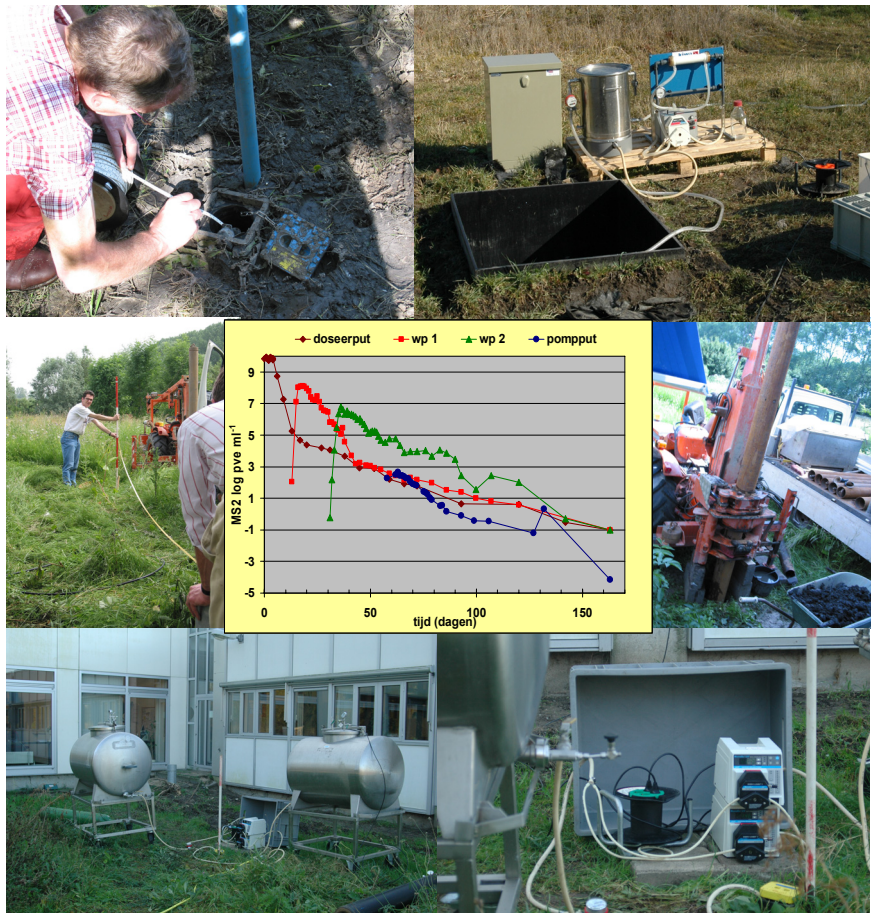


BTO 2008.004
3 maart 2008

De microbiologische veiligheid van de 60-dagenzone rond grondwaterwinningen



BTO 2008.004

3 maart 2008

De microbiologische veiligheid van de 60-dagenzone rond grondwaterwinningen

© 2008 Kiwa Water
Research.
Alle rechten voorbehouden.
Niets uit deze uitgave mag
worden verveelvoudigd,
opgeslagen in een
geautomatiseerd
gegevensbestand, of
openbaar gemaakt, in enige
vorm of op enige wijze,
hetzij elektronisch,
mechanisch, door
fotokopieën, opnamen, of
enig andere manier, zonder
voorafgaande schriftelijke
toestemming van de
uitgever.

