend. De gemeten deeltjesgroottes waren 1,00 - 2,99 µm, 3,00 - 4,99 µm, 5,00 - 7,99 µm, 8,00 - 10,99 µm, 11,00 - 13,99 µm, 14,00 - 16,99 µm, 17,00 - 19,99 µm, > 20,00 µm.

Na aflopen van experiment 1 en 5 zijn de desbetreffende kolommen ontleed om het indringen van het kool met de diepte in detail te kunnen bekijken. Dit is gedaan door de kolom verticaal te plaatsen met de uitlaat naar beneden en het overtollige poriewater uit de kolom te laten lopen. Vervolgens werd de uitlaatdop verwijderd en werd een



stalen cilinder in de uitlaat van de kolom gestoken. Door vervolgens druk uit te oefenen op de kolom werd de kolom naar beneden geduwd en het zand de kolom uitgeduwd (Figuur 3-3). Het geëxtraheerde sediment werd met een staaldraad afgesneden en de doorsnedes gefotografeerd.

Op basis van de autopsie van de kolommen na afloop van experiment 1, 4 en 5 is het volume van de kolom waarin het actief kool zich bevond ingeschat ( $V_p^{AC}$ ). Vervolgens is de gemiddelde massaconcentratie kool in dat deel van de kolom ( $C_p^{AC}$ ) berekend door de massa actief kool in de kolom ( $M^{AC}$ ) te delen door het volume dat door de hierdoor werd ingenomen (Vergelijking 1). De massa actief kool in de kolom werd berekend aan de hand van de influent en effluentvolumes en de daarbij gemeten concentraties. Vervolgens is de volumefractie van de poriën bezet door actief kool berekend ( $f_p^{AC}$ ), uitgaande van een schijnbare dichtheid van het actief kool ( $\rho^{AC}$ ) van  $282 \text{ kg/m}^3$  (Vergelijking 2, o.b.v. Cabot SA UF datasheet).

$$C_p^{AC} = \frac{M^{AC}}{V_p^{AC}} \quad \text{Vergelijking 1}$$

$$f_p^{AC} = \frac{M^{AC}}{\rho^{AC} \cdot V_p^{AC}} \quad \text{Vergelijking 2}$$



Figuur 3-3. Foto's van het ontleden van de een kolom na afloop van de experiment, om het indringen van het kool met de diepte in detail te kunnen bekijken.

### 3.2.7 Vooraf filteren van de actiefkoolsuspensies

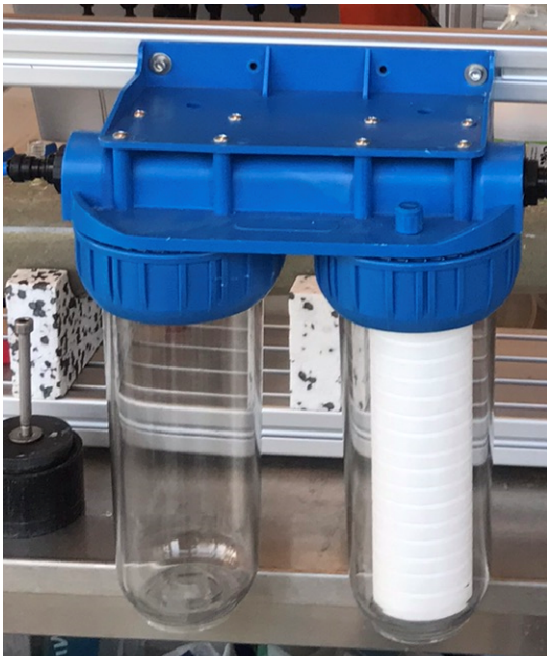
Een van de hypothesen voor de verstopping was dat vooral de grove korrelfractie van het actief kool voor verstopping heeft gezorgd. Om die reden is voor experiment 5 (Tabel 3-1) geprobeerd om deze fractie vooraf te verwijderen. Om dit te bewerkstelligen zijn drie methoden uitgetoetst om de grote deeltjes ( $>10 \mu\text{m}$ ) te verwijderen: bezinken, afromen ("skimming") en filtratie.

Voor de bezinkmethode werd een suspensie van actief kool van 20 liter gemaakt met een concentratie van  $2 \text{ g/L}$  (bepaald op basis van de troebelheid). De suspensie werd gemengd op hoge snelheid (350 rpm) en is vervolgens 30 minuten laten bezinken. De bovenste 15 L werd dan weggepompt en geanalyseerd op deeltjesgrootte en -verdeling

met de deeltjes teller (zie paragraaf 3.2.7) en de concentratie werd gemeten met de troebelheidsmethode. De theorie is dat de grootste deeltjes zinken, waardoor de kleinste deeltjesfractie nog zweeft.

Voor de afroommethode wordt een vergelijkbare suspensie bereid, behalve dat zodra de roerstok wordt uitgezet de suspensie wordt afgeroomd door onmiddellijk 2 cm onder het waterniveau te pompen. Dit wordt voortgezet totdat er 15 liter is verwijderd. De theorie is dat de grootste deeltjes sneller zinken dan de kleinere deeltjes, en door onmiddellijk de bovenkant weg te pompen kan meer koolstofmassa worden opgevangen terwijl de grootste fractie wordt vermeden. Monsters van het effluent werden gemeten met een troebelheidssensor en de deeltjesteller.

Ten slotte werd is een suspensie bereid zoals hierboven beschreven en gefilterd met een Spectrum PSP-10-97/8 TruDepth Premier 10  $\mu\text{m}$  kaarsfilter (Figuur 3-4). Om voldoende volume te bereiden voor experiment 5 werden twee batches koolstof met twee filters gebruikt. Op een gegeven moment raken de filters verstopt en moeten ze worden vervangen. Elke batch influent en effluent werd bemonsterd en geanalyseerd op de gewogen concentratie en op deeltjesteller.

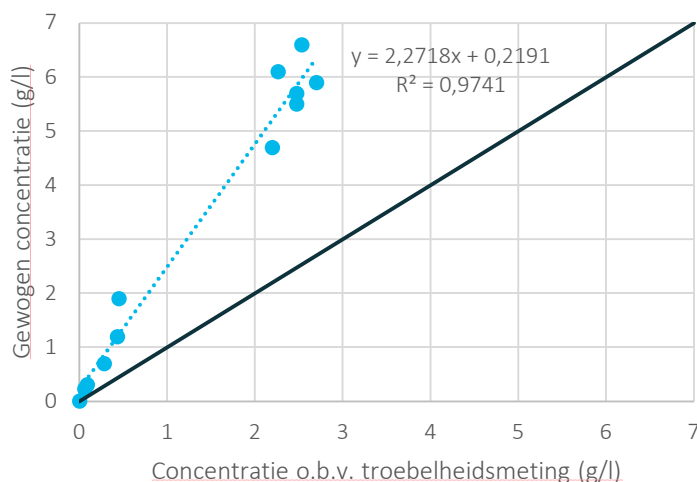


Figuur 3-4. Spectrum PSP-10-97/8 TruDepth Premier 10  $\mu\text{m}$  kaarsfilter gebruikt voor filtratie van suspensies van actief kool.

## 4 Resultaten kolomexperimenten

### 4.1 Concentratiemetingen via troebelheid vs. gewogen massa

Initieel zijn voor de dosering van de actief-koolconcentratie tijdens de experimenten gebaseerd op de troebelheidsmetingen en een vooraf bestaande ijklijn in Bijlage V.II. De berekende concentraties zijn vervolgens vergeleken met de na afloop van de serie experimenten gewogen concentraties actief kool (ofwel de concentratie gesuspendeerde stoffen, Figuur 4-1). Hieruit bleek dat de concentraties op basis van gewogen monsters gemiddeld 2,8 keer hoger dan de concentraties op basis van de vooraf opgestelde troebelheids-ijklijn (bereik: 2,1-4,2). Hierdoor waren de daadwerkelijk gedoseerde concentratie hoger dan initieel beoogd. Dit illustreert dat concentratiemetingen op basis van troebelheid erg gevoelig voor de omstandigheden waaronder de suspensies zijn bereid (bijv. type water (demi, kraan etc.), sonificatie/mengmethode, verdunning etc.). Alle verder gerapporteerde concentraties zijn op basis van de kalibratie op de metingen voor de omstandigheden van het experiment. Voor de bandbreedte aan troebelheid bleek dat de resultaten een vergelijkbare trend lieten zien aan zowel de lage kant (<1 g/L) als de hoge kant (>4 g/L) van de gemeten concentraties.



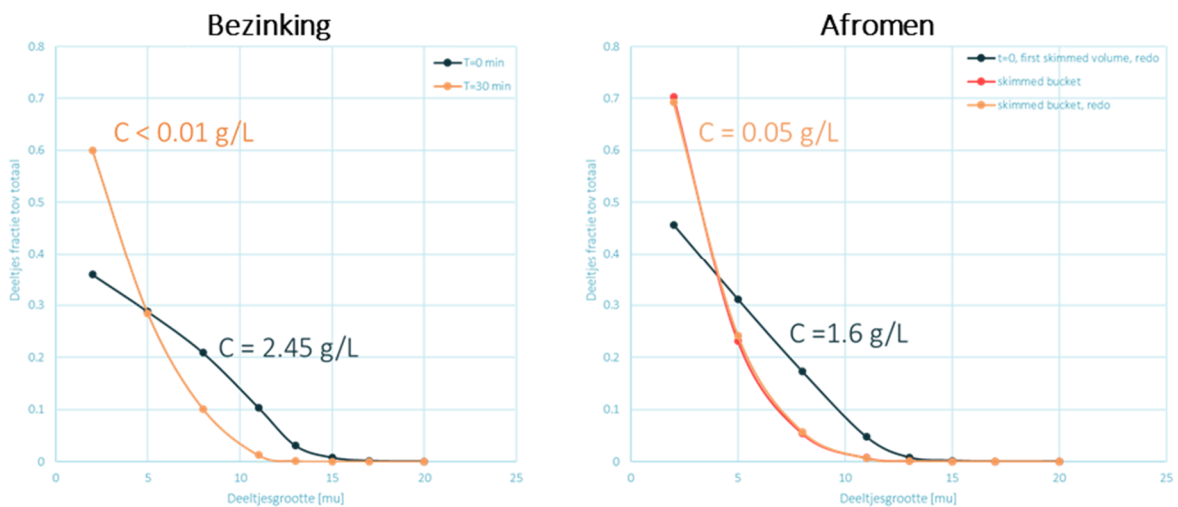
Figuur 4-1. Vergelijking van concentraties actief kool op basis van gewogen monsters en concentraties berekend op basis van turbiditeitsmetingen. De zwarte lijn geeft de 1:1 lijn weer, terwijl de gestippelde blauwe lijn de lineaire trend van de metingen weergeeft.

### 4.2 Vooraf filtreren koalsuspensie

Bij zowel de bezink- als de afroomexperimenten werd zoals beoogd de fractie kleine deeltjes sterk verhoogd (Figuur 4-2). De concentratie kleinste deeltjesfractie (1,00 - 2,99  $\mu\text{m}$ ) steeg respectievelijk van 36% naar 60% voor de bezinkexperimenten en van 45% naar 70% voor de afroomexperimenten. Het totale verlies aan massa was echter in beide gevallen veel te hoog, waardoor de concentratie van de suspensie afnam van 2,45 g/L tot minder dan 0,01 g/L (>99%) voor het bezinkexperiment en van 1,6 g/L tot 0,05 g/L (97%) bij het afromen. Dit is duidelijk te zien op de foto van het bezinkexperiment voor en na in Figuur 4-2, boven. Bij het filtratie-experiment leek het effluent visueel nog meer massa kool te behouden dan bij de bezink- en afroomproeven (Figuur 4-3, links), ondanks dat er veel ophoping van actief kool in het filter plaatsvond (Figuur 4-3, rechts). Na filtratie hadden de twee suspensies een concentratie van respectievelijk 1,2 g/L en 0,36 g/L; een massaverlies van respectievelijk 80% en 94%.

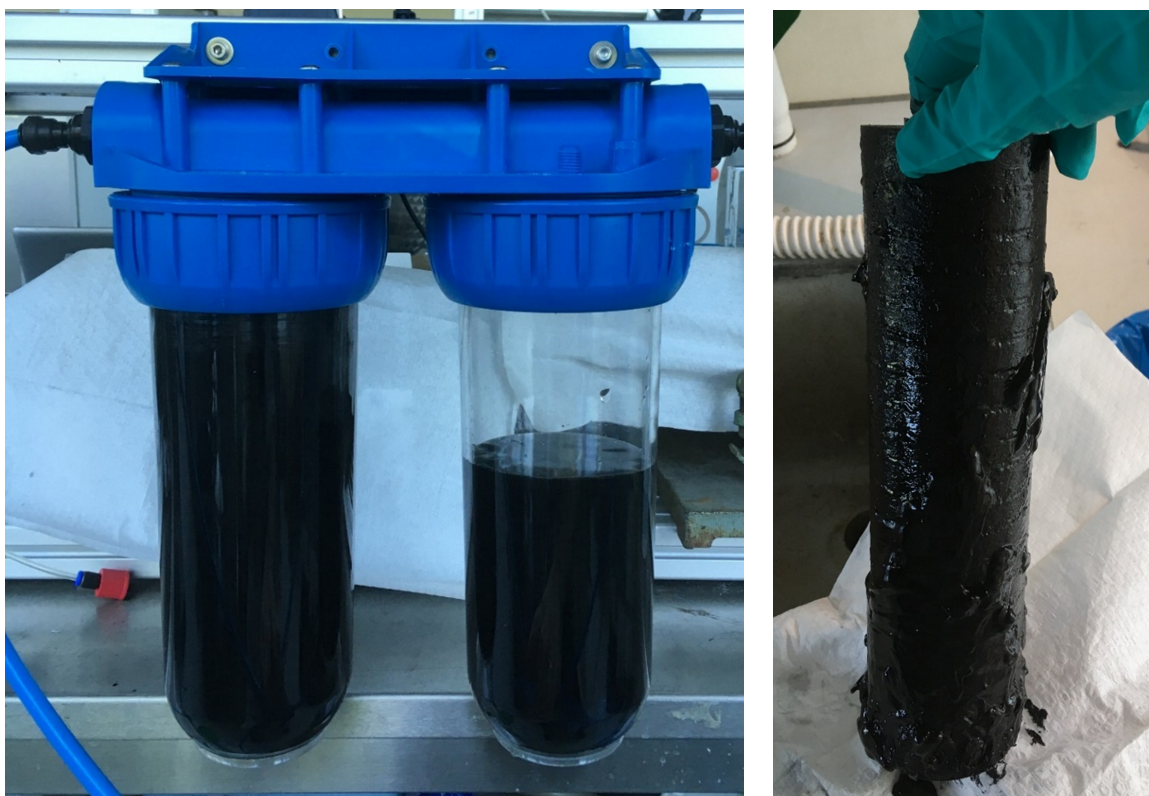
Kijkend naar de resulterende korrelgrootteverdeling dan lijkt de filtratie hierop echter geen groot effect te hebben gehad. De concentratie aan deeltjes lijkt over het gehele spectrum in min of meer gelijke mate te zijn afgenomen.

Het uitfilteren van deeltjes kleiner dan  $10\ \mu\text{m}$  (de filtergrootte van het kaarsenfilter) komt waarschijnlijk doordat de verstopping van het membraan door een deel van de grotere deeltjes er voor zorgden dat ook kleinere deeltjes er niet meer door konden. Er lijkt wel een licht effect te zijn op de allergrootste fractie actief kool ( $> 20\ \mu\text{m}$ , Figuur 4-4, rechts), welke maar een zeer klein deel uitmaakt van de totale verdeling (mediaankorrelgrootte van  $\sim 4\ \mu\text{m}$ ). De afname van de gemiddelde fractie deeltjes  $> 20\ \mu\text{m}$  was 16% na filtratie. Het is onduidelijk hoe het kan dat ook deeltjes groter dan  $> 10\ \mu\text{m}$  door het membraanfilter zijn gekomen. Opgemerkt moet worden dat het aantal deeltjes  $> 20\ \mu\text{m}$  drie tot vier orde van grootte kleiner is dan het aantal kleine deeltjes ( $1\text{-}3\ \mu\text{m}$ ) en dat de grens aan wat de deeltjesteller nauwkeurig kan meten daardoor bereikt werd.

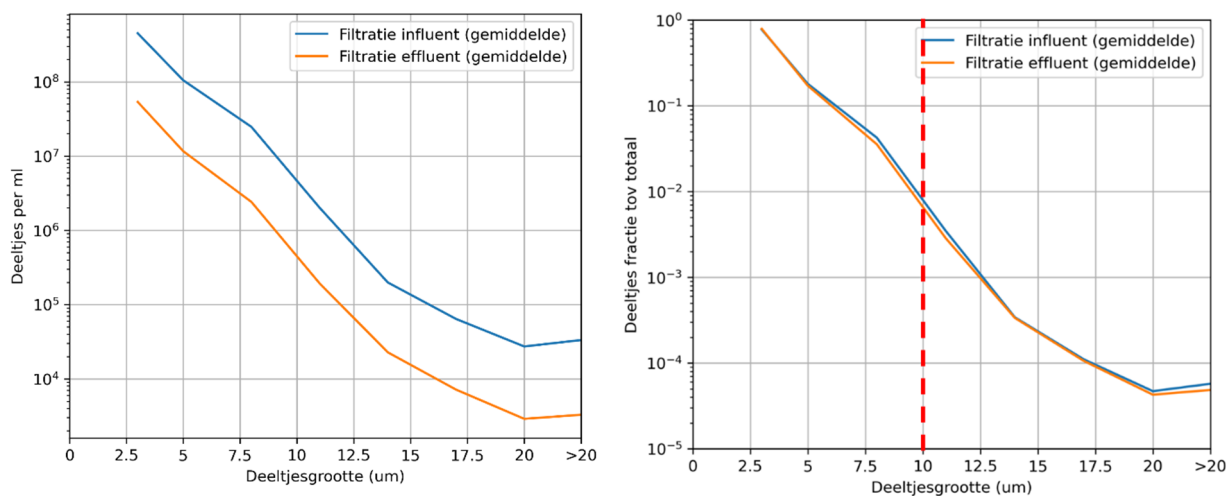


Figuur 4-2. Boven: de suspensie voor en na het zinkexperiment, onder: de relatieve concentratie per deeltjesgroottefractie voor en na de bezink- en afromexperimenten.