Kiwa Water Research

Groningehaven 7

Postbus 1072

3430 BB Nieuwegein

Tel. 030 606 95 11

Fax 030 606 11 65

www.kiwawaterresearch.eu

Colofon

Titel

De microbiologische veiligheid van de 60-dagenzone rond grondwaterwinningen

Projectnummer

111517.400

Projectmanager

Wiel Senden

Opdrachtgever

BTO

Kwaliteitsborger(s)

Gertjan Medema

Auteur(s)

Paul W. J. J. van der Wielen, Wiel Senden, Gertjan Medema

Dit rapport is verspreid onder BTO-participanten en is openbaar

Voorwoord

Dit rapport beschrijft de uitvoering en resultaten van het onderzoek uitgevoerd op het Kiwa Water Research-terrein in de periode november 2005 t/m juni 2006, naar de verwijdering van bacteriofagen tijdens transport in een kwetsbaar watervoerend pakket. Bij de locatiekeuze en de interpretatie van de resultaten was het van belang om de geochemie en de hydrologie van de bodem in kaart te brengen. De hulp van Pieter Stuyfzand, Kees Maas, Gijsbert Cirkel en Klaasjan Raat van Kiwa Water Research was hierbij onontbeerlijk en we bedanken deze mensen voor hun bijdrage. Daarnaast willen we Anita Lugtenberg en Anke Brouwer bedanken voor de bepaling van de bacteriofagen en LMC voor de bepaling van bromide.

Het onderzoek werd begeleid door een projectbegeleidingscommissie met mensen uit de bedrijfstak, VEWIN en RIVM:

Andre Bannink	VEWIN
Birgitta Putters	WML
Geo Bakker	Vitens (vervangen door Vera Lagendijk)
Gerhard Wübbels	WLN
Harrie Timmer	Oasen
Harry Rolf	PWN
Joëlle Verstraelen	Brabant Water (vervangen door Mark Eck)
Wim Hoogenboezem	Het Waterlaboratorium
Jack Schijven	RIVM

Daarnaast zijn de resultaten van het project ook regelmatig besproken in de PBC Risicobeheer Bronnen en PBC Microbiologie. We willen hierbij de mensen uit de projectbegeleidingscommissie en de PBC's bedanken voor hun constructieve bijdrage aan de discussie over dit project.

Samenvatting

Biedt de 60-dagenzone voldoende veiligheid tegen virusdoorbraak?

Rond grondwaterwinningen zijn beschermingszones aangebracht waarbinnen risicovolle microbiologische en chemische activiteiten niet mogen plaatsvinden. In 1980 heeft de Commissie Bescherming Waterwingebieden vastgesteld in een richtlijn dat het waterwingebied rond grondwaterwinningen in gebieden met zand- en grindlagen zodanig groot moet zijn dat het toestromende grondwater in het watervoerende pakket een verblijftijd van ten minste 60 dagen heeft. Dit waterwingebied of 60-dagenzone beschermt de winmiddelen tegen doorbraak van micro-organismen. De 60-dagenzone is gebaseerd op onderzoek en ervaringen uit de jaren '30 met bacterieel verontreinigd water. Onduidelijk is echter of de 60-dagenzone de winmiddelen ook voldoende beschermt tegen doorbraak van virussen. Veldstudies die zijn uitgevoerd in niet kwetsbare watervoerende pakketten (zuurstofhoudend water) hebben aangetoond dat voldoende verwijdering van virussen optreedt gedurende 60 dagen bodemtransport. Een aantal Nederlandse freatische grondwaterwinningen bevinden zich echter in een gebied met een voor virussen kwetsbaar watervoerend pakket (anoxisch grondwater, korte onverzadigde zone, relatief hoge pH).

Doelstelling onderzoek

Het doel van de in dit rapport beschreven studie is om de virusverwijdering in een kwetsbare bodem te bepalen en op basis van de resultaten een uitspraak te doen over de veiligheid van de 60-dagenzone bij grondwaterwinningen met een kwetsbaar watervoerend pakket. Als de 60-dagenzone ook bij deze kwetsbare winningen voldoende blijkt, levert de 60 dagen verblijftijd overal in de Nederlandse waterwinning veilig drinkwater. Daarnaast worden de resultaten gebruikt om een virustransportmodel, dat in het verleden is gebruikt om de beschermingszone rond grondwaterwinningen uit te rekenen, te valideren.

Uitvoering van het onderzoek

Het veldonderzoek naar de verwijdering van virussen werd uitgevoerd in een kwetsbaar watervoerend pakket, dat anoxisch grondwater bevat met een pH van 7,54. Een pompput, twee waarnemingsputten en een doseerput werden in het watervoerende pakket geplaatst. Bromide (tracer) en de bacteriofagen MS2 en Φ X174 (surrogaat voor humaanpathogene virussen) werden onder anoxische condities direct in het watervoerende pakket gedoseerd via de doseerput en in de tijd werd de doorbraak van bromide en bacteriofagen bij de twee waarnemingsputten en de pompput gevolgd. De maximale concentratie bacteriofagen bij de pompput werd 62 tot 63 dagen na start van de dosering bereikt, waardoor een gedegen uitspraak kan worden gedaan over de veiligheid van de 60-dagenzone. Uit de maximale doorbraak van bromide, MS2 en Φ X174 werd de verwijdering van beide bacteriofagen berekend. Daarnaast werd ook de afsterving van beide bacteriofagen in grondwater onder anoxische condities bepaald, waardoor de verwijdering van beide bacteriofagen gesplitst kan worden in verwijdering door

verduunning, verwijdering door afsterving en verwijdering door hechting. Ten slotte werden locatiespecifieke waarden gebruikt in het virustransportmodel en werden de modelvoorspellingen vergeleken met de werkelijk gemeten verwijdering van de bacteriofagen MS2 en Φ X174.

Resultaten doseerproef en inactivatie

De gemeten logverwijdering van bacteriofaag MS2 was lineair met de verblijftijd, terwijl de logverwijdering van bacteriofaag Φ X174 over de eerste 18 dagen transport sneller was dan in het traject van 18 tot 62 dagen na start van de dosering. Bacteriofaag MS2 werd tijdens 62 dagen bodemtransport met 3,5 logeenheden verwijderd door inactivatie en hechting. De gemeten verwijdering door inactivatie en hechting van bacteriofaag Φ X174 tijdens 62 dagen bodemtransport was 4,9 logeenheden en dus hoger dan de verwijdering van MS2.

De inactivatie van beide bacteriofagen werd onder anoxische condities bepaald met water uit de doseertank, uit de eerste waarnemingsput tijdens maximale doorbraak en uit de tweede waarnemingsput 43 dagen nadat daar de maximale doorbraak was gemeten. Per bacteriofaag was de afsterving in alle drie de watermonsters ongeveer gelijk. De gemiddelde inactivatieconstante van bacteriofaag MS2 was $0,0359 \text{ log dag}^{-1}$ en hoger dan de $0,0129 \text{ log dag}^{-1}$ van bacteriofaag Φ X174. Voor MS2 werd tijdens 62 dagen bodemtransport dus 2,3 logeenheden verwijderd door inactivatie en 1,2 logeenheden door hechting. Voor Φ X174 was de verwijdering 0,8 logeenheden door inactivatie en 4,1 logeenheden door hechting.

Conservatieve benadering

De verwijdering van MS2-fagen die werd waargenomen in het anoxische watervoerende pakket, is aanzienlijk lager dan op andere locaties. Dit bevestigt onze hypothese dat de virusverwijdering laag is in een anoxisch watervoerend pakket met een relatieve hoge pH en dat een dergelijk watervoerend pakket beschouwd kan worden als een worstcasescenario voor virusverwijdering. De beschikbare kennis geeft aan dat MS2 en Φ X174 conservatieve modelvirussen zijn voor inactivatie en hechting van menspathogene virussen.