Figuur 4-3. Links: Het influent (linker cartridge) en effluent (rechter cartridge) tijdens filtratie. Rechts: het kaarsenfilter toen het werd vervangen, met duidelijke ophoping van koolstof op het membraan.



Figuur 4-4. Effect van het kaarsenfilter op de gemiddelde deeltjesconcentraties (links) en de fractie van de deeltjesgroottes (rechts). De rode stippellijn geeft de membraangrootte van 10  $\mu\text{m}$  aan.

### 4.3 Kolomexperimenten

In totaal zijn 5 verschillende kolomexperimenten uitgevoerd, zoals toegelicht in 3.2.6. Experimenten 2, 3 en 4 kunnen zijn met verschillende stroomsnelheden na elkaar op dezelfde kolom uitgevoerd. De belangrijkste kwantitatieve uitkomsten van deze experimenten zijn samengevat in Tabel 4-1.

Tabel 4-1. Samenvatting van belangrijkste kwantitatieve uitkomsten van de 5 kolomexperimenten, plus de drie experimenten op de met het grindige mengsel gevulde kolom (2, 3 en 4). \*Waardes bepaald na het terugspoelen.

Experiment	Exp. 1	Exp. 2	Exp. 3	Exp. 4	Exp. 2,3,4 (cumulatief)	Exp. 5
	Middelgroot zandmengsel	Fijn grindmengsel	Fijn grindmengsel – 0,5 x snelheid	Fijn grindmengsel – 2 x snelheid	Fijn grindmengsel experimenten cumulatief	Middelgroot zandmengsel – vooraf gefiltreerd

#### Massabalans koolinjectie

Aantal porievolumes geïnfilteerd (#)	2,4	12,3	10,5	11,7	34,4	25,5
Koolconcentratie (g/L)	5,9	4,7	5,5	6,6	-	1,2 en 0,36
Geïnjecteerde massa (g)	24,4	88,1	83,7	116,6	288,4	25,3
Massa in effluent (g)	0,0	36,2	53,6	54,3	144,1	0,0
In kolom vastgehouden massa (g)	24,3	51,9	30,1	62,3	144,3	25,3
In kolom vastgehouden massa / geïnjecteerde massa (%)	100%	59%	36%	53%	50%	100%

#### Massabalans terugspoelen

Teruggespoelde massa (g)	3,2	n.v.t.	n.v.t.	n.v.t.	21,5	5,7
In kolom vastgehouden massa na terugspoelen (g)	21,2	n.v.t.	n.v.t.	n.v.t.	122,7	19,6
Teruggespoelde massa / geïnjecteerde massa (%)	13%	n.v.t.	n.v.t.	n.v.t.	7%	23%

#### Verspreiding van kool in kolom

% kolom bezet met koolsuspensie	47%*	100%	100%	100%	100%*	18%*
Koolconcentratie in bezet deel kolom (g/L, cumulatief)	25,8*	33,5	52,9	93,0	79,1*	65,2*
Percentage 'bezet' deel kolom gevuld met kool (cumulatief)	9%*	12%	19%	33%	28%*	23%*

#### Effect op doorlatendheid

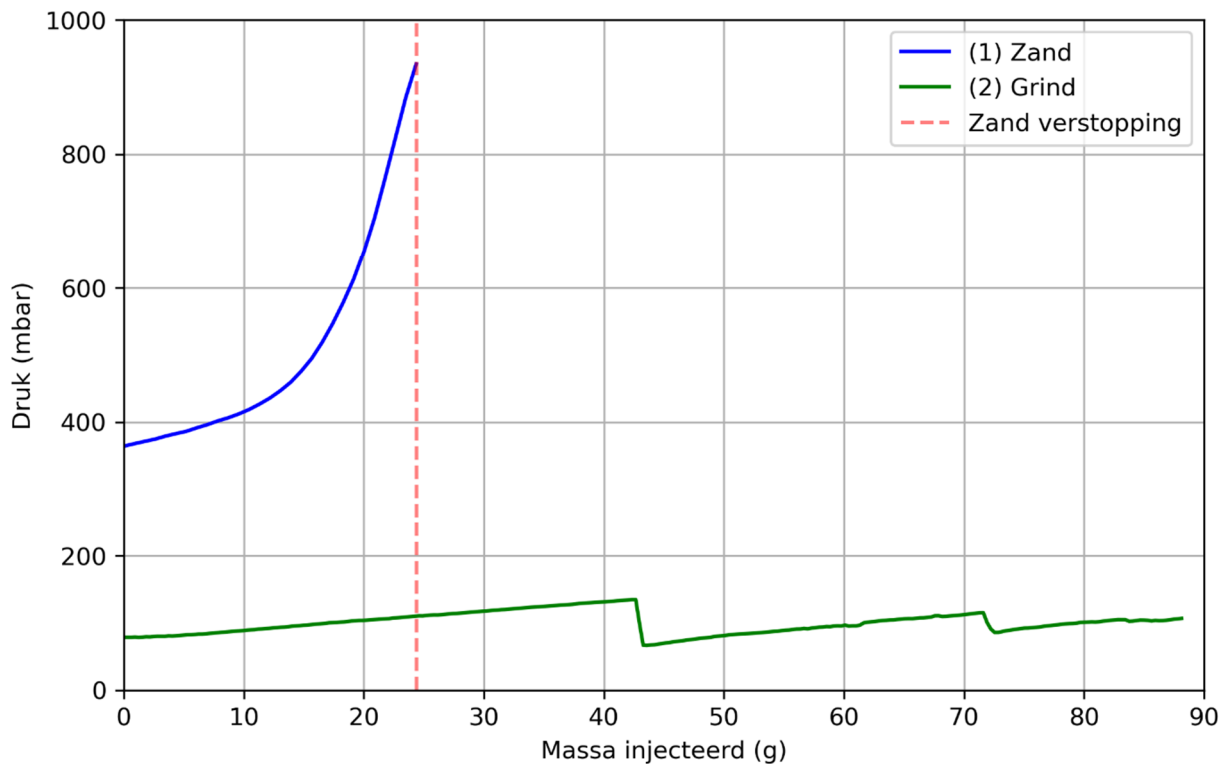
Doorlatendheid initieel (m/d)	25,0	102,8	-	-	-	25,7
Doorlatendheid na afloop (m/d)	9,8	-	-	-	94,8	16,9
Afname in doorlatendheid / gram geïnfilteerd kool (%)	2,5%	-	-	-	0,03%	1,4%

#### 4.3.1 Experiment 1: Middelgroot zandmengsel

Bij experiment 1 is geïnjecteerd met een concentratie actief kool van 5,9 g/L (Tabel 4-1). Hierbij raakte de kolom verstopt na injectie van 2,4 porievolumes (PV). Het optreden van 'verstopping' van de kolom werd hierbij gedefinieerd als de druk waarbij de slangverbinding bij de inlaat het begaf. Dit vond plaats bij een druk van 934 mbar (Figuur 4-6), equivalent aan 9,3 m waterkolom. In totaal werd tijdens het experiment ongeveer 24,4 g actief kool geïnjecteerd. De horizontale verspreiding van het kool in de kolom na afloop van de injectie is te zien in Figuur 4-5. De kolom is na afloop van de injectie nog teruggespoeld (2,5 PV) waarbij 3,15 g kool is teruggewonnen (13%): 21,2 g actief kool bleef dus achter in de kolom.



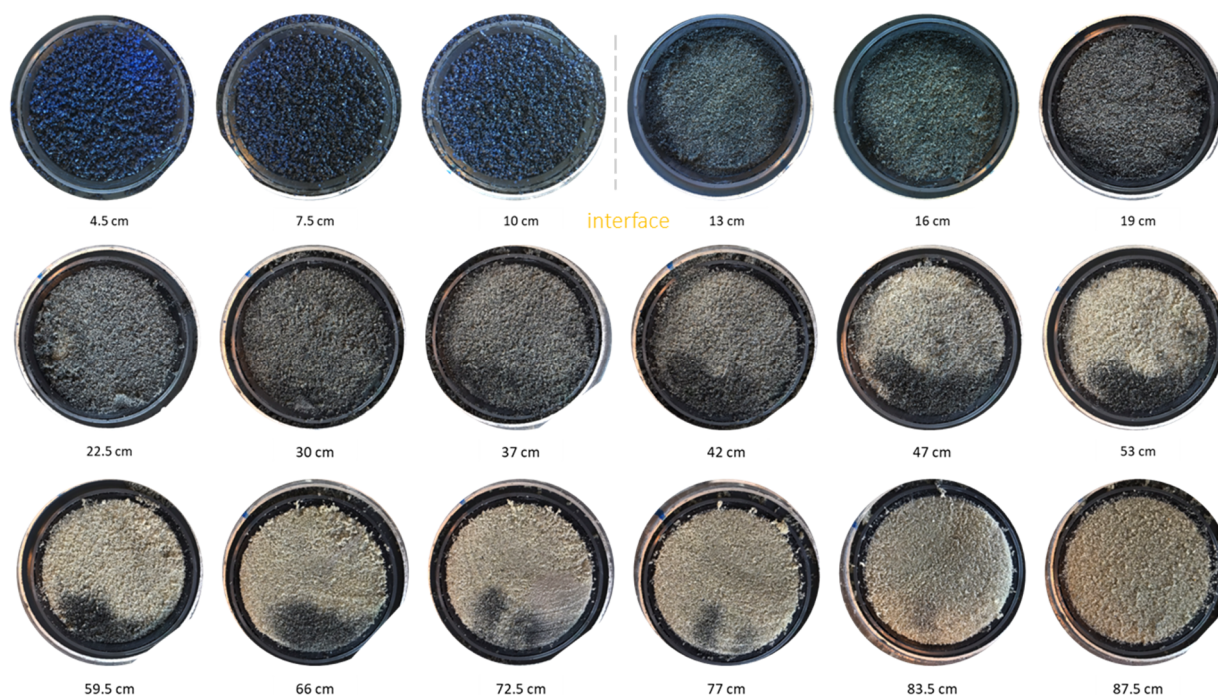
Figuur 4-5. Resultaten Experiment 1: De zandkolom na injectie van 24,4 g Cabot SA UF actief kool. Het aangebrachte filtergrind was 11 cm dik, het grensvlak tussen filtergrind en het formatiemateriaal (de boorgatwand) wordt aangegeven door de gele stippellijn.



Figuur 4-6. Druk als functie van de geïnjecteerde massa voor experimenten 1 (zand) en 2 (grind). De rode stippellijn geeft de massa actief kool aan waarbij de slang van de kolom het begaf (kolom verstopt) in experiment 1.

Na het terugspoelen werd autopsie gepleegd op de kolom (zie sectie 3.2.6) om de verspreiding van het actief kool in detail te kunnen observeren en te controleren in welke mate bijvoorbeeld wandstroming en zwaartekrachtseffecten optreden (Figuur 4-7). Te zien is dat het kool een diepte van tussen  $L = 83,5$  en  $87$  cm had bereikt. Wandstroming was zichtbaar tot  $L = 20$  cm, waar de randen duidelijk donkerder waren dan het binnenste deel.

Actief kool was zichtbaar in het geheel van de doorsneden bij  $L < 42$  cm. Na  $47$  cm was actief kool met het oog alleen zichtbaar in een traject langs de onderkant van de kolom. Interessant is dat de stroming daarbij niet preferentieel langs de kolomwand lijkt te gaan. Op basis van de autopsie lijkt ongeveer 47% van het totale kolomvolume bezet door de koalsuspensie (na terugspoelen). Dit betekent een gemiddelde concentratie in dat deel van de kolom van  $\sim 25,8$  g/L. Uitgaande van de door Cabot gerapporteerde dichtheid van  $282$  kg/m<sup>3</sup> betekent dat dat van de poriën met actief kool ongeveer 9% hiervan ingenomen werd door kool deeltjes ( $f_p^{AC} = \sim 0,9$ ).



*Figuur 4-7. Resultaten Experiment 1: Dwarsdoorsneden met toenemende diepte in de kolom, na afloop van het experiment. Het aangebrachte filtergrind was 11 cm dik, het grensvlak tussen en filtergrind en het formatiemateriaal (de boorgatwand) wordt aangegeven door de stippellijn. De dwarsdoorsneden tonen geconcentreerd actief kool op de wanden aan het begin van het zandpakket ( $L < 20$  cm). Poriën over de hele doorsnede van de kolom zijn gevuld met AC tot  $\sim 42$  cm, waarna twee preferentiële stroombanen aan de onderkant van de kolom zichtbaar zijn tot  $L = 83,5$  cm. Er is geen actief kool zichtbaar vanaf  $L = 87,5$  cm.*

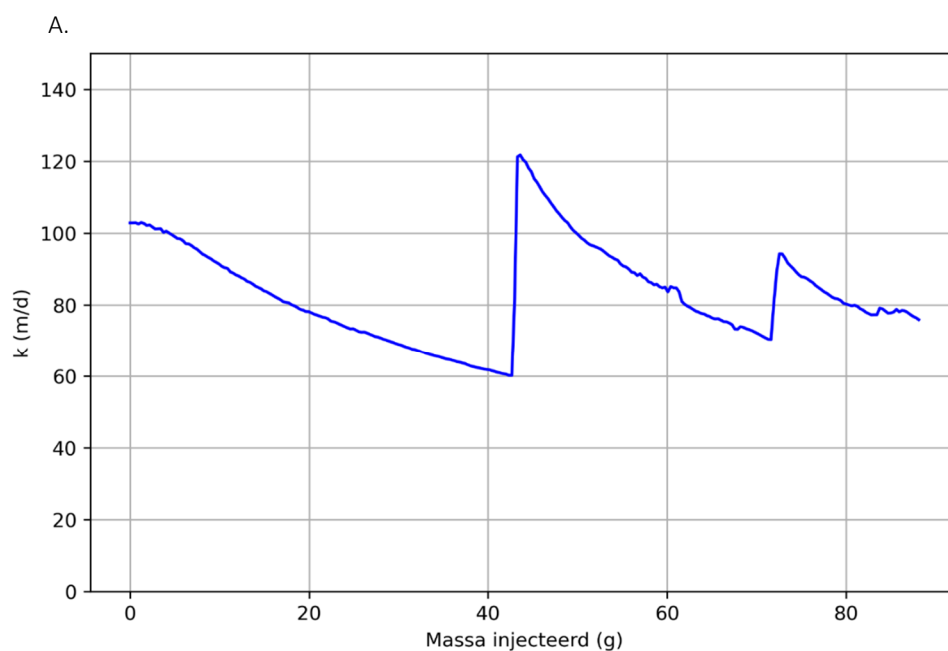
### 4.3.2 Experiment 2: Fijn grindmengsel

De concentratie actief kool in de suspensie die in de grindkolom is geïnjecteerd was 4,7 g/L (Tabel 4-1). Het experiment is gestopt na injectie van 12 PV, en in tegenstelling tot experiment 1 (verstopping na injectie van 2,4 PV) raakte deze kolom hierbij niet verstopt. In totaal werd 88,1 g actief kool geïnjecteerd (Figuur 4-8 A). Visueel bereikte het koolstofmengsel het einde van de kolom (1,11 m) na 4,4 PVs. Dit werd bevestigd door troebelheidsmetingen van het effluent tijdens het experiment.

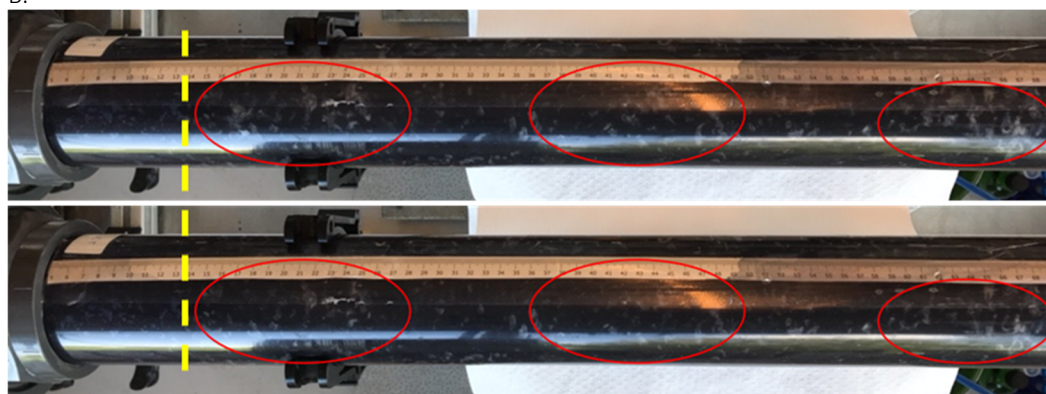
Het drukprofiel gedurende de injectie toont twee periodes van verminderde doorlatendheid (toename in druk) gevolgd door een plotselinge daling in druk en toename van de permeabiliteit. Dit vond plaats bij ongeveer 40 g en 70 g geïnjecteerd actief kool (Figuur 4-8 A). Op de time-lapse-foto's van de injectie is te zien dat de veranderingen in doorlatendheid optraden wanneer delen van de kolom zich abrupt vulden met kool. In sommige gevallen lijken dit met lucht gevulde gebieden in de kolom te zijn, in andere zijn het waterverzadigde gebieden die plotseling met actief kool gevuld werden. Het voorkomen van met lucht/CO<sub>2</sub> gevulde delen van de kolom na het aanvullen en doorspoelen voorafgaand aan de experimenten heeft waarschijnlijk te maken met dat het, anders dan bij de zandkolom, bij het vullen van de kolom met een grindmengsel moeilijker was om de kolom vooraf volledig te verzadigen. Dit door de sterke voorkeursstroming tijdens het spoelen.

De gemiddelde concentratie van kool in de kolom bij doorbraak was 20,7 g/L en aan het einde van het experiment 33,5 g/L. Het hele poriënvolume van de kolom was dus deels bezet met actief kool. De poriënfraction bezet door actief kool ( $f_p^{AC}$ ) bij doorbraak was  $\sim 7\%$  en aan het eind van het experiment  $\sim 12\%$ .





B.

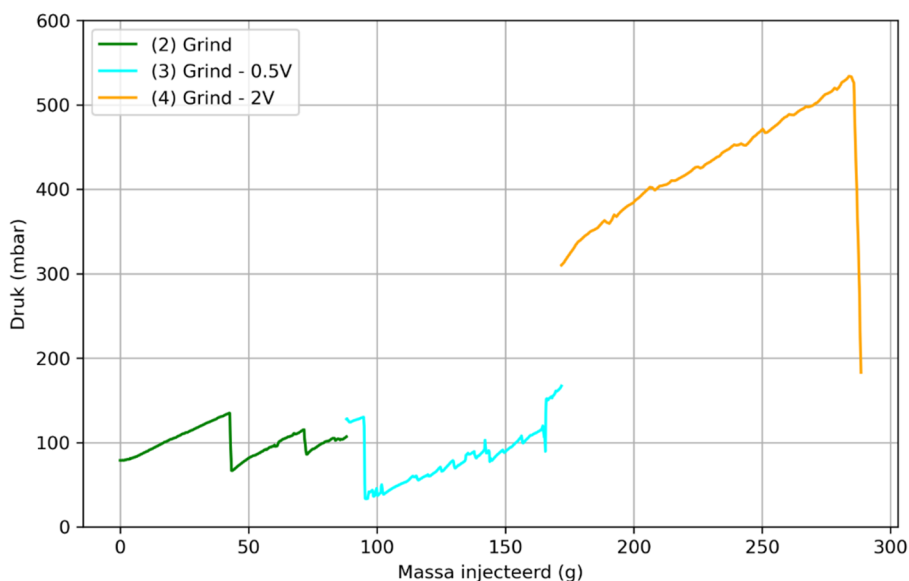


Figuur 4-8 A. Resultaten Experiment 2. A: Hydraulische geleidbaarheid als functie van de geïnjecteerde massa actief kool. Periodes van sterke toename in de geleidbaarheid komen overeen met momenten van doorbraak van het kool naar tot dan toe niet gevulde delen van de kolom in de time-lapse foto's. B. De bovenste foto toont gebieden die niet gevuld zijn met actief kool (rood omcirkeld) die 10 seconden later plotseling gevuld wel gevuld zijn, zoals te zien in de onderste foto. Deze momenten kwamen overeen met de gemeten drukval in de kolom. Het grensvlak tussen en filtergrind en het formatiemateriaal (de boorgatwand) wordt aangegeven door de gele stippellijn op 13,5 cm van de inlaat.

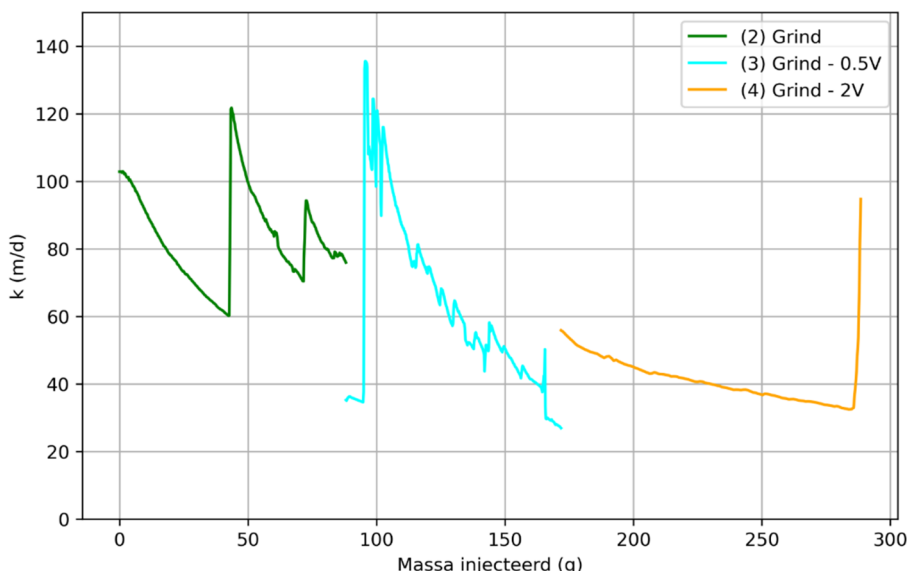
### 4.3.3 Experiment 3: Fijn grindmengsel, 0,5 x stroomsnelheid

Om de invloed van de injectiesnelheid op de injecteerbaarheid van actief kool te onderzoeken is de met het grindmengsel gevulde kolom opnieuw gebruikt na afloop van experiment 2, maar nu geïnjecteerd met de helft van de injectiesnelheid (1,76 m/uur). De concentratie actief kool was 5,5 g/L en een totale massa van 83,7 g is geïnjecteerd tijdens dit experiment (~ 10 PV). De kolom raakte hierbij wederom niet verstopt. De geschatte concentratie van het kool in de kolom aan het einde van experiment 3 was 52,8 g/L en de poriënfractie bezet door actief kool nam toe van 12% naar 19% (Tabel 4-1).

De druk van de kolom daalde kort na het begin van experiment 3 van 130 naar 33 mbar, gevolgd door een gestage toename van de druk in de loop van het experiment (Figuur 4-9). Het verloop in de berekende doorlatendheid van de experimenten wordt getoond in Figuur 4-10. Opgemerkt moet worden dat er 56 dagen zaten tussen experiment 2 en 3 wat mogelijk geresulteerd kan hebben in verschuivingen in het zand en een verlaging van de doorlatendheid van de kolom. Het stoppen en starten van experimenten, zelfs voor een korte periode, had ook effecten in de experimenten van Lamberts (2020).



Figuur 4-9. Druk als functie van de geïnjecteerde massa voor experimenten 2 tot 4 in de grindkolom. De experimenten werden achtereenvolgens uitgevoerd, daarom toont de x-as de cumulatieve massa geïnjecteerde koolstof.



Figuur 4-10. Doorlatendheid als functie van de geïnjecteerde massa in de fijn grindkolommen. De experimenten zijn achtereenvolgens uitgevoerd op dezelfde grindkolom.

**4.3.4 Experiment 4: Fijn grindmengsel, 2 x stroomsnelheid**

De injectieconcentratie in dit experiment was 6,6 g/L gedurende 11,7 PV. De hierbij geïnjecteerde massa was 116,6 g waarvan 62,3 g (53%) achterbleef in de kolom (Tabel 4-1). Alhoewel de volledige kolom dus bij aanvang van het experiment al gevuld was met koolhoudend water liep de geschatte gemiddelde concentratie van het kool in de kolom dus verder op naar 93 g/L, ofwel een door actief kool bezette poriëfractie ( $f_p^{AC}$ ) van 33%. Ook tijdens dit experiment was weer gestage afname in de doorlatendheid (toename in injectiedruk) te zien, gevolgd door een drastische daling in druk en toename van de permeabiliteit aan het eind van het experiment (Figuur 4-10). Netto was er gedurende dit experiment dus een toename in doorlatendheid van aanvankelijk bijna 60 m/d tot bijna 100 m/d.

**4.3.5 Resultaten van opeenvolgende injecties experimenten 2, 3 en 4**

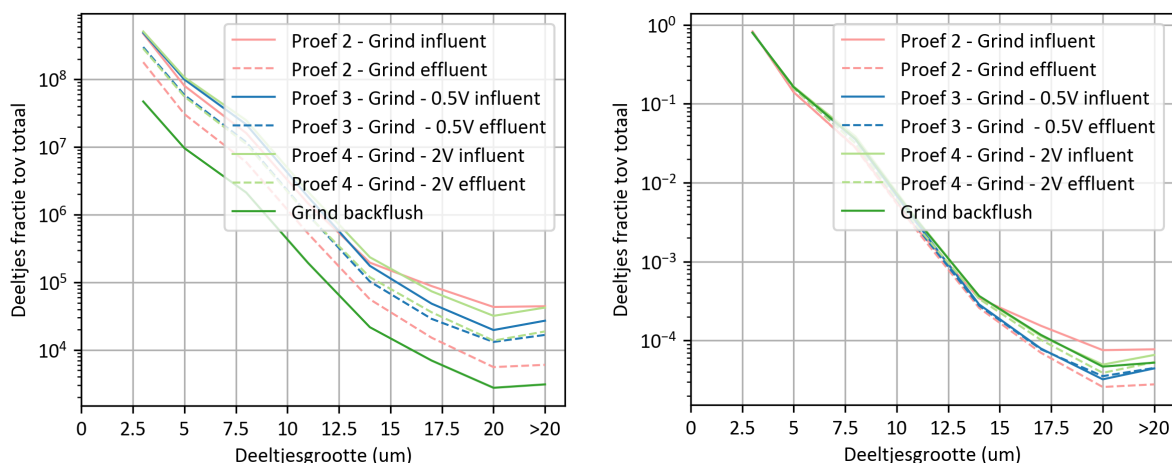
Totaal is er bij de experimenten 2, 3 en 4 288,4 g kool geïnjecteerd in de kolom gevuld met het fijne grind. Daarvan is 144,3 g achtergebleven in de kolom, evenveel als de hoeveel kool gemeten in het effluent (144,1, ofwel een

massaretentie van 50%). Voor het terugspoelen kan de gemiddelde koolconcentratie in de kolom geschat worden op 93 g/l. Uitgaande van een dichtheid van het kool van 282 kg/m<sup>3</sup> nam dit gemiddeld 33% van het totale porievolume in beslag. Na afloop van experiment 4 is de kolom teruggespoeld waarbij 21,5 gram kool weer is teruggespoeld (7% van het totaal). De gemiddelde concentratie nam daardoor af tot 79 g/l en de geschatte volumefractie bezet door het kool tot 28% (Tabel 4-1).

Elk van de drie injectie-experimenten in de met grind gevulde kolom laat perioden met geleidelijke drukstijging zien, gevolgd door scherpe dalingen in de druk (Figuur 4-9 en Figuur 4-10). Aan het eind van de experimenten was de doorlatendheid van de kolom (94,7 m/dag) echter slechts 8% minder dan de initiële doorlatendheid (103 m/dag). Netto is er dus na injectie van ruim 34 porievolumes en 144 g kool bijna geen sprake van een vermindering in doorlatendheid; een groot verschil met de zandkolom van experiment 1 waar het verlies in doorlatendheid per gram geïnjecteerde actief kool aanzienlijk groter is (Exp. 1 = 2,5 % per gram, Exp. 2-4 0,03 % per gram). De grindkolom lijkt dus ook niet te verstopen. Een duidelijk effect van de stroomsnelheid op het verstoppingsgedrag is op basis van deze experimenten dan ook niet waar te nemen.

De geschatte fractie van het porievolume dat daadwerkelijk bezet werd door actief kool ( $f_p^{AC}$ ) steeg van 7% tot 33% (28% na het terugspoelen). De (bulk) effluentconcentraties van elk experiment waren respectievelijk 1,9, 3,0 en 3,3 g/L. Daaraan is dus te zien dat door de steeds groter wordende bezetting van de porieruimte met kool ook een steeds grotere fractie van het geïnjecteerde kool door de kolom heen stroomt zonder immobilisatie – in dit geval vooralsnog zonder een drastisch effect op de doorlatendheid. De kolom lijkt geen steady state te hebben bereikt, aangezien de massa-retentie in experiment 4 nog wel toenam.

De korrelgrootteverdeling van deze bulkmonsters is bepaald met behulp van de deeltjesteller (Figuur 4-11). De resultaten tonen aan dat de effluentsuspensie meer lijkt op de influentsuspensie voor experimenten 3 en 4 dan voor experiment 2. Bij experiment 2 was de fractie deeltjes > 15 µm in het effluent significant lager dan die van het influent. Dit duidt op meer retentie of vertraging van het transport van deze grotere deeltjes in de kolom.



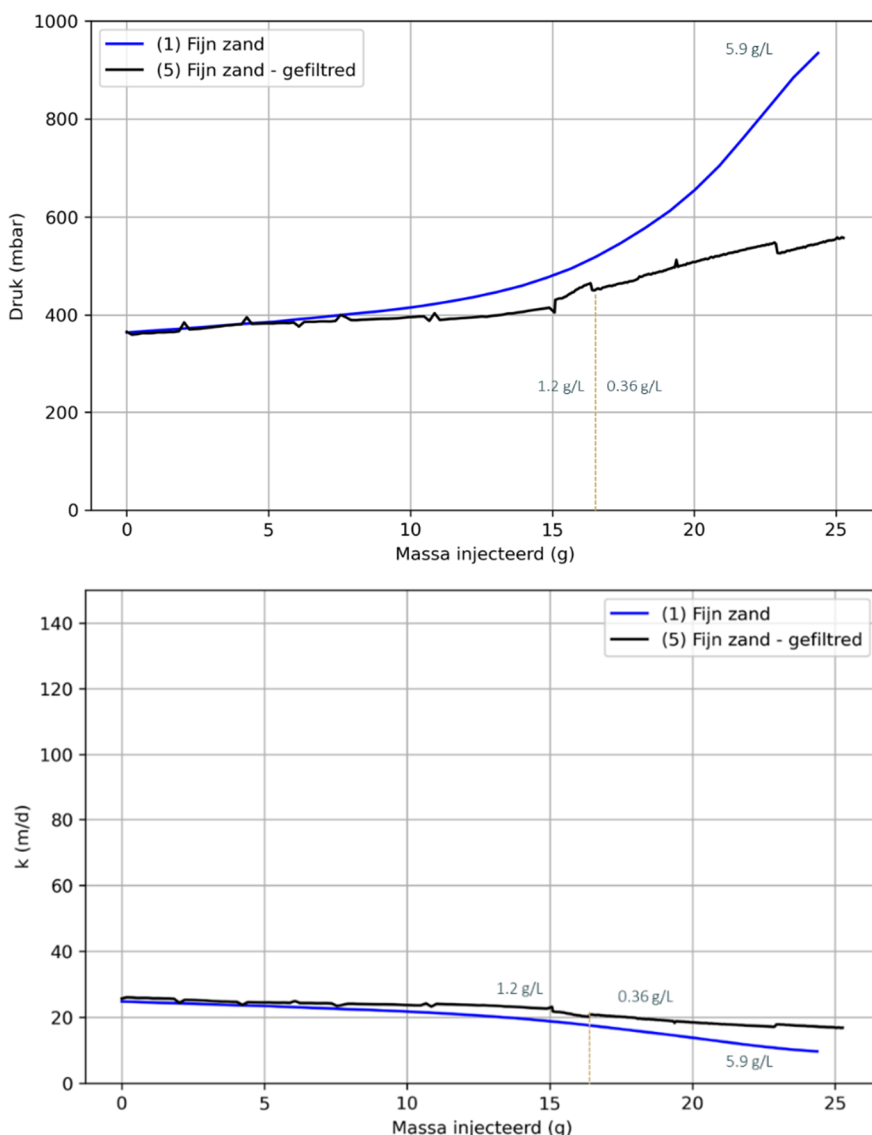
Figuur 4-11. De absolute (links) en relatieve (rechts) concentratie van deeltjes in het influent en effluent voor de experimenten in de grindkolom (2, 3 en 4).

#### 4.3.6 Experiment 5: Gefiltreerd actief kool (middelgroot zandmengsel)

Om het effect van de deeltjesgrootte van het actief kool op de mate van verstopping te bepalen is een suspensie van 2 g/L actief kool (zoals gemeten door o.b.v. de troebelheid) gefilterd over een 10 µm kaarsfilter (zie paragraaf 3.2.7). Filtratie verwijderde 80% en 94% van de massa actief kool in suspensies 1 en 2 van de filtratieproef, zodanig dat de uiteindelijk gebruikte, na elkaar gefiltreerde gefilterde suspensies een concentratie hadden van 1,2 en 0,36 g/L. Het gefilterde effluent is vervolgens in een nieuwe zandkolom geïnjecteerd, gevuld met een nieuw zandmengsel

met dezelfde korrelgrootte verdeling als gebruikt in experiment 1. De hydraulische geleidbaarheid van deze twee kolommen was zeer vergelijkbaar: 25,0 en 25,7 m/d voor respectievelijk experiment 1 en 5 (Tabel 4-1).

Bij dit experiment is in totaal 25,3 g actief kool geïnjecteerd, vergelijkbaar met de geïnjecteerde massa bij experiment 1 (24,4 g). De druk die tijdens de injectie werd opgebouwd was echter duidelijk lager dan in experiment 1; voor dezelfde geïnjecteerde massa was er slechts de helft van de drukstijging ( $\Delta P_1 = 570$  vs.  $\Delta P_5 = 230$  mbar). De kolom is bij dit experiment i.t.t. bij experiment 1 dan ook niet verstopt geraakt, al was dit hoogstwaarschijnlijk wel gebeurd wanneer de proef langer was doorgezet omdat gemiddeld de druk wel toe bleef nemen. De hydraulische geleidbaarheid van de kolom daalde met 1,4% per gram geïnjecteerde actief kool, vergeleken met 2,5% per gram voor experiment 1 (Figuur 4-12). Na afloop van experiment 5 is de kolom teruggespoeld waarbij 5,7 gram kool weer is teruggespoeld (23% van het totaal).