Berekening benodigde reistijd rond kwetsbare grondwaterwinningen

Uit onze resultaten bleek dat bacteriofaag MS2 slechter werd verwijderd dan Φ X174 en dat de verwijdering van MS2 laag was. Daarom werd de verwijdering van bacteriofaag MS2 gebruikt om te bepalen hoe lang de reistijd rond kwetsbare grondwaterwinningen zou moeten zijn. Om de benodigde reistijd te bepalen, werd uitgegaan van een lekkend riool. Andere activiteiten in de nabijheid van grondwaterwinning zijn minder bedreigend voor de microbiologische veiligheid. Er is gebruik gemaakt van gegevens over de aantallen (kweekbare) Entero- en Reovirussen in rioolwater, het lineaire verband tussen de verwijdering van MS2 en de verblijftijd en het wettelijke infectierisico van 1 op 10.000 mensen per jaar. Om aan dit infectierisico te voldoen zou, in het geval van een lekkend riool, een verwijdering van 9,3 logeenheden aan virussen nodig zijn. Aangenomen is

dat het lekkende rioolwater 1000 keer verdund raakt in het gewonnen grondwater, waardoor 6,3 logeenheden aan virussen moeten worden verwijderd door inactivatie en hechting. Een 6,3 logverwijdering van virussen wordt door transport in een kwetsbaar watervoerend pakket verkregen wanneer de reistijd door de bodem minimaal 110 dagen is. Zestig dagen reistijd biedt dus niet voldoende bescherming tegen een lekkend riool rond grondwaterwinningen in een kwetsbaar watervoerend pakket.

Hoeveel kwetsbare winningen zijn er?

In Nederland worden 204 zandige grondwaterwinningen gebruikt voor de productie van drinkwater. 176 van de 204 grondwaterwinningen zijn niet kwetsbaar doordat het watervoerende pakket onder beschermende kleilagen ligt (121 winningen), het grondwater oxisch is of omdat de onverzadigde zone bij de winning langer dan 5 meter is (55 winningen). Deze 176 grondwaterwinningen worden afdoende beschermd tegen virusdoorbraak met de 60-dagenzone. Elf van de 204 grondwaterwinningen hebben een vergelijkbaar kwetsbaar watervoerend pakket als het watervoerende pakket waar deze studie is uitgevoerd. Rond deze 11 winningen zou de minimale reistijd 110 dagen moeten bedragen. De overige 17 grondwaterwinningen zijn zandige winningen met suboxisch water. Verwacht wordt dat de virusverwijdering bij deze winningen ligt tussen de gemeten verwijdering in anoxische en in oxische winningen. Voor deze benodigde winningen is de reistijd dus minder dan 110 dagen, maar of ze ook minder dan 60 dagen is met de nu bestaande kennis niet te zeggen.

De Commissie Bescherming Waterwingebieden heeft de 60-dagenzone aanbevolen als richtlijn, waarbij is opgemerkt dat de lengte van de zone in meters moet worden berekend met horizontaal transport. In onze studie is berekend dat de benodigde reistijd tussen een lekkend riool en de winput bij kwetsbare grondwaterwinningen 110 dagen zou moeten zijn. Virustransport van lekkend riool naar winput zal in horizontale en verticale richting plaatsvinden, waardoor de 110-dagen reistijd wordt bepaald door zowel horizontaal en verticaal transport door de bodem. In deze studie is niet bepaald of voor de 11 kwetsbare winningen in Nederland de lengte in meters van 110 dagen transport in horizontale en verticale richting overeenkomt met de lengte in meters van de 60-dagenzone (met alleen horizontaal transport).

Resultaten modelvalidatie

Het virustransportmodel dat werd gebruikt om de beschermingszone te schatten, werd in onze studie gevalideerd met empirische data (data verzameld in onze studie) die niet zijn gebruikt voor de ontwikkeling van het model. Uit deze modelvalidatie bleek dat het model de verwijdering van MS2 en Φ X174 tijdens 62 dagen bodemtransport met respectievelijk 8,0 en 9,7 logeenheden hoger schatte dan daadwerkelijk is gemeten. Voor beide bacteriofagen gold dat het model zowel de verwijdering door hechting als de verwijdering door inactivatie te hoog schatte. We concluderen daarom dat het virustransportmodel een onbetrouwbare voorspelling geeft van de werkelijke virusverwijdering tijdens bodemtransport. Voor bacteriofaag MS2 schatte het model de verwijdering beduidend beter, slechts 0,8 logeenheid te hoog,

wanneer de verwijdering door inactivatie niet met de afstand maar met de reistijd werd berekend. Het model zou bijgevolg wel gebruikt kunnen worden om de virusverwijdering te berekenen tijdens bodemtransport van fecale bron tot pompput, mits zowel de afstand als de reistijd van bron tot pompput bekend zijn.