Figuur 4-12. Geïnjecteerde massa kool t.o.v. de drukopbouw (boven) en de berekende doorlatendheid (onder) voor experimenten 1 en 5. De stippellijn geeft het moment aan waarop de injectiesuspensie voor experiment 5 overschakelde van een 1,2 g/L oplossing naar een 0,36 g/L oplossing.

Naast het verschil in drukopbouw was de diepte die het kool bereikte in de kolommen in experiment 5 aanzienlijk kleiner dan in experiment 1 en was het injectiefront daarnaast ook veel homogener verdeeld over de doorsnede van kolom (Figuur 4-13). Terwijl dezelfde hoeveelheid kool is geïnjecteerd bereikte dit in experiment 5 een diepte

van slechts 19-21 cm t.o.v. > 83 cm in experiment 1. Een zeer dunne laag actief kool (< 1 mm) was zichtbaar langs de wanden tot een diepte van 39 cm (Figuur 4-14), wat zeer geringe wandstroming in de kolom aantoonde.

De gemiddelde koolconcentratie in de kolom na terugspoelen was  $\sim 65.2$  g/L, waarbij ongeveer 18% van het totale porievolume van de kolom actief kool bevatte (dit is exclusief de geobserveerde zeer dunne laag langs de wanden van de kolom). Dit geeft aan dat in dit gebied gemiddeld 23% van het totale porievolume bezet was met het kool. Daarentegen had bij experiment 1  $\sim 47\%$  van het totale poriënvolume van de kolom enige geactiveerde koolstof maar met een veel lagere concentratie (21 g/l) en door kool bezette volumefractie (9%).



Figuur 4-13. Resultaten Experiment 5. A: Bovenaanzicht van de verspreiding van het actief kool in de bij experiment 5 gebruikte kolom na injectie van 25.3 g Cabot SA UF actief kool. Hierbij was de koalsuspensie van te voren gefiltreerd met met een 10  $\mu$ m kaarsfilter. B: Dwarsdoorsneden van de verspreiding van het actief kool bij experiment 5 met toenemende lengte. De gele stippellijn geeft het grensvlak weer tussen het filtergrind en het formatiemateriaal (ofwel de boorgatwand) op 12,5 cm van de inlet.





*Figuur 4-14. Wandstroming zichtbaar op 23,5 cm diepte in het geëxtraheerde deel van de kolom tijdens de autopsie (links). Effecten van wandstroming zijn nagenoeg niet zichtbaar in de dwarsdoorsnede (rechts).*



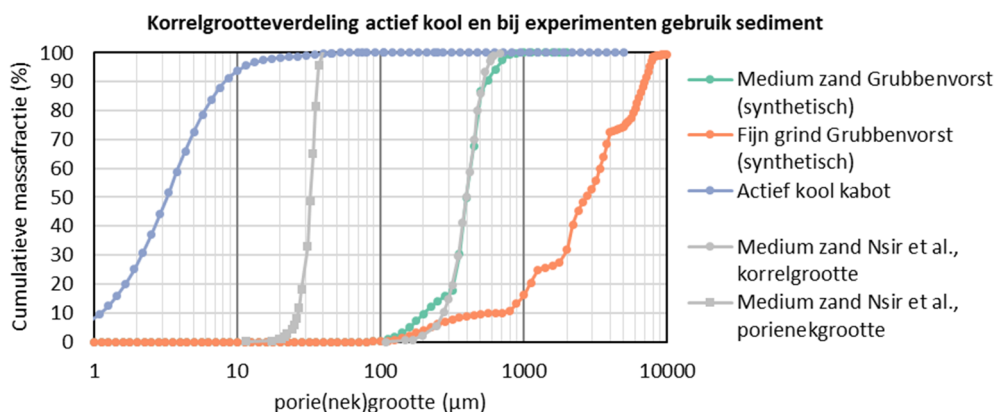
## 5 Discussie

### 5.1 Bepalende factoren doorlatendheidsreductie bij actiefkoolinjectie

#### 5.1.1 Verhouding korrelgrootte sediment en actief kool

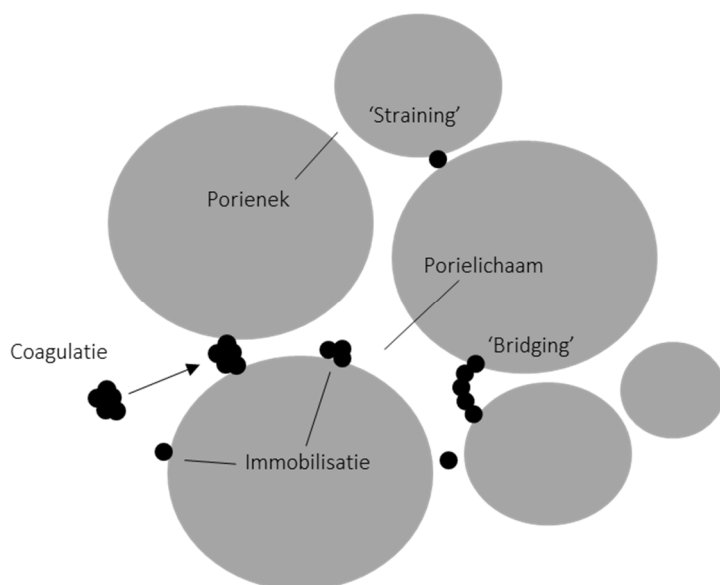
De uitkomsten van de experimenten wijzen op een sterk effect van de korrelgrootteverdeling, en de daarvan afhankelijke poriënegrootteverdeling, van de formatie op de mate van verstopping. Het belangrijkste bewijs hiervoor is dat bij de experimenten in de met het fijne grind gevulde kolom ( $d_{50}$  van 2,9 mm, analoog aan het zeer goed doorlatend onderste deel van de aquifer in Grubbenvorst) meer dan elf keer zoveel actief kool kon worden geïnjecteerd dan in de zandkolommen (288,4 g t.o.v. ~25 g) zonder substantiële afname in doorlatendheid. Bij de 2 experimenten met kolommen gevuld met een middelgroot zandmengsel ( $d_{50}$  van 0,4 mm, analoog aan het minder doorlatende bovenste deel van de aquifer) leidde dit wel tot significante afname in doorlatendheid en toename in druk. Bij experiment 1 liep de druk zelfs zo ver op (934 mbar of 9,3 m waterkolom) dat de slangverbinding bij de inlaat van de kolom het begaf. De kolom was in die zin dus daadwerkelijk verstopt geraakt, overeenkomstig met wat er bij de veldproef plaatsvond.

Per gram geïnjecteerd actief kool was de doorlatendheidsreductie aan het eind van de experimenten op de met het grindmengsel gevulde kolom slechts 0,03%. Bij de zandkolommen was dit veel hoger: 2,5% en 1,4% per gram kool bij respectievelijk experiment 1 en experiment 5. De verstopping/doorlatendheidsreductie door de geïnfiltreerde koalsuspensie ( $d_{50} = 3.7 \mu\text{m}$ ) trad dus op in de kolommen met zand met een gemiddelde korrelgrootte van 0,4 mm (ofwel  $400 \mu\text{m}$ , Figuur 5-1).



Figuur 5-1. Cumulatieve frequentieverdeling van de korrelgroottes van het actief kool ( $d_{50} = 3.7 \mu\text{m}$ ) en het bij de experimenten gebruikte zand ( $d_{50}$  van 0,4 mm) en grind ( $d_{50}$  2,9 mm). Ook getoond is de grootteverdeling van een middelgroot zand met vergelijkbare korrelgrootteverdeling waarvoor ook de grote van de poriënkken ingeschat zijn door Nsir & Schäfer (2010).

Uiteindelijk wordt de mogelijkheid voor transport van kleine zwevende deeltjes (ook wel colloïden genoemd) met een bepaalde grootte(verdeling) bepaald door de grootte(verdeling) van de poriënkken waar de colloïden doorheen (Figuur 5-2). Een poriënek is het dunste deel van een porie waar een deeltje doorheen moet. Wanneer een getransporteerd deeltje groter is dan een poriënek en daarin geblokkeerd raakt wordt ook wel gesproken van 'straining'. Straining kan uiteindelijk leiden tot een afname in doorlatendheid (Bradford et al., 2003).

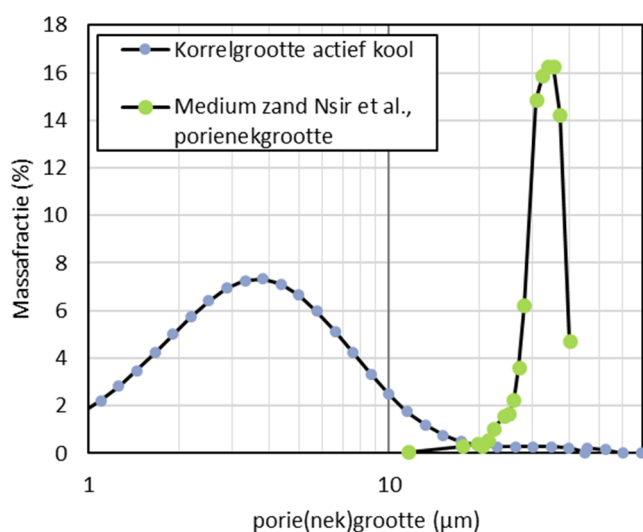


Figuur 5-2. Schematische weergave van de transport van kleine deeltjes (colloïden) door een aquifer (sedimentkorrels in grijs, deeltjes in zwart) en de relevante processen die tot immobilisatie en uiteindelijk verstopping kunnen leiden.

Op basis van experimenteel onderzoek stellen Bradford et al. (2004) dat straining een relevant mechanisme wordt wanneer de verhouding tussen de korrelgrootte van de colloïde en dat van het poreus medium ( $d_{50}^{\text{colloïde}}/d_{50}^{\text{pm}}$ ) groter is dan 0,005. Voor de uitgevoerde experimenten met het grindige sediment is deze verhouding kleiner ( $4 \mu\text{m} / 2900 \mu\text{m} \approx 0,001$ ) en mag op basis van deze vuistregel dus geen straining worden verwacht. Dit komt overeen met de experimentele bevindingen gezien er nagenoeg geen doorlatendheidsreductie was bij deze experimenten. Voor het zandige sediment was deze verhouding groter ( $4 \mu\text{m} / 400 \mu\text{m} = 0,01$ ) dan de kritieke waarde van Bradford et al. (2004). Op basis van dit criterium is het dus aannemelijk dat straining hier inderdaad een significant mechanisme van retentie van kool in het poreus medium was, leidend tot de geobserveerde afname in doorlatendheid. Recenter onderzoek (Molnar et al., 2015) op het gebied van straining suggereert dat de verhouding waarbij straining op kan treden zelf nog lager kan zijn (0,0001).

De daadwerkelijke grootteverdeling van de poriën is in de praktijk lastig te bepalen. Er bestaan empirische relaties die de mediane korrelgrootte van het poreus medium ( $d_{50}^{\text{pm}}$ ) relateren aan de mediane poriëngrootte (bijvoorbeeld:  $d_{50}^{\text{porie}} = d_{50}^{\text{pm}} / 6,49$ ) (de Zwart, 2007). Voor het gebruikte zand in deze experimenten zou dit een poriëngrootte van  $400/6,49 = 61,6 \mu\text{m}$  betekenen – nog altijd aanzienlijk groter dan zelfs de grotere koolkorrels ( $d_{90}$  van  $9,45 \mu\text{m}$ ). Deze relaties geven echter geen volledige beschrijving van de poriëngrootte, omdat ook hierbij de verdeling ervan belangrijk is.

Op basis van een complex model is door Nsir & Schäfer (2010) een grootteverdeling van poriën geconstrueerd voor een zand waarvan de korrelgrootteverdeling toevallig sterk overeenkomt met het in de experimenten gebruikte zand (Figuur 5-1). Alhoewel de berekende mediaan poriëngrootte ( $\sim 35 \mu\text{m}$ ) nog altijd groter is dan het overgrote deel van de kooldeeltjes is wel duidelijk te zien dat er overlap is in grootte tussen het kleinste deel van de poriën en het grootste deel kooldeeltjes (Figuur 5-3). Ook dit geeft dus aan dat blokkade van de kleinere poriën door straining er waarschijnlijk toe heeft geleid dat een groot deel van de stroombanen geblokkeerd is geraakt bij zowel de kolomexperimenten met het zand, als in de praktijk in het zandige bovenste deel van de aquifer in Grubbenvorst. Voor de korrelgrootteverdeling van het gebruikte grind hebben Nsir & Schäfer (2010) geen bruikbaar vergelijkingsmateriaal.



Figuur 5-3. Groottefractie van de kooldeeltjes gebruikt voor de experimenten in dit rapport en dat van de poriënneken geconstrueerd voor een vergelijkbaar middelgroot zand ( $\mu\text{m} = 0,4 \text{ mm}$ ) in Nsir & Schäfer (2010).

### 5.1.2 Blokkade door coagulatie en brugvorming van kooldeeltjes

Naarmate de colloïdegrootte afneemt ten opzichte van de poriënegrootte wordt straining een minder waarschijnlijke verklaring voor colloïderetentie (Bradford et al., 2002). Echter, deeltjes die kleiner zijn dan de poriënneken kunnen toch tot blokkades van stroombanen leiden, bijvoorbeeld als meerdere deeltjes tegelijkertijd een porieopening naderen en ze een deeltjesbrug vormen ('bridging'), of als meerdere kleinere deeltjes deeltjes zich aan elkaar hechten (coagulatie). Zowel coagulatie als bridging zijn afhankelijk van de snelheid en concentratie maar bijvoorbeeld ook van chemische eigenschappen zoals de pH van de oplossing (de Zwart, 2007). Immobilisatie van deeltjes in een poreus medium leidt echter niet per definitie tot een afname in doorlatendheid. Deeltjes kunnen zich ook hechten aan het oppervlak van de sedimentkorrels en op die manier geïmmobiliseerd raken zonder poriënneken te blokkeren (Figuur 5-2).

De grote mate van massaretentie en de geschatte door kool bezette poriefractie bij de experimenten op de grindkolom (33%) tonen aan dat bij dit experiment inderdaad sprake was van significante immobilisatie in de porielichamen, zonder dat er aan het eind van de serie experimenten significante afname in doorlatendheid had plaatsgevonden. In vergelijking, bij experiment 1 (in een met zand gevulde kolom) was de geschatte door kool bezette poriefractie slechts 9% maar was de doorlatendheidsreductie vele malen groter.

Alhoewel er geen grote netto afname in doorlatendheid leek op te treden toonden de drie in serie uitgevoerde experimenten op de met grind gevulde kolom echter wel allemaal perioden van geleidelijk afnemende doorlatendheid, gevolgd door een abrupt en sterk herstel in de doorlatendheid en afname in de druk. Een mogelijke verklaring voor de geobserveerde momenten van drukval is het uiteenvallen van geocoaguleerde deeltjes of deeltjesbruggen die poriënneken blokkeren. Het plotseling loslaten van de geocoaguleerde deeltjes of deeltjesbruggen is waarschijnlijk weer het gevolg van de geleidelijke drukopbouw in de poriën. Het uiteenvallen van deeltjesbruggen bij veranderingen in stroomsnelheid is ook geobserveerd in experimenteel onderzoek door Torkzaban et al. (2015). Daarnaast is op microscoopbeelden van experimenten met koolinjectie in micromodellen bij de Universiteit Utrecht te zien dat geocoaguleerde deeltjes in poriënneken los schieten bij voldoende drukopbouw (de Vries, persoonlijke communicatie).

Op de time-lapse foto's zijn de momenten van sterke drukval ook goed te herkennen. Delen van de kolom waar het kool nog niet was binnengedrongen worden zeer plotseling gevuld, wat overeenkwam met een sterke afname in de druk bij de inlaat (en toename in de effectieve doorlatendheid van de kolom). Het lijkt er dus op dat blokkades door geocoaguleerde deeltjes ofwel brugvorming effect hadden op de verstopping van de kolom, maar dat dit in

tegenstelling tot straining niet blijvend tot verminderde doorlatendheid leidde. Opgemerkt moet worden zowel dat in de experimentele procedure als bij de veldproef is getracht coagulatie te voorkomen door inline sonicatie van de suspensie voor injectie.

### 5.1.3 Effect van filtratie koalsuspensie en suspensieconcentratie op verstopping

Bij experiment 5 is een suspensie van actief kool vooraf gefilterd over een 10  $\mu\text{m}$  kaarsfilter (sectie 3.2.7). Dit als mogelijke oplossing voor het verminderen van de mate van verstopping door straining. De filtratiebehandeling over de kaarsfilter had echter in de eerste plaats een afname in totale concentratie tot gevolg (5 tot 16 keer lager dan in experiment 1) door verwijdering van 80-94% van de koolmassa. Hoewel daarbij ook een relatief groter deel van de allergrootste fractie deeltjes lijkt te zijn verwijderd (16% van de deeltjes > 20  $\mu\text{m}$ , Figuur 4-4), kan dit echter niet met zekerheid worden gesteld doordat de concentratie van deze fractie deeltjes dusdanig laag is dat dit de nauwkeurigheid van de metingen beïnvloed.

De verwijdering van een klein deel van de grote kooldeeltjes (> 20  $\mu\text{m}$ ) door deze filtratie is één van de mogelijke verklaringen voor de relatief minder snel oplopende van druk (Figuur 4-12) en iets kleinere doorlatendheidsreductie bij experiment 5 (1,4% per gram kool) ten opzichte van experiment 1 (2,5% per gram kool). Echter, de grote verschillen in suspensieconcentratie zouden ook een deel van het gedrag van de kolom kunnen verklaren. De verwachting op basis van de theorie is dat de suspensieconcentratie gevolgen heeft voor de mate van brugvorming van deeltjes, waarbij minder brugvorming wordt verwacht bij lagere concentraties (Ramachandran & Fogler, 1999).

Al met al is het moeilijk om de effecten van concentratie en/of deeltjesgrootte op de doorlatendheidsreductie in experiment 5 te scheiden en daarom is het niet mogelijk om de precieze bijdrage van beide processen vast te stellen. Aparte experimenten, eerst gericht op het verkleinen van het aandeel aan grote deeltjes in de koolverdeling en daarna op het onderzoeken van de effecten van concentratie zijn daarvoor noodzakelijk. Het verkleinen van de maximale deeltjesgrootte is vooral belangrijk omdat de effecten van straining de effecten van concentratie zullen overschaduwten in een kolom waar de kooldeeltjes groot is vergeleken met de poriëngrootte. Als de effecten van straining beperkt zijn, kunnen experimenten gericht worden uitgevoerd om ook de effecten van concentratie nauwkeuriger te bepalen.

### 5.1.4 Effect van de injectiesnelheid

De injectiesnelheid is in de experimenten met de met het grindmengsel gevulde kolom gevarieerd van de helft tot bijna tweemaal de snelheid op de boorgatwand in het veld (Darcysnelheid variërend van 1,8 tot 7,0 m/uur). Er traden geen duidelijke verschillen in de mate van verstopping van de kolom. Geconcludeerd mag worden dat de injectiesnelheid binnen de in dit onderzoek getoetste bandbreedte geen blijvend en significant effect had op de doorlatendheid.

Zoals besproken (sectie 5.1.2), was er bij deze experimenten steeds sprake van plotse drukval en herstel van de doorlatendheid, vermoedelijk veroorzaakt door de vorming en doorbraak van deeltjesbruggen en/of blokkades van gecoaguleerde deeltjes. Het is bekend dat brugvorming en coagulatie van deeltjes in de poriën wordt beïnvloed door de stroomsnelheid (Ramachandran & Fogler, 1999). Tegelijkertijd is aangetoond dat bij toenemende stroomsnelheden deeltjesbruggen ook sneller afbreken, leidend tot snelle veranderingen in permeabiliteit (Torkzaban et al., 2015). Onderbrekingen in de stroming kunnen ook weer een effect hebben op de doorlatendheid, doordat deeltjes zich weer vrij kunnen bewegen in de porieruimte, en in experimenteel onderzoek werden bij het stoppen en starten van de stroming snelle toenames in de permeabiliteit van waargenomen (Torkzaban et al., 2015). Dit is vermoedelijk ook de verklaringen voor de discontinuïteiten in de doorlatendheid die werden waargenomen nadat de stroming werd gestopt tussen experimenten 2 en 3 en tussen experimenten 3 en 4 (Figuur 4-10). Daarnaast is ook bij de regeneratie in het veld waargenomen dat bijvoorbeeld bij het intermitterend

pompen de concentratie deeltjes steeds bij inschakelen van de pomp omhoogschoot, om vervolgens weer geleidelijk af te nemen (Figuur 2-10).

## 5.2 Ruimtelijke verspreiding van actief kool

Kijkend naar de verspreiding van het koolfront bij injectie in de zandkolom bij experiment 1 was deze duidelijk niet gelijkmatig verdeeld over de dwarsdoorsnede van de kolom en trad er preferentieel stroming langs de bodem van de kolom op (Figuur 4-5). De verspreiding van het kool bij experiment 5 was daarentegen wel zeer gelijkmatig (Figuur 4-13A), terwijl voor het aanvullen van deze kolommen hetzelfde zandmengsel gebruikt was en de doorlatendheid ook goed overeenkwam ( $K_1 = 25$  m/d en  $K_5 = 25,7$  m/d), wat vertrouwen geeft in de experimentele methodiek en de vergelijkbaarheid van de verschillende experimenten. Naast de gelijkmatigere verspreiding is het kool bij experiment 5 ook veel minder diep de kolom in getransporteerd (tot max 21 cm) ten opzichte van bij experiment 1 (tot max 87 cm). Er zijn verschillende mogelijke factoren die de grote verschillen in transport van het kool tussen deze twee experimenten kunnen verklaren: zwaartekrachteffecten, 'schaduwzones' als gevolg van straining, verschillen in toegepaste aanvulprocedure van de kolommen, en het verschil in suspensieconcentraties (sectie 3.2.7).

Door de hogere dichtheid van de kooldeeltjes zijn ze onderhevig aan zwaartekrachteffecten. Dit is een waarschijnlijke verklaring voor de waarneming bij experiment 1 dat er meer deeltjes door de onderkant van de kolom stroomden dan de bovenkant (Figuur 5-4). De straining van de allergrootste deeltjes zal waarschijnlijk vooral plaatsvinden nabij het grensvlak van het omstortingsgrind en het formatiezand ('de boorgatwand'). De grotere mate van immobilisatie van grotere deeltjes blijkt in zekere zin ook uit de lagere concentratie van de allergrootste deeltjesfractie ( $>15 \mu\text{m}$ ) in het effluent bij de experimenten op de grindkolommen (Figuur 4-11).



*Figuur 5-4. Niet homogene verspreiding van het actief kool bij experiment 1, onder meer door de vorming van zones met minder doorlatend fijn zand gevormd door ontmenging bij. Deze gebieden met lage doorlatendheid waren visueel zichtbaar vanaf een dieptes vanaf de inlaat  $> 26$  cm. Het aangebrachte filtergrind was 11 cm dik, het grensvlak tussen en filtergrind en het formatiemateriaal (de boorgatwand) wordt aangegeven door de gele stippellijn.*

Het is ook daarnaast mogelijk dat deeltjes die stroomopwaarts door straining de kolom blokkeren schaduwzones veroorzaken waarnaar geen stroming optreedt en dus ook geen deeltjestransport. Omdat de stroming dan niet langer gelijkmatig verdeeld is over de dwarsdoorsnede van de kolom, verhoogt dit de stroomsnelheid in de resterende open stroombanen. Deze verandering in snelheid kan ook invloed hebben op de immobilisatie van deeltjes. Bij hogere stroomsnelheden neemt de schuifkracht ('shear force') langs de zandkorrels toe, wat de aanhechting en immobilisatie kan verminderen (Bergendahl & Grasso, 2000). Dit kan bij hebben gedragen aan het verdere transport van deeltjes door de formatie bij experiment 1, en andersom kan minder straining door het vooraf deels filtreren van de grootte kooldeeltjes bij experiment 5 ook de verklaring zijn voor de meer gelijkmatige verspreiding waargenomen in dit experiment.

Het verschil in transportgedrag van het kool bij experimenten 1 en 5 kan mogelijk ook veroorzaakt zijn doordat bij het aanvullen van kolom 1 enige ontmenging van het zandmengsel optrad waardoor er kleine gebieden ontstonden in deze kolom met vooral de fijnere zanddeeltjes. Deze werden duidelijk zichtbaar na de injectie van actief kool omdat het kool in deze zones niet binnendrong (Figuur 5-4), vermoedelijk door straining van het kool op het grensvlak van deze zones. Deze ontmengde gebieden met fijne zanddeeltjes lijken echter pas aanwezig te zijn geweest op meer dan 26 cm van de inlaat. Daarentegen was de diepte die het actief kool in experiment 5 bereikte slechts 19,5-21 cm. Alhoewel de ontmengde zones dus wel hebben bijgedragen aan een minder gelijkmatige verspreiding van het kool in experiment 1, kunnen ze niet de oorzaak zijn voor het veel minder diep indringen van het kool bij experiment 5 ten opzichte van experiment 1.

Als laatste hebben verschillende onderzoeken aangetoond dat het verlagen van de suspensieconcentratie de massaretentie verhoogt (Bradford et al., 2009; Bradford & Bettahar, 2006; Chakraborty et al., 2022; Sun et al., 2015). De oorzaak hiervoor is bijvoorbeeld dat de massaoverdracht van colloïden naar gebieden met een lage snelheid wordt bevorderd bij lagere concentraties. Het is dus ook aannemelijk dat de veel lagere concentratie actief kool bij experiment 5 (1,2 en 0,36 g/L) dan bij experiment 1 (5,9 g/l) heeft bijgedragen aan het homogener indringen van het koolfront in de kolom. Zoals al eerder besproken zorgde de lagere concentratie dus voor sterkere immobilisatie in de poriën (23% bij experiment 5, 9% bij experiment 1) en mogelijk voor een iets lagere mate van verstopping per gram geïnjecteerd kool (zie 5.1.3).

Concluderend kan gesteld worden dat meerdere factoren hebben bijgedragen aan de verschillen in verspreiding van het kool (diepte van indringen en homogeniteit van koolfront) in de twee experimenten met het zandige mengsel: de lagere concentratie zorgde voor een gelijkmatigere verdeling over de dwarsdoorsnede, door ontmenging gevormde zones met fijn zand leidde bij experiment 1 tot meer verspreiding en 'schaduwzones' waar het kool niet binnendrong, en zwaartekrachtseffecten hebben vermoedelijk bijgedragen aan enige uitzakking van het kool naar de onderkant van de kolom.

### 5.3 Mate van immobilisatie actief kool in poreus medium

Het in de praktijk beoogde doel van koolinjectie is om een homogeen verspreide zone van geïmmobiliseerd kool rond een grondwaterput te creëren, zonder doorlatendheidsafname, zodat vervolgens bij grondwaterproductie (en omkering van de stromingsrichting) de retentie en afbraak van organische microverontreinigingen langdurig wordt gestimuleerd. De experimenten op de met grind gevulde kolom bevestigen dat een groot deel van de poriën en het totale porievolume (33%) actief kool kunnen bevatten zonder dat de doorlatendheid substantieel afneemt. Dit is waarschijnlijk het gevolg van immobilisatie van het kool in de porielichamen en een gunstige verhouding tussen de grootte van de porienekken en de kooldeeltjes in het fijne grind. De waargenomen tijdelijke kleine drukopbouw die optrad lijkt dit in het grind dus veroorzaakt door de tijdelijke vorming van deeltjesbruggen en/of het invangen van gecoaguleerde deeltjes in de porienekken (zie sectie 5.1.2).

Een initieel punt van aandacht was dat bij te grote porienekgrootten ten opzichte van de kooldeeltjes dit mogelijk zou leiden tot een lagere massa-retentie. Dit lijkt echter niet het geval te zijn voor de combinatie van fijn grind en het actief kool in deze experimenten. Verder is gebleken dat bij het terugspoelen van de grindkolom de volumefractie van de porieruimte bezet door kool afnam van 33% tot 28% (mogelijk vanuit het grovere filtergrind bij de inlet) met een geleidelijke afname van de concentratie van het kool in het backflushwater. Dit geeft aan dat het grootste deel van het kool goed geïmmobiliseerd lijkt te zijn. Het gebruikte SA UF actief kool zou zonder verdere aanpassing dan ook goed geschikt zijn voor toepassing van het concept ondergronds zuiveren in een aquifer bestaande uit uitsluitend dit medium.

Ook bij de regeneratie van PP08 in het veld was bij iedere reinigingsstap (hoge druk reinigen, gevolg door chemische voor- en hoofdwas) en bij het intermitterend pompen steeds aanvankelijk een hoge deeltjesconcentratie gemeten, welke vervolgens snel afnam (Figuur 2-10). Op basis van de metingen bij de



regeneratie is bepaald dat na afloop van de regeneratie een groot deel van het geïnjecteerde kool zich nog in de ondergrond moest bevinden (zie sectie 2.2.2), en welke dus bijdraagt aan het ondergronds zuiveren met actief kool bij deze put.

## 5.4 Belangrijkste lessen voor toepassing in de praktijk

### Wat kan de verstopping veroorzaakt hebben en waar heeft deze plaatsgevonden?

Een belangrijk doel van dit werk was om te bepalen welke processen verantwoordelijk waren voor de verstopping die in PPO8 werd waargenomen, en waar deze verstopping waarschijnlijk is opgetreden. Op basis van dit onderzoek is blokkades van poriënecellen door straining (Figuur 5-2) van de grotere fractie actief kooldeeltjes veruit de meest waarschijnlijke verklaring voor zowel de verstopping en doorlatendheidsreductie waargenomen in het veld als bij de kolomexperimenten. Bij de grindkolommen, waar de verhouding tussen de grootte van de kooldeeltjes en de poriënecellen groot was, vond nagenoeg geen permanente afname in doorlatendheid plaats. Er traden hierbij wel perioden van afname in doorlatendheid op, gevolgd door plots herstel. De vermoedelijke oorzaak hiervan is burgvorming en/of coagulatie van deeltjes. De gevormde aggregaten en bruggen bleken bij onderbreking van de stroming of toename van de druk in de kolom echter ook weer verbroken te worden.

Deze hypothese wordt ondersteund door het resultaat van de regeneratie van de put, waar hogedrukreiniging resulteerde in het vrijkomen van de grootste massa deeltjes, maar bij de chemische reiniging relatief meer van de grotere kooldeeltjes vrijkwamen. Vermoedelijk kwamen bij het hoge druk reinigen dus vooral deeltjes vrij die zwak geïmmobiliseerd waren in de formatie. Het grotere herstel van het specifiek debiet tijdens de chemische reiniging ondersteunt ook de hypothese dat deeltjes die de poriënecellen blokkeerden de grootste afname in doorlatendheid veroorzaken, en niet geïmmobiliseerde deeltjes in de poriënecellen.

Voorafgaand aan de experimenten werden ook de afname van de injectiesnelheid als functie van de afstand van de put en de injectieconcentratie als mogelijke hypothese voor de verstopping gezien. De experimenten waarbij de injectiesnelheid werd gevarieerd lieten echter geen grote netto veranderingen in doorlatendheid zien. Er waren wel duidelijke verschillen tussen twee experimenten met verschillende suspensieconcentraties, maar dit had vooral effect op de verspreiding van het kool in de kolom en maar beperkt op de doorlatendheid.

Op basis van deze inzichten kan dus ook gesteld worden dat de verstopping in het veld voor het belangrijkste deel plaats had bij de overgang van het filtergrind in de omstorting van de put naar het bovenliggende, zandige deel van de watervoerende laag waaruit bij Grubbenvorst drinkwater wordt onttrokken (onderdeel van de Kiezeloöliet Formatie). Ook flowmetingen in de put van voor en na regeneratie suggereren dat de regeneratie meer effect had op het zand dan op de grindformatie. Naast verstopping in de formatie is verstopping op de filtergleuven of in het filtergrind zelf in theorie ook mogelijk. De resultaten van dit onderzoek tonen aan dat dit zeer onwaarschijnlijk is. Bij video-inspectie van de put voor en na de regeneratie was er geen duidelijke ophoping of verwijdering van actief kool op de filterspletten (50 mm) te zien, en de korrelgrootte van het omstortingsgrind is nog aanzienlijk groter (1,5 – 2,5 mm) dan dat gebruikt in de kolommen (0,4 mm).

### Mogelijke methoden om verstopping tijdens injectie te verminderen

Dit onderzoek heeft uitgewezen dat de verstopping van grondwaterput PPO8 bij de veldproef hoogstwaarschijnlijk is veroorzaakt door blokkades van de poriënecellen door de aanwezigheid van kooldeeltjes die te groot ('straining') waren voor het zandige deel van de formatie, op en nabij bij het grensvlak met de boorgatwand. Om de mate van verstopping bij toekomstige koolinjectie in deze put (of andere grondwaterputten in grondlagen met soortgelijke eigenschappen) substantieel te verminderen is dus hoogstwaarschijnlijk een actief koolpoeder nodig waarin deze grotere deeltjes niet aanwezig of verwijderd zijn. Pogingen tot het filtreren van het bij dit onderzoek beschikbare actief kool bleken niet succesvol (genoeg), waardoor de injecteerbaarheid slechts in beperkte mate verbeterde. Uit

een eerste verkenning zijn de volgende alternatieven voor het filtreren van koolpoeders geïdentificeerd die verder onderzocht kunnen worden:

- Uitzoeken of er commercieel verkrijgbare actief koolpoeders zijn met een geschiktere korrelgrootteverdeling.
- Uitzoeken wat de mogelijkheden zijn voor het verwijderen van de grove staart van de deeltjesgrootteverdeling van actief koolpoeders. Als voorbeeld: in onderzoek door Georgi et al. (2015) is de deeltjesgrootte van actief kool (SA Super, Norit) van 4-70  $\mu\text{m}$  door droog te malen verkleind tot een  $d_{50} = 3.2$  en  $d_{90} = 6$   $\mu\text{m}$  (kool uit deze studie: SA UF, Cabot  $d_{50} = 3.7$  en  $d_{90} = 9.45$   $\mu\text{m}$ ). Hosokawa Alpine (Ausburg, DE) biedt de apparatuur hiervoor aan.
- Experimenteren of het haalbaar is om het kleine grove deel van een actief koolpoeder te scheiden is van het fijne deel met behulp van aero- of hydrodynamische scheiding.

Naast het effect van de deeltjesgrootte is uit dit onderzoek ook een duidelijk effect van de suspensieconcentratie op de verspreiding van het kool naar voren gekomen, waarbij een lagere concentratie tot een veel gelijkmatigere verspreiding van het kool leidde. Dit had ook een veel hogere bezetting van de porieruimte met actief kool tot gevolg, terwijl de afname in doorlatendheid juist kleiner was. Een gelijkmatigere verdeling en hogere concentratie van geïmmobiliseerd kool in de formatie zou gunstig moeten zijn voor het uiteindelijk doel van de koolinjectie, namelijk het ondergronds zuiveren van organische microverontreinigingen tijdens grondwaterproductie. Ten opzichte van het effect van de deeltjesgrootte lijkt het effect van de concentratie op injecteerbaarheid echter klein.