Conclusie

We concluderen dat 176 van de 204 grondwaterwinningen in Nederland met 60 dagen reistijd afdoende beschermd zijn tegen virusdoorbraak. Bij 11 kwetsbare winningen biedt, in het geval van een lekkend riool, 60 dagen reistijd niet voldoende veiligheid tegen virusdoorbraak bij de pompput. Aanbevolen wordt om bij deze elf grondwaterwinningen de beschermingszone te verlengen naar 110 dagen verblijftijd, waarbij de lengte van de 110-dagenzone in meters wordt berekend met horizontaal en verticaal transport. Ook wordt aanbevolen de benodigde reistijd te bepalen voor de resterende 17 freatische, suboxische grondwaterwinningen (tenzij de som van verticaal en horizontaal transport bij deze winningen al 110 dagen of meer bedraagt).

Inhoud

	Voorwoord	1
	Samenvatting	3
	Inhoud	7
1	Introductie	9
2	Materiaal en Methoden	13
2.1	Locatie veldexperiment	13
2.1.1	Locatiekeuze	13
2.1.2	Puttenconfiguratie	14
2.2	Bodemprofielen en geochemische eigenschappen	16
2.2.1	Bodemprofielen	16
2.2.2	Geochemische karakteristieken	16
2.3	Doseringen, monstername en metingen	20
2.3.1	Natriumbromide	20
2.3.2	Virussen	22
2.3.3	Monstername	23
2.3.4	Analyses	24
3	Resultaten van doseerproef met bromide	27
4	Resultaten van doseerproef met bacteriofagen MS2 en ΦX174	31
4.1	Doorbraak bacteriofagen MS2 en Φ X174	31
5	Verwijderingscapaciteit kwetsbaar watervoerend pakket	35
6	Afsterving in grondwater	39
6.1	Afsterving niet-gehechte bacteriofagen in grondwater	39
6.2	Afsterving gehechte bacteriofagen in grondwater	41
6.3	Discussie	41
7	Hechting	45
7.1	Berekening botsingsefficiëntie	45
7.2	Botsingsefficiëntie	46
7.2.1	Stroomsnelheid en longitudinale dispersiviteit	47
7.2.2	Botsingsefficiëntie	48
7.3	Discussie	49
8	Discussie	51
8.1	Algemeen	51

8.1.1	Bacteriofagen breken eerder door dan bromide	51
8.1.2	Vertaling van bacteriofagen naar humaanpathogene virussen	52
8.2	Vergelijking met eerdere studies	52
9	Vertaling van de resultaten naar lengte microbiologische beschermingszone	59
9.1	Bronnen voor virusbesmetting	59
9.2	Humaanpathogene virussen in fecale bronnen	59
9.3	Berekening microbiologische veiligheidszone rond grondwaterwinningen	60
9.4	Kwetsbare freatische grondwaterwinningen in Nederland	62
10	Modellering verwijdering bacteriofagen	65
10.1	Modelbeschrijving	65
10.2	Modelberekeningen	68
10.3	Discussie	72
10.3.1	Hechting	72
10.3.2	Inactivatie	73
11	Conclusies	77
11.1	Veldstudie	77
11.2	Lengte microbiologische veiligheidszone	77
11.3	Virustransportmodel	78
12	Aanbevelingen	79
12.1	Lengte beschermingszone	79
12.2	Bronnen en monsternamen	79
12.3	Model	80
13	Referenties	81
I	Bijlage: Theoretische berekening van α_L	87