Alleen aanpassingen in de gehanteerde suspensieconcentratie lijkt op basis van de onderzoeksresultaten dan ook niet voldoende om een nieuwe veldproef in PP08 (of soortgelijke putten) te kunnen rechtvaardigen. Daarentegen lijkt het wel mogelijk om ondergronds zuiveren met dit actief koolpoeder (SA UF, Cabot) toe te passen op grondwaterputten die voor het belangrijkste deel van hun productie onttrekken uit een grindige formatie, vergelijkbaar aan dat in de onderste paar meter bij PP08 (fijn grind,  $d_{50} = 0,4$  mm). Gezien de onzekerheden in dit onderzoek verdient het echter de aanbeveling om vooraf of parallel aan nieuw veldonderzoek ook additionele kolomexperimenten uit te voeren, idealiter met een koolpoeder waar de grote fractie deeltjes vooraf uit is gefilterd. Op basis daarvan kan dan bepaald worden of actief koolinjectie ook haalbaar gemaakt kan worden voor zandige formaties, en kunnen andere belangrijke aspecten beter geoptimaliseerd worden (met name de suspensieconcentratie en het injectiedebiet).

## 6 Conclusies

In oktober 2021 is een veldproef uitgevoerd voor ondergrondse zuivering met injectie van een actief koolsuspensie in een grondwaterput van WML bij Grubbenvorst. Vooraf was het doel van de proef om 8000 kg kool met een concentratie van 0,5 g/L te injecteren binnen een straal van maximaal 25 m rond de put. Tijdens de injectie nam de injectiedruk echter snel toe en moest de proef stopgezet worden. Tot op dat punt was tussen de 1000-1800 kg kool geïnjecteerd met een gemiddelde concentratie tussen 0,6 en 1,1 g kool/l. Door middel van een boring na afloop van de proef is aangetoond dat het kool hierbij in ieder geval tot 4,4 meter van PP08 in de formatie is doorgedrongen. Om de put te regenereren is op basis van een aantal batchexperimenten gekozen voor chemische reiniging met waterstofperoxide en zoutzuur (HCl). In juli en augustus van 2022 is de put succesvol geregenereerd, waarbij het specifiek debiet hersteld is tot dat van voor de veldproef en ongeveer 60-70% van het specifieke debiet bij oplevering van de put in 1969.

Om uiteindelijk de aanpak voor het injecteren van actief kool in grondwaterputten te verbeteren zijn vervolgens een vijftal kolomexperimenten uitgevoerd. Het doel van deze experimenten was om, in combinatie met de analyse van de injectie en regeneratie in het veld, verschillende hypothesen te toetsen over de factoren die de mate van putverstopping het sterkst beïnvloedt hebben en waar deze verstopping primair moet hebben opgetreden. Bij deze experimenten is gewerkt hetzelfde actief koolpoeder als in het veld (Cabot SA UF,  $d_{50} = 3.7 \mu\text{m}$  en  $d_{90} = 9.45 \mu\text{m}$ ) en met zowel kolommen gevuld met een middelgroot zandmengsel ( $d_{50}$  van 0,4 mm), analoog aan het minder doorlatende maar dikke bovenste deel van de aquifer in Grubbenvorst, en een fijn grindmengsel ( $d_{50}$  van 2,9 mm), analoog aan het zeer goed doorlatende maar dunne onderste deel van de aquifer. Ook zijn stroomsnelheden en koolconcentraties toegepast die vergelijkbaar zijn met die van de veldproef, en enkele variaties daarop.

De resultaten van dit onderzoek hebben uitgewezen dat **de verstopping die optrad bij de veldproef hoogstwaarschijnlijk is veroorzaakt door blokkades van de poriënruimten door een fractie te grote kooldeeltjes (ofwel 'straining') in het zandige deel van de formatie, op en nabij bij het grensvlak met de boorgatwand:**

- Na injectie van ruim 288 g actief kool in de grindkolom was de afname in doorlatendheid gering (0,03% per gram kool), terwijl injectie van slechts 24 g actief kool in de in de zandkolommen tot zeer substantiële afname in doorlatendheid leidde (2,5% en 1,4% per gram kool).
- Deze bevinding zijn in lijn met verwachtingen op basis van wetenschappelijke literatuur. Hierin is gesteld dat significante straining optreedt wanneer de verhouding tussen de grootte van de colloïdes en het poreuze medium ( $d_{50}^{\text{colloïde}}/d_{50}^{\text{pm}}$ ) groter is dan 0,005 (Bradford et al., 2004). Voor middelgrootte zand is dit inderdaad het geval ( $4 \mu\text{m} / 400 \mu\text{m} = 0,01$ ), maar voor het fijne grind niet. Ook een schatting van de poriëngrootte op basis van onderzoek naar een vergelijkbaar middelgroot zand (Nsir & Schäfer, 2010) laat duidelijk zien dat er overlap is tussen de kleinste poriënruimten en de grootste kooldeeltjes.
- Bij de regeneratie in het veld werd de grootste massa actief kool teruggewonnen tijdens de als eerste stap uitgevoerde hogedrukreiniging. Bij de hier opvolgende chemische reinigingsstappen werden echter hogere concentraties van de grotere deeltjes gemobiliseerd, en deze stappen hadden een veel groter effect op het herstel van de putcapaciteit.

Andere mogelijke verstoppingsmechanismen (blokkades door brugvorming van en coagulatie van deeltjes) spelen vermoedelijk vooral een rol als de verhouding tussen de korrelgrootte van de getransporteerde deeltjes en het poreus medium groter wordt. Bij de experimenten in de met fijn grind gevulde kolom leidde deze processen tot geleidelijk drukopbouw en doorlatendheidsafname, gevolgd door plotse drukval en herstel van de doorlatendheid. De oorzaak van het herstel van de doorlatendheid is waarschijnlijk dat de gevormde deeltjesbruggen en

gecoaguleerde deeltjes ook weer uit elkaar kunnen vallen bij toename van de druk of veranderingen en onderbrekingen in de stroomsnelheid.

Om de mate van verstopping bij een toekomstige poging tot koolinjectie in dezelfde put (of andere grondwaterputten in soortgelijke grondlagen) substantieel te verminderen is dus een actief koolpoeder nodig waar de fractie te grote kooldeeltjes afwezig is of er vooraf uit is gefilterd. Pogingen tot dergelijke filtratie hadden slecht zeer beperkt effect, waardoor dit onvoldoende reductie van de mate van verstopping opleverde. De resultaten wijzen verder uit dat het verlagen van de suspensieconcentratie in beperkte mate ook zou kunnen bijdragen aan het verminderen van (tijdelijke) verstoppingen door brugvorming of gecoaguleerde deeltjes in poriën. Bijkomend voordeel hiervan is dat een lagere concentratie kan leiden tot veel gelijkmatigere ondergrondse verspreiding van het kool. Dit resulteert weer in een hogere concentratie van geïmmobiliseerd kool in het poreuze medium dan bij injectie met een hoge suspensieconcentratie. Dit zou dus ook bevorderlijk moeten zijn voor de ondergrondse verwijdering van organische microverontreinigingen tijdens grondwaterproductie, het uiteindelijke doel van ondergronds zuiveren.

Als laatst wijst het onderzoek ook uit dat ondergronds zuiveren met het hier gebruikte actief koolpoeder al goed toepasbaar lijkt op grondwaterputten die voor het belangrijkste deel van hun productie onttrekken uit grindige formaties, vergelijkbaar aan dat in de onderste paar meter van het putfilter van PPO8 (fijn grind,  $d_{50} = 0,4$  mm). In de kolomexperimenten met een dergelijk grind nam de immobilisatie van kool in het poreus medium gestaag toe zonder dat de doorlatendheid substantieel afnam. Tegelijkertijd bleek bij zowel het backflushen van de kolommen als ook bij de regeneratie van de grondwaterput in Grubbenvorst dat een belangrijk deel van het kool dusdanig goed geïmmobiliseerd raakt dat het niet direct weer onttrokken werd bij omkering van de stromingsrichting. Gezien de onzekerheden in dit onderzoek verdient het echter de aanbeveling om voorafgaand of parallel aan een nieuwe veldproef ook nog een aantal additionele kolomexperimenten uit te voeren, idealiter met een koolpoeder waar de grote fractie deeltjes afwezig is of er vooraf uit is gefilterd.

## Referenties

- Bergendahl, J., & Grasso, D. (2000). Prediction of colloid detachment in a model porous media: Hydrodynamics. *Chemical Engineering Science*, 55(9), 1523–1532. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(99\)00422-4](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(99)00422-4)
- Bradford, S. A., & Bettahar, M. (2006). Concentration dependent transport of colloids in saturated porous media. *Journal of Contaminant Hydrology*, 82(1–2), 99–117. <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2005.09.006>
- Bradford, S. A., Bettahar, M., Simunek, J., & van Genuchten, M. Th. (2004). Straining and Attachment of Colloids in Physically Heterogeneous Porous Media. *Vadose Zone Journal*, 3(2), 384–394. <https://doi.org/10.2136/vzj2004.0384>
- Bradford, S. A., Kim, H. N., Haznedaroglu, B. Z., Torkzaban, S., & Walker, S. L. (2009). Coupled factors influencing concentration-dependent colloid transport and retention in saturated porous media. *Environmental Science and Technology*, 43(18), 6996–7002. <https://doi.org/10.1021/es900840d>
- Bradford, S. A., Simunek, J., Bettahar, M., Van Genuchten, M. T., & Yates, S. R. (2003). Modeling colloid attachment, straining, and exclusion in saturated porous media. *Environmental Science and Technology*, 37(10), 2242–2250. <https://doi.org/10.1021/es025899u>
- Bradford, S. A., Yates, S. R., Bettahar, M., & Simunek, J. (2002). Physical factors affecting the transport and fate of colloids in saturated porous media. *Water Resources Research*, 38(12), 63-1-63–12. <https://doi.org/10.1029/2002wr001340>
- Chakraborty, S., Foppen, J. W., & Schijven, J. F. (2022). Effect of concentration of silica encapsulated ds-DNA colloidal microparticles on their transport through saturated porous media. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 651(April), 129625. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2022.129625>
- de Zwart, A. H. (2007). *Investigation of Clogging Processes in Unconsolidated Aquifers near Water Supply Wells*. Technical University Delft.
- Georgi, A., Schierz, A., Mackenzie, K., & Kopinke, F. D. (2015). Colloidal activated carbon for in-situ groundwater remediation - Transport characteristics and adsorption of organic compounds in water-saturated sediment columns. *Journal of Contaminant Hydrology*, 179, 76–88. <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2015.05.002>
- Hartog, N., Hofman-Caris, R., Bertelkamp, C., Bloemendal, M., & Palmén, L. (2018). *BTO 2018.034 / Ondergronds zuiveren : verkenning van toepasbaarheid in de praktijk*. <https://library.kwrwater.nl/publication/55752535/ondergronds-zuiveren-verkenning-toepasbaarheid-in-de-praktijk/>
- Molnar, I. L., Johnson, W. P., Gerhard, J. I., Willson, C. S., & O'Carroll, D. M. (2015). Predicting colloid transport through saturated porous media: A critical review. *Water Resources Research*, 51(9), 6804–6845. <https://doi.org/10.1002/2015WR017318>
- Nsir, K., & Schäfer, G. (2010). A pore-throat model based on grain-size distribution to quantify gravity-dominated DNAPL instabilities in a water-saturated homogeneous porous medium. *Comptes Rendus - Geoscience*, 342(12), 881–891. <https://doi.org/10.1016/j.crte.2010.09.001>
- Ramachandran, V., & Fogler, H. S. (1999). Plugging by hydrodynamic bridging during flow of stable colloidal particles within cylindrical pores. *Journal of Fluid Mechanics*, 385, 129–156. <https://doi.org/10.1017/S0022112098004121>
- Sun, Y., Gao, B., Bradford, S. A., Wu, L., Chen, H., Shi, X., & Wu, J. (2015). Transport, retention, and size perturbation of graphene oxide in saturated porous media: Effects of input concentration and grain size. *Water Research*, 68, 24–33. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2014.09.025>

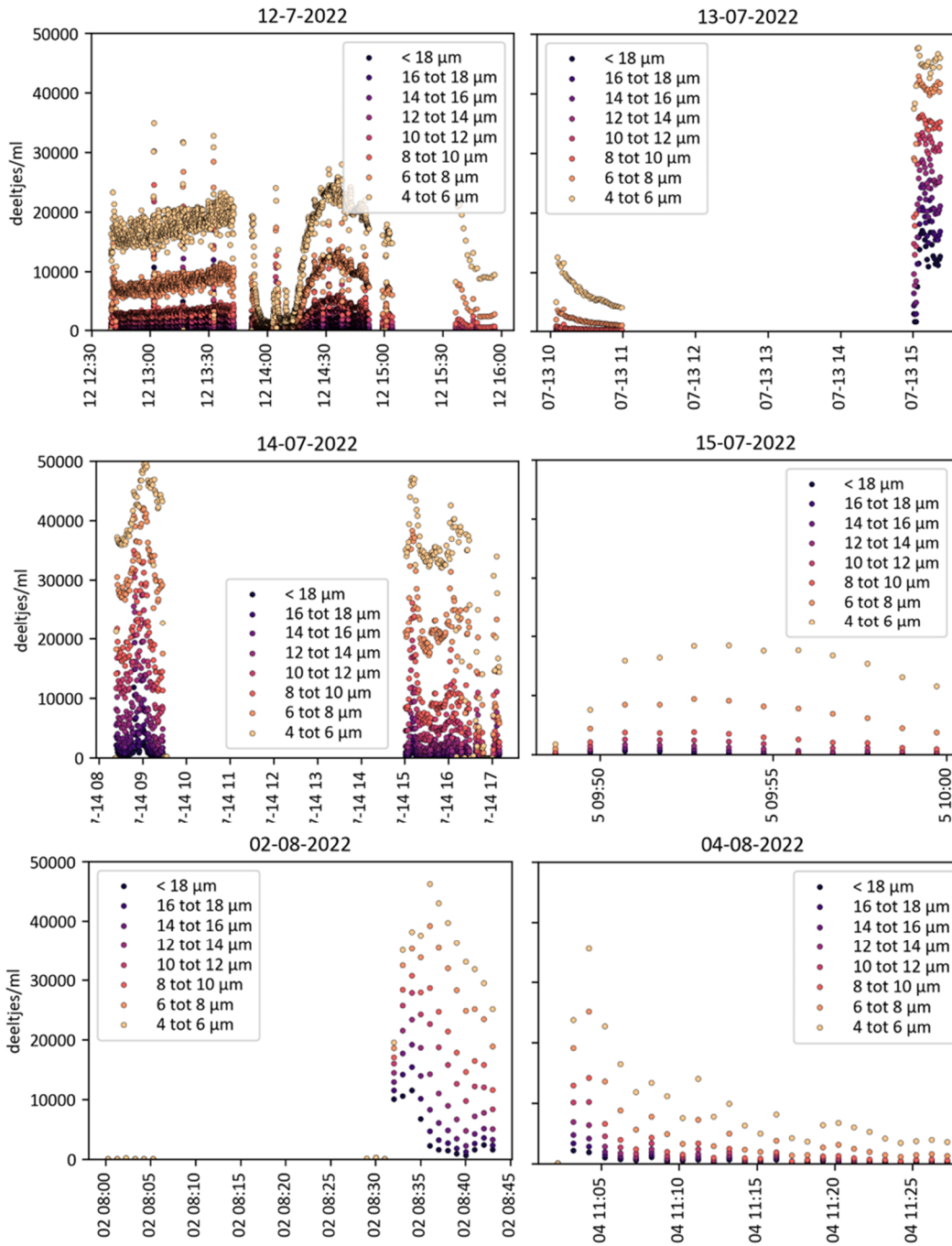
Torkzaban, S., Bradford, S. A., Vanderzalm, J. L., Patterson, B. M., Harris, B., & Prommer, H. (2015). Colloid release and clogging in porous media: Effects of solution ionic strength and flow velocity. *Journal of Contaminant Hydrology*, 181, 161–171. <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2015.06.005>

## I Data veldmetingen putregeneratie

Datum	12-7-2022	12-7-2022	13-7-2022	14-7-2022	27-7-2022	27-7-2022	2-8-2022	4-8-2022	
Tijd	15:10:00	15:40:00	14:10:00	17:00:00	02:35:00	05:26:00	08:35:00	11:25:00	
Monsternemer	Gilian	Gilian	Daan	Daan	Jim	Jim	Jim	Jim	
Meetpunt_ID	grub wp 21-3	PP 8	PP 8	PP 8	PP 8	PP 8	PP8	PP8	
Omschrijving moment monstername	ref meting peilbuis (nulmeting)	ref meting bronput (nulmeting)	1e HogeDruk reiniging na 3 keer verversen	na 3x verversen intermitterend pompen	na 3x verversen jutteren	na voorwas einde jutteren	na 3x verversen boorgat jutteren hoofdwas	spuien na 3x verversen boorgat	
Veldmetingen	TSS (mg/l)	23	27	1070	41	305	53	225	3
	pH veld (-)	7,41	6,865	6,9	6,72	5,902	6,143	4,581	6,58
	EC (us/cm)	462	456	509	431	738	338	845	390
	redox (mv)	-113	-89	-78	-58	301	254	279	134,2
	troebelheid (ntu)	13,8	11,1	niet meetbaar	16,6	68,4	204	42,8	12,5
	MFI (mfi)	33,5	78,69	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt
	MFI (sdi+)	5,54	5,68	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt
	MFI (sdiv)	n/a	n/a	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt
	MFI (sdi 5)	13,43	18,3	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt
	MFI (sdi 10)	7,31	9,27	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt
MFI (sdi 15)	5,18	6,24	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	verstopt	
Labanalyses	TSS (mg/l)	23	27	1070	41	305	53	225	3
	HCO <sub>3</sub> (mg/l)	120	130	140	120	*	*	*	*
	Chloride (mg/l)	25	24	49	23	170	26	120	24
	Sulfaat (mg/l)	70	81	62	72	90	63	170	85
	Natrium (mg/l)	13	11	27	15	11	9,1	11	11
	Ijzer (ug/l)	7700	8700	380	8200	16	19	11000	540
	Mangaan (ug/l)	450	510	410	430	990	370	1800	440
	Calcium (mg/l)	57	65	50	55	130	47	130	55
	Magnesium (mg/l)	5,6	5,6	5,3	4,9	7,4	3,6	8	4,8
	DOC (mg/l)	2,8	2,4	1,4	2,7	*	*	*	*
pH lab (-)	6,9	6,84		6,82	*	*	*	*	



## II Deeltjesteller metingen bij regeneratie



### III Gehanteerde aanvulmethode kolomexperimenten

- Gebruik droog filterzand/-grind voor het packen van de kolom.
- Gebruik de juiste samenstelling van het filterzand (zie Tabel 1).
- Mix het filterzand met 15% water in de betonmolen. Zet de betonmolen op een hoek van 70 tot 80 graden om het zand zo goed mogelijk te mixen. Wanneer zand aan de wand blijft leven moet deze om de zoveel tijd even los geschraapt worden. Mix het zand voor een half uur tot er een uniforme zandverdeling wordt verkregen.
- Vul de kolom met 0,125 meter aan blauw filtergrind (0,8-1,25 mm).
  - o Weeg de exacte hoeveelheid aan blauw filtergrind dat in de kolom gaat.
- Vul de kolom met het natte zand:
  - o Weeg elke keer de exacte hoeveelheid aan nat zand dat in de kolom wordt gegoten
  - o Vul het zand aan per 5 cm en druk het aan met de stamper. Na het aanstampen moet de laag worden gekrast met een vork om het oppervlak op te ruwen. Dit zorgt voor een goed contact tussen de lagen.
  - o Meet tot hoever het gemixte zand is aangevuld.
- Wanneer de kolom volledig gepackt is (vol tot 5 cm voor het uitstroompunt), wordt de kolom droog gehamerd tot de hoogte van de grond niet meer verandert. Vul de kolom opnieuw en herhaal het hameren indien nodig.
- Vervolgens wordt de kolom gedurende een half uur gespoeld met CO<sub>2</sub>-gas.
- Spoel de kolom door met een lage stroomsnelheid ( $Q \leq 5$  L/u), spoel minimaal 3 poriënvolumes door om ervoor te zorgen dat het CO<sub>2</sub> volledig oplost en doorgespoeld wordt.
  - o Als de kolom niet volledig wordt doorgespoeld, kan dit leiden tot de vorming van CO<sub>2</sub>-bellen tijdens het boren met verzadigde hamer. Als de kolom niet met een laag debiet wordt doorgespoeld, zal dit resulteren in de mobilisatie van kleinere bodemdeeltjes en demixing van de bodem.
- Hammerboor de verzadigde kolom totdat de hoogte van de grond niet meer verandert.
  - o Verwijder altijd de rubberen puck, gaas en rasters voordat u met een verzadigde hamer gaat boren!
- Nu kan de rest worden aangevuld met 0,125 meter aan blauw filtergrind (0,8-1,25 mm).
  - o Weeg de exacte hoeveelheid aan blauw filtergrind dat in de kolom gaat.

- Meet de lengte van de samengeperste grond en de inlaat- en uitlaatmaling om de uiteindelijke samengeperste dichtheden te berekenen.
- Voer de tracertest uit (Zie hoofdstuk 3.2.4)

## IV Eigenschappen kolom

Tabel 6-1 Kolom opstelling en bodem en grind eigenschappen

Eigenschap	Eenheid	Waarde
Volume	L	5.66
Inner diameter	m	0.08
Length	m	1.11
Inlet surface area	m <sup>2</sup>	0.0051
density sand	g/cm <sup>3</sup>	2.6
density grind	g/cm <sup>3</sup>	2.5

Exp No.		1	2	3	4	5
Parameter		fine	Coarse	Coarse - 0.5V	Coarse - 2V	Fine - filtered injection
Massa bodem	kg	8371	9435	9435	9435	8765
grind	kg	1789	1005	1005	1005	1895
lengte bodem	m	0.79	0.85	0.85	0.85	0.82
Volume bodem	m <sup>3</sup>	0.0040	0.0043	0.0043	0.0043	0.0042
porositeit		0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
Stroomsnelheid	m <sup>3</sup> /day	0.43	0.38	0.21	0.81	0.44
	l/hr	17.8	15.9	8.8	33.9	18.4
Druk start	mbar	364.0	78.9	127.0	310.0	365.0
Druk eind	mbar	934.0	106.0	164.0	183.0	557.0
K start	m/dag	25.0	108.1	135.6	94.8	28.0
K eind	m/dag	9.8	60.1	27.0	32.5	16.8
sc start	l/uur/min	0.1	0.5	0.2	0.3	0.1
sc eind	l/uur/min	0.0	0.4	0.1	0.4	0.1
sc start / sc eind		0.4	0.7	0.8	1.7	0.7

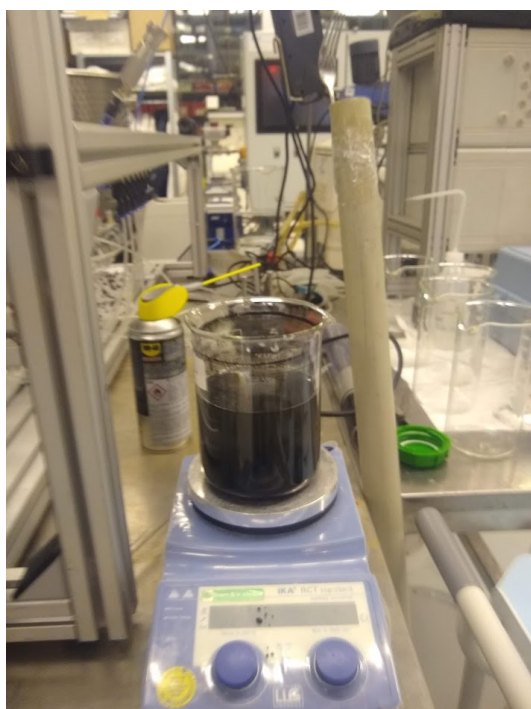
## V Batchexperimenten suspenderen van actief kool

Om te onderzoeken hoe het actief kool gecontroleerd in suspensie gebracht kon worden en kon worden gehouden zijn voorafgaand aan de kolomexperimenten een groot aantal experimenten uitgevoerd. In deze bijlage

In totaal zijn er vier batchexperimenten uitgevoerd, waarbij aan de hand van deeltjestellingmetingen en turbiditeitsmetingen wordt gekeken hoe lang de actief kooldeeltjes in suspensie blijven (Tabel 6-2). Voor alle batchexperimenten is een stockoplossing van 2 g/L actief kool gebruikt. De duur van het sonificeren en roeren wordt in de vier experimenten gevarieerd om te kijken of dit van invloed is op het in suspensie blijven van het actief kool tijdens het mengproces en na het stopzetten van het mengproces.

De volgende procedure is gehanteerd voor het magnetisch roeren:

- Er is precies 2 g/L actief kool afgewogen en in oplossing gebracht. Dit is gedaan in een maatbeker van 1 L, met een actief kool oplossing van 800 mL.
- De maatbeker is op de roerder gezet en het magnetisch staafje is aangebracht in de beker (zie ).
- De roerder is aangezet op 200 rpm en de timer is vanaf dat moment gaan lopen.
- Er wordt voor elke meting water gepipetteerd op een diepte van zo'n een derde onder het waterniveau in de maatbeker. Let op: op de bodem van de maatbeker is de concentratie aan actief kool zichtbaar hoger dan bovenin. Voor de injectiviteitsproeven wordt aangeraden om het aanvoerslangetje ook bovenin de maatbeker te hangen.



*Figuur 6-1. Opstelling voor het (magnetisch roeren)*

De volgende procedure is gehanteerd voor het roeren en sonificeren:

- Er is precies 2 g/L actief kool afgewogen en in oplossing gebracht door Alex Zoontjes. Dit is gedaan in een maatbeker van 1 L, met een actief kool oplossing van 800 mL.
- De maatbeker is in de sonificator gezet, waarbij de sonificator aangezet wordt op het gewenste tijdsbestek. Daarna wordt de mechanische roeropstelling boven de maatbeker aangebracht en zodat het roerblad zich midden in de maatbeker bevindt (zie).
- De roerder is aangezet en de timer is vanaf dat moment gaan lopen.
- Er wordt voor elke meting water gepipetteerd op een diepte van zo'n een derde onder het waterniveau in de maatbeker. Let op: op de bodem van de maatbeker is de concentratie aan actief kool zichtbaar hoger dan bovenin. Voor de injectiviteitsproeven wordt aangeraden om het aanvoerslangetje ook bovenin de maatbeker te hangen.



Figuur 6-2. Opstelling voor het sonificeren en roeren.

## V.1 Procedure voor het meten met de turbiditeitsmeter en de deeltjester

1. Pipeteer op diepte van 1/3 deel onder het wateroppervlak voldoende (circa 15 ml), voor de cuvet van de turbiditeitsmeter.
2. Meet de turbiditeit zonder verdunning.
  - a. Turbiditeit van onverdunde oplossing **meetbaar**: Verdun de oplossing in de cuvet (15 ml) met een factor 10 voor de meting met de deeltjester en de turbiditeitsmeter.
  - b. Turbiditeit van onverdunde oplossing **niet meetbaar**: Verdun de oplossing in de cuvet (15 ml) met een factor 30 voor de meting met de deeltjester en de turbiditeitsmeter.
3. Voer nogmaals een turbiditeitsmeting uit met de verdunde oplossing.



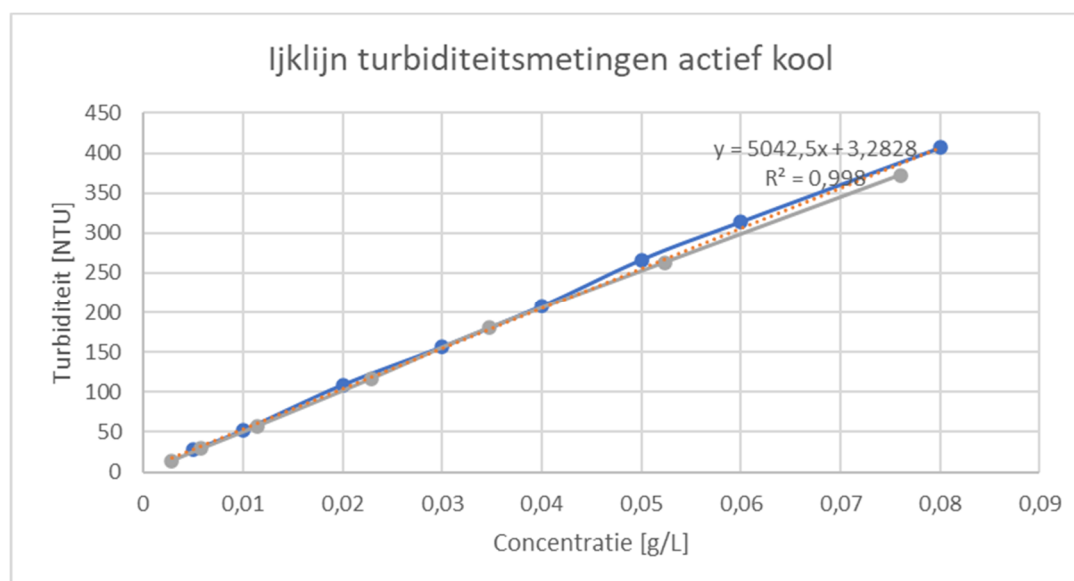
Tabel 6-2. Duur van de 4 batchexperimenten naar suspendeerbaarheid van actief kool in water. De turbiditeitsmetingen zijn uitgevoerd op een 30 maal verdunde oplossing.

Mengmethode	Metingen	Tijdstip meting [min]	Turbiditeit [NTU}	Roersnelheid [rpm]	Duur [min]	Sonificator	
1 Roeren (magnetisch)	Magnetisch roeren	1	14	101	200 rpm	25 min	Uit
		2	22	117			
	Magnetisch roeren	3	37	147	400 rpm	35 min	Uit
		4	60	142			
2 Roeren (magnetisch)	Magnetisch roeren	1	2	104	200 rpm	40 min	Uit
		2	24	116			
	Magnetisch roeren	3	41	105	400 rpm	50 min	Uit
		4	62	125			
		5	85	131			
3 Roeren & sonificator	Roeren	1	31	168	200 rpm	75 min	Uit
		2	60	163			
	Roeren & sonificator	3	85	170	200 rpm	75 min	Aan
		4	149	201			
4 Roeren & sonificator	Sonificator	1	15	22	-	15 min	Aan
	Roeren & sonificator	2	20	178	200 rpm	45 min	Aan
		3	47	177			
	Roeren	4	82	166	200 rpm	30 min	Uit
	Rust				-	15 min	
	Roeren & sonificator	5	158	184	200 rpm	60 min	Aan

## V.II Turbiditeitsmetingen

De turbiditeitsmetingen zijn uitgevoerd met de HACH 2100n IS Turbidimeter. Voor de turbiditeitsmetingen is er gebruikgemaakt van een stockoplossing van 0,1 g/L actief kool. Om het actief kool in suspensie te krijgen is er 20 minuten gesonificeerd en geroerd bij 200 rpm. Na de meting is de oplossing verdunt om na te gaan wat de turbiditeit is bij lagere concentraties. Na het verdunnen is de actief kool oplossing elke keer 10 minuten gesonificeerd en geroerd bij 200 rpm om de deeltjes te suspenderen.

De verkregen ijklijn in **Error! Reference source not found.** is op basis van metingen op twee stockoplossingen. Bij concentraties hoger dan 0,1 g/L is de oplossing dusdanig troebel dat deze niet meer gemeten kon worden door de turbiditeitsmeter.



De ijklijn voor de turbiditeitsmetingen voor actief kool bij verdunning van een stockoplossing van 0,1 g/L actief kool.

### V.III Effect op suspenderen van actief kooldeeltjes met behulp van sonificeren

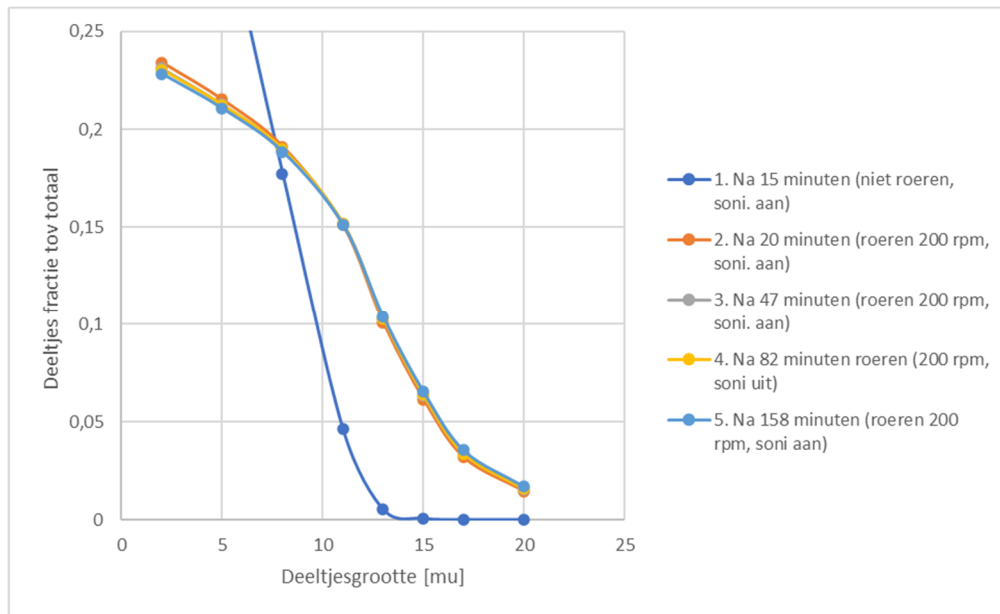
Om het effect van roeren en sonificatie te bepalen worden er voor de vier proeven meerdere oplossingen aangemaakt (30 maal verdunt) om de turbiditeit en deeltjestellingsmetingen uit te voeren.

In Tabel 6-2 is duidelijk te zien dat bij sonificeren de hoogste turbiditeit wordt verkregen. Wanneer er wordt gesonificeerd en geroerd is er sprake van een turbiditeit in de range van 170-201 NTU. Voor de proeven waar alleen wordt magnetisch wordt geroerd is de turbiditeit aanzienlijk lager. Bij een roersnelheid van 200 rpm is de turbiditeit 116-117 NTU, en bij een roersnelheid van 400 rpm wordt de turbiditeit verhoogd tot 131-147 NTU. Wanneer er mechanisch wordt geroerd met een roerstaaf (200 rpm) lijkt de turbiditeit groter te zijn dan wanneer er magnetisch wordt geroerd (163-168 NTU ten opzichte van 116-117 NTU). Dit komt hoogstwaarschijnlijk door het veel grotere roeroppervlak van de roerstaaf ten opzichte van het magnetische staafje.