1 Introductie

Tweederde van het Nederlandse drinkwater wordt bereid uit grondwater. Het gebruik van grondwater voor de drinkwaterbereiding heeft als voordeel dat grondwater een hoge hygiënische kwaliteit heeft. Om deze kwaliteit te waarborgen zijn er rond grondwaterwinningen beschermingszones aangebracht waarbinnen risicovolle microbiologische en chemische activiteiten niet mogen plaatsvinden. Van oudsher is de bescherming van grondwaterwingebieden gericht op microbiologisch kwetsbare activiteiten. De oudst bekende beschermingsrichtlijnen dateren van 1953 en werden toegepast in Duitsland. Deze richtlijnen zijn opgesteld door de Duitse hygiënicus Knorr, die op basis van onderzoek en ervaringen had ontdekt dat voor water verontreinigd met bacteriën een verblijftijd van 50 tot 60 dagen in het watervoerende pakket voldoende is voor een zodanige verwijdering dat er geen gevaar meer is voor de volksgezondheid [19,20]. Knorr geeft echter zelf al aan dat het niet duidelijk is of deze verblijftijden ook afdoende zijn voor virussen.

In Nederland heeft de Commissie Bescherming Waterwingebieden, op basis van de bevindingen van Knorr, vastgesteld in een richtlijn dat in gebieden met zand- en grindlagen het waterwingebied gelegen rondom de winningsmiddelen zodanig groot is dat het toestromende grondwater in het watervoerende pakket een verblijftijd van ten minste 60 dagen heeft [1]. In het waterwingebied zijn bij voorkeur alleen die activiteiten toelaatbaar, die noodzakelijk zijn voor de winning. De commissie geeft daarbij de aanbeveling om de berekening van de 60-dagen-verblijftijd uit te voeren in het watervoerende pakket waaruit het water wordt gewonnen, omdat de beschermende werking van slechtdoorlatende deklagen niet altijd vertrouwd kan worden. Indien er echter zekerheid bestaat over de werking van een slechtdoorlatende kleilaag kan zij mede in beschouwing worden genomen. De commissie merkt in haar rapport wel op dat de verblijftijd van 60 dagen onvoldoende onderbouwd is, in het bijzonder voor virussen.

Meer recent zijn er veldstudies uitgevoerd naar de verwijdering van micro-organismen tijdens bodempassage in het watervoerende pakket [4,6,8,9,22,26-28,33,34,47]. In één van die studies werd de verwijdering van virussen onderzocht tijdens kunstmatige infiltratie van oppervlaktewater in de duinen bij Castricum [33]. De resultaten van die studie laten zien dat na 26 dagen bodempassage in het oxische watervoerende pakket van eolisch zand 8,1 logeenheden verwijdering van virussen plaatsvond. In een andere studie werd de verwijdering van bacteriën en virussen onderzocht tijdens diepinfiltratie van oppervlaktewater in een anoxisch watervoerend zandpakket bij Someren [34]. Uit deze studie bleek dat na een verblijftijd van 2,4 dagen in het watervoerende pakket 7,5 logeenheden verwijdering van bacteriën had plaatsgevonden. Virussen waren persistenter; tijdens 38 dagen verblijftijd in het watervoerende pakket werden 8,4 logeenheden virussen verwijderd. Op deze twee locaties zorgt een verblijftijd van 60 dagen in het watervoerende pakket dus voor voldoende verwijdering van micro-

organismen, maar het is onduidelijk of deze twee locaties representatief zijn voor alle grondwaterwinningen in Nederland.