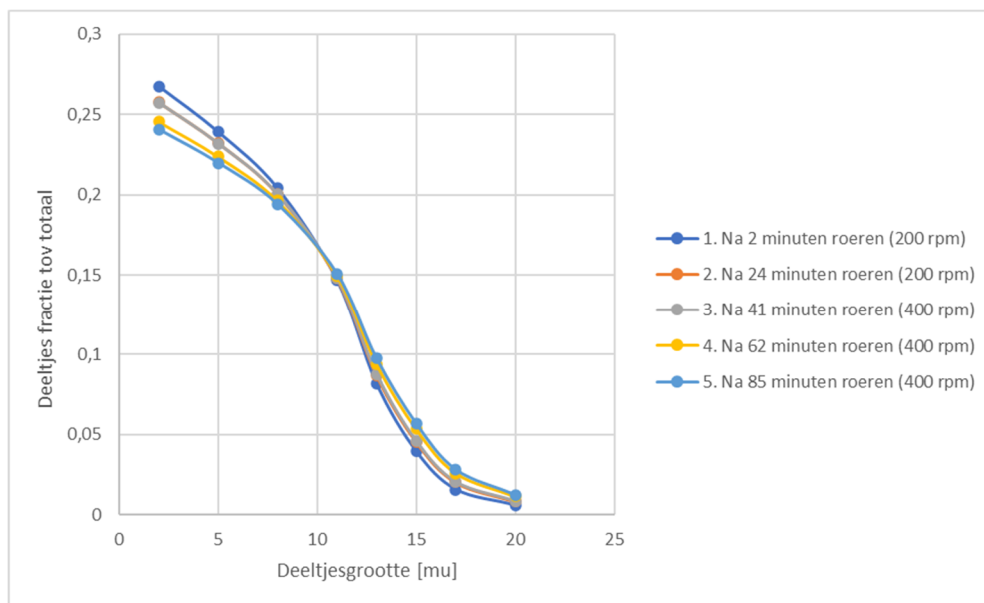
In Figuur 6-3 en Figuur 6-4 is de deeltjesgrootteverdeling te zien in de oplossing voor de batchexperimenten waarin 2 g/L kool wordt gesuspenderd door middel van alleen roeren. Er is duidelijk te zien dat na verloop van tijd het continu roeren ervoor zorgt dat er meer grove deeltjes in suspensie komen. Wanneer de roersnelheid wordt verhoogd van 200 naar 400 rpm komen er ook meer grove deeltjes in suspensie.

Wanneer er wordt gesonificeerd wordt er een grotere fractie aan grover materiaal in suspensie gebracht (zie Figuur 6-5 en Figuur 6-6). Zo is er een fractie van 0,05 aan deeltjes van 15 µm in suspensie bij alleen roeren, terwijl met sonificeren deze fractie 0,06-0,07 is. Voor deeltjes van 20 µm gaat het om een fractie van maximaal 0,01, terwijl met sonificeren de fractie 0,017 is. Dit verklaart ook waarom met sonificeren de turbiditeit hoger is dan zonder sonificeren (zie Tabel 6-2).

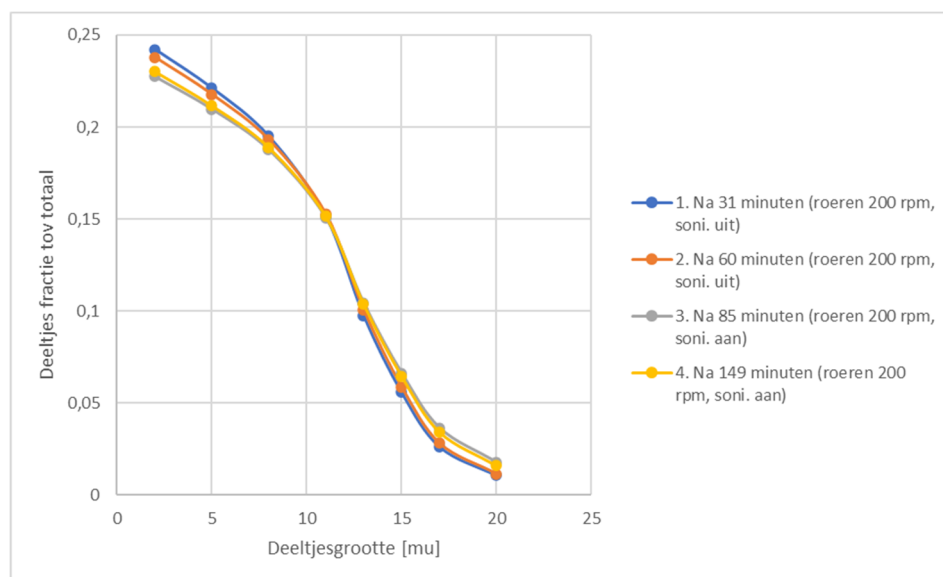
Voor de experimenten waarbij de grove fractie aan actief kool niet wordt geïnjecteerd, kan er dus gebruik worden gemaakt van het magnetisch roeren. In dat geval worden deeltjes grover dan 15 µm minder makkelijk in suspensie gebracht.



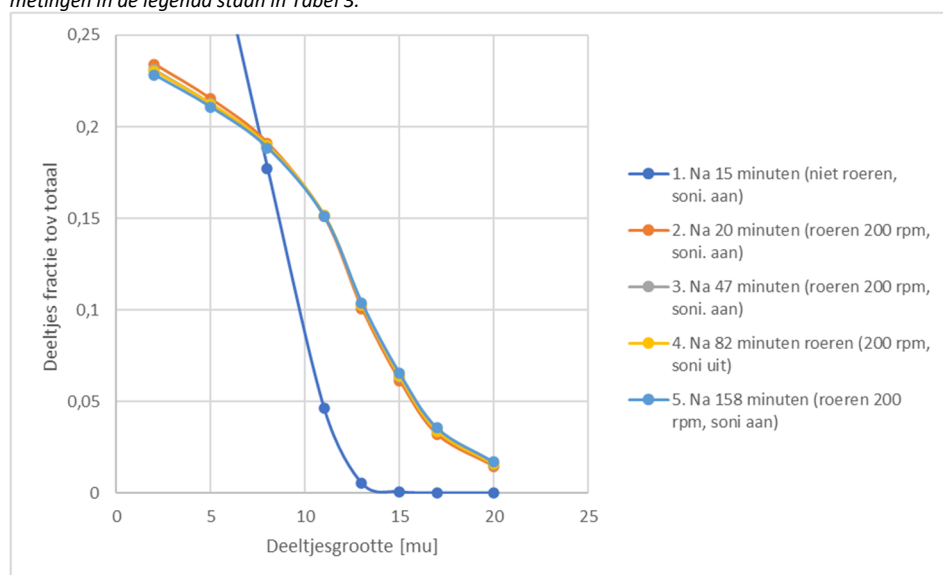
Figuur 6-3. Deeltjesgrootte verdeling in de stockplossing tijdens roeren voor batchexperiment 1 (magnatisch roeren). Roeren. Informatie over de metingen in de legenda staan in Tabel 6-2.



Figuur 6-4. Deeltjesgrootte verdeling in de stockplossing tijdens roeren voor batchexperiment 2. Roeren (magnatisch roeren).. Informatie over de metingen in de legenda staan in Tabel 6-2.



Figuur 6-5. Deeltjesgrootte verdeling in de stockoplossing tijdens roeren voor batchexperiment 3 Roeren en sonificeren. Informatie over de metingen in de legenda staan in Tabel 3.



Figuur 6-6. Deeltjesgrootte verdeling in de stockoplossing tijdens roeren voor batchexperiment 4 Roeren en sonificeren . Informatie over de metingen in de legenda staan in Tabel 6-2. \*Na 15 minuten is er niet geroerd en is er maar een heel klein deel actief kool gesuspendeerd. Dit gaat met name om fijn actie kool (voor 2 mu een fractie van 0,46, en 5 mu een fractie van 0,32).

### V.IV Bezinksnelheid na stoppen van het roeren en sonificeren

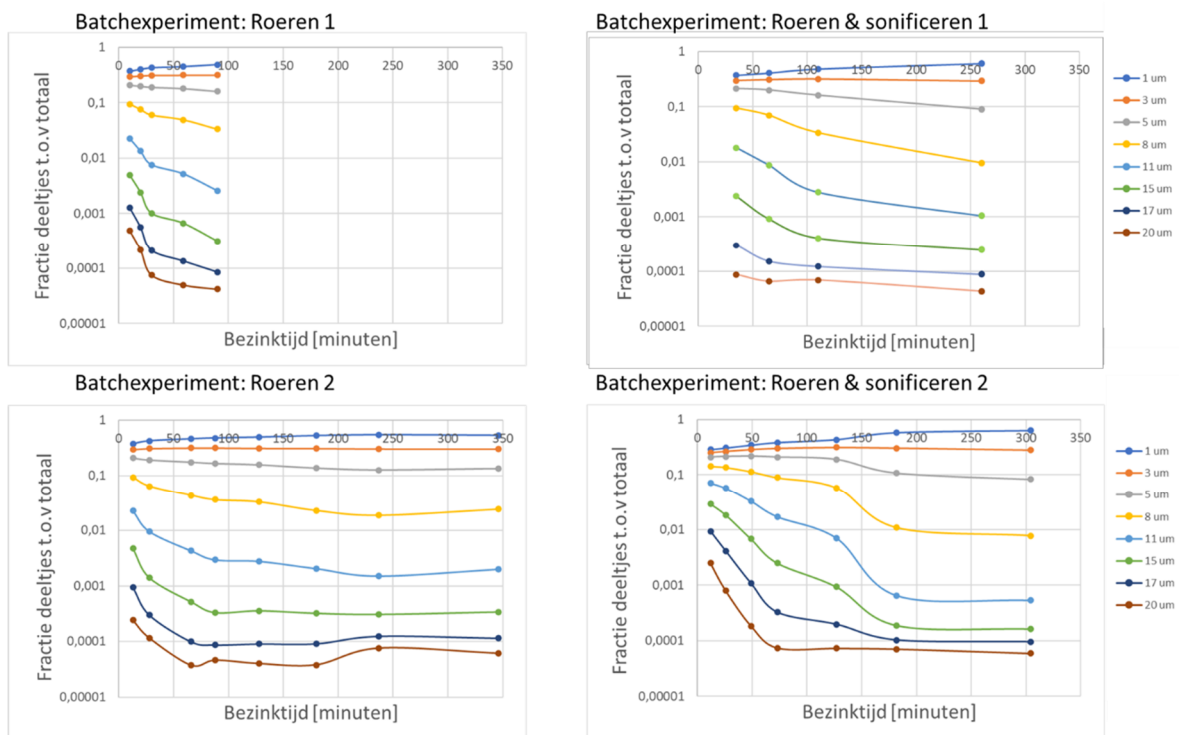
Nadat het mengproces van roeren en/of sonificeren is beëindigd zijn er zowel turbiditeitsmetingen en deeltjestellingmetingen uitgevoerd. Uit de maatbeker waarin het actief kool is gesuspendeerd wordt voor elke meting 50 ml water gepipetteerd. Er wordt elke keer op een hoogte van een derde onder het wateroppervlak gepipetteerd. Er is hiervoor gekozen omdat er duidelijk zichtbaar was dat aan de onderkant van de maatbeker de actief kooldeeltjes accumuleerden na verloop van tijd. De verkregen oplossing van 50 ml is 10 maal verdunt, om voldoende volume aan water te hebben voor de deeltjestellingen.



In de batchexperimenten 'roeren en sonificeren' lijkt het erop dat de grovere fractie langer in suspensie in het eerste half uur (zie Figuur 6-8). In het batchexperiment 'roeren en sonificeren 2', blijft de grove fractie van 15 mu boven de 1000 deeltjes/ml na 50 minuten, terwijl dit bij alleen maar roeren 100 deeltjes/ml zijn. Als men de oplossing 120 minuten laat staan is 99% van de actief kooldeeltjes dat in suspensie is kleiner dan 11 um.

In het batchexperiment 'roeren en sonificeren 1', ligt de waarde iets lager op ongeveer op 450-160 deeltjes/ml na 50 minuten. Echter, bij het batchexperiment 'roeren en sonificeren 1' moest na 10 en 20 minuten de oplossing 30 maal verdunt worden. Deze waarden staan dan ook niet in Figuur 6-10. Na 10 minuten wordt er in de verdunde oplossing 150 deeltje/ml van 20 mu gemeten, en 639 deeltjes/ml van 17 mu.

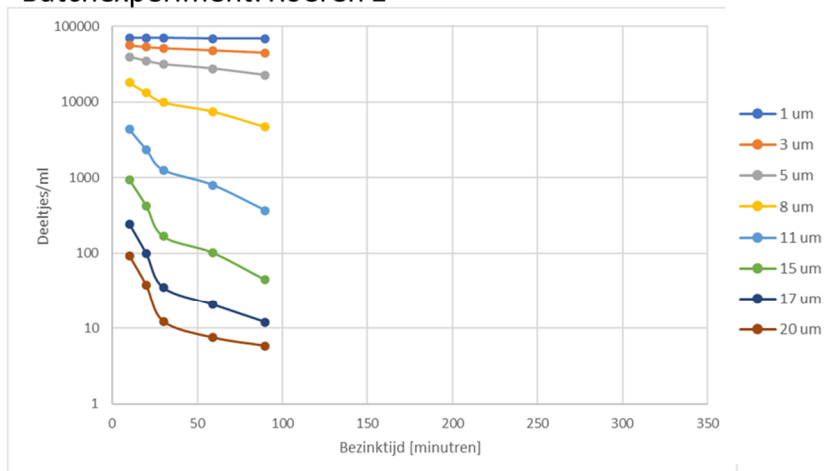
De batchexperimenten laten dus duidelijk zien dat het sonificeren helpt om de actief kooldeeltjes langer in suspensie te houden.



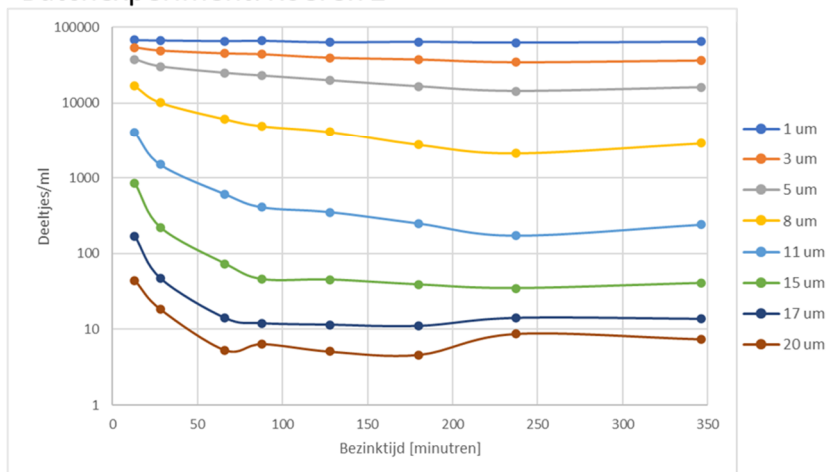
Figuur 6-8. Fractie aan deeltjes ten opzichte van de totale hoeveelheid aan deeltjes voor de vier batchexperimenten.



### Batchexperiment: Roeren 1

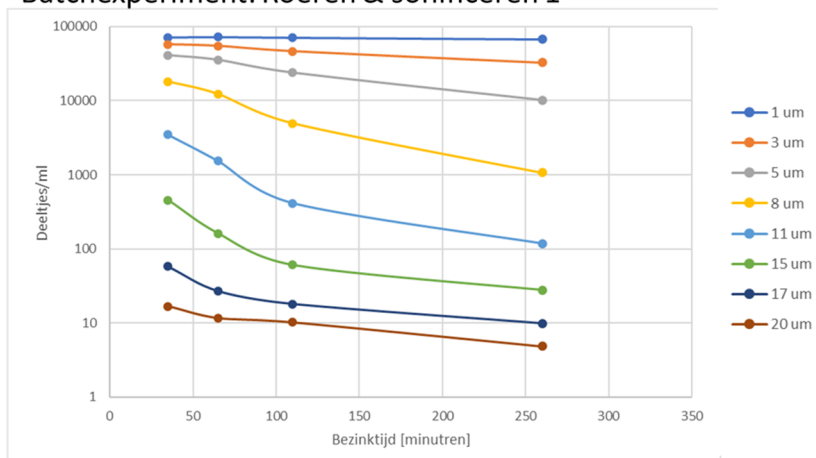


### Batchexperiment: Roeren 2

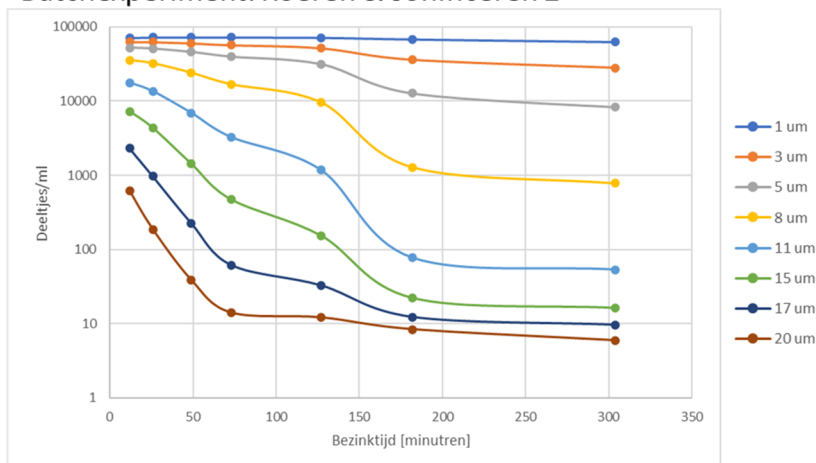


Figuur 6-9. Deeltjestelling over de tijd bij bezinken na alleen roeren.

### Batchexperiment: Roeren & sonificeren 1



### Batchexperiment: Roeren & sonificeren 2



Figuur 6-10. Deeltjestelling over de tijd bij bezinken na roeren en sonificeren