De resultaten van de veldexperimenten bij Castricum en Someren zijn in een virustransportmodel gebruikt om de verwijdering van virussen tijdens bodempassage te voorspellen [32]. Met het model werd bepaald hoe groot de beschermingszone rond grondwaterwinningen zou moeten zijn, ervan uitgaande dat virussen uit een lekkend riool in het watervoerende pakket terecht komen en een infectierisico van 1 op 10.000 mensen per jaar. De modelresultaten lieten zien dat om met 95% zekerheid onder het infectierisico van 1 op 10.000 mensen te blijven, verblijftijden van 1 tot 2 jaar nodig zijn [35,36]. De berekende verblijftijden wijken sterk af van de verblijftijden in de twee eerder genoemde veldstudies [33,34]. Dit verschil wordt veroorzaakt door de gevoeligheid van het model voor de parameters die de hechting en inactivatie van de bacteriofagen beschrijven [35, 36]. Bij de modelberekeningen van de beschermingszone werd aangenomen dat (i) het aantal hechtingsplaatsen in het watervoerende pakket minimaal zijn, waardoor de hechtingsparameter erg laag is en dat (ii) de inactivatieconstante van virussen in grondwater zeer laag is [32,35,36]. Het is onbekend of deze twee aannames ook gelden bij de Nederlandse grondwaterwinningen. Recent is er een 'second opinion' van de modelstudie uitgevoerd, waarin een splitsing werd gemaakt naar oxische en anoxische grondwaterwinningen [43,44]. De modeluitkomsten van deze 'second opinion' toonden aan dat rond grondwaterwinningen met oxisch grondwater de beschermingszone 43 tot 117 dagen zou moeten zijn, terwijl voor anoxische winningen de zone 555 tot 898 dagen (1,5 tot 2,5 jaar) zou moeten zijn [43,44]. Aangezien het model niet is gevalideerd met data uit een veldstudie die niet zijn gebruikt bij de kalibratie van het model, is de voorspellende waarde van de modeluitkomsten onbekend. Uit de modelstudies volgt dat de huidige richtlijn van 60 dagen ontoereikend zou kunnen zijn, maar dat er onzekerheid bestaat over de waarde van de modeluitkomsten.

Tot zover ons bekend zijn de veldstudies gepubliceerd in de wetenschappelijke literatuur allemaal uitgevoerd in een oxisch watervoerend pakket [4,6,8,9,22,26-28,33,47] of in een watervoerend pakket waarbij oxisch oppervlaktewater werd geïntroduceerd in het anoxische pakket [34]. Deze condities zijn niet te typeren als meest kwetsbaar en mede daardoor is het onduidelijk of de 60 dagen zone ook in een kwetsbaar watervoerend pakket de winputten afdoende beschermd tegen doorbraak van micro-organismen. Een kwetsbaar watervoerend pakket bevat anoxisch grondwater, een korte onverzadigde zone en een relatief hoge pH [45].

Het doel van het onderzoek beschreven in dit rapport is om de verwijdering van virussen te bepalen tijdens 60 dagen verblijftijd in een kwetsbaar watervoerend pakket. De resultaten van het onderzoek worden gebruikt om (i) een uitspraak te doen of de huidige richtlijn van 60 dagen verblijftijd in het watervoerende pakket ook de meest kwetsbare grondwaterwinningen voldoende beschermd tegen besmetting met virussen (en dus impliciet alle

grondwaterwinningen) en (ii) om het eerder genoemde virustransportmodel te valideren, zodat de voorspellende waarde van het model bekend wordt.

2 Materiaal en Methoden

2.1 Locatie veldexperiment

2.1.1 Locatiekeuze

Virusverwijdering tijdens bodempassage vindt plaats door twee mechanismen: hechting en inactivatie. De hechting is in grote mate afhankelijk van de zuurgraad van het grondwater en van de concentratie metaal(hydro)oxiden en organisch materiaal in de bodem [30,31]. Een hogere pH van het grondwater zorgt voor een negatievere oppervlaktelading van een deeltje, waardoor de afstoting tussen micro-organismen en zanddeeltjes groter wordt en er dus minder hechting van micro-organismen optreedt [31]. Metaal(hydro)oxiden zijn positief geladen deeltjes en vormen daardoor hechtingsplaatsen voor de negatief geladen micro-organismen [28,29]. De concentratie van metaal(hydro)oxiden in de bodem is afhankelijk van de aanwezige metaalionen en redoxcondities; onder oxische condities is de concentratie van metaal(hydro)oxiden over het algemeen veel hoger dan onder anoxische condities. Het effect van organisch materiaal op hechting van micro-organismen is minder duidelijk, aan de ene kant kan organisch materiaal micro-organismen binden door bijvoorbeeld hydrofobe interacties, aan de andere kant kan organisch materiaal ook gaan hechten aan plaatsen waar normaal micro-organismen hechten, waardoor er minder hechtingsplaatsen voor micro-organismen zijn [31]. De inactivatie van micro-organismen in grondwater is voornamelijk afhankelijk van de temperatuur en redoxcondities van het grondwater. Bij hogere temperatuur en onder oxische condities is de afsterving van micro-organismen hoger [5,15,31,50,51].

Tabel 2.1 Hydrochemische parameters in het grondwater

	Doseerput	Waarnemingsput 2
Waterstofcarbonaat (mg l ⁻¹ HCO ₃)	335	345
Bromide (mg l ⁻¹ Br)	0,19	0,16
Ammonium (mg l ⁻¹ NH ₄)	0,98	1,4
Chloride (mg l ⁻¹ Cl)	120	88
Nitraat (mg l ⁻¹ NO ₃)	<0,046	0,046
Sulfaat (mg l ⁻¹ SO ₄)	1,9	0,96
IJzer-totaal (mg l ⁻¹ Fe)	1,7	2,1
Mangaan-totaal (mg l ⁻¹ Mn)	1,1	0,85
Zuurstof (mg l ⁻¹ O ₂)	0,61	0,75
Natrium (mg l ⁻¹ Na)	52	36
Kalium (mg l ⁻¹ K)	1,4	1,2
Calcium (mg l ⁻¹ Ca)	105	105
Magnesium (mg l ⁻¹ Mg)	15	14
Temperatuur (°C)	12,9	12,9
pH	7,52	7,56
EGV ms m ⁻¹	88,5	80,8

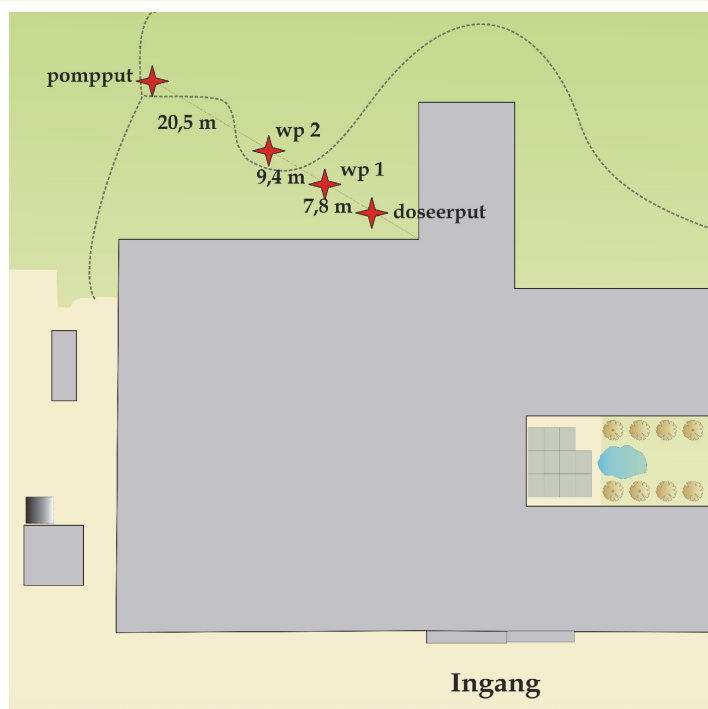
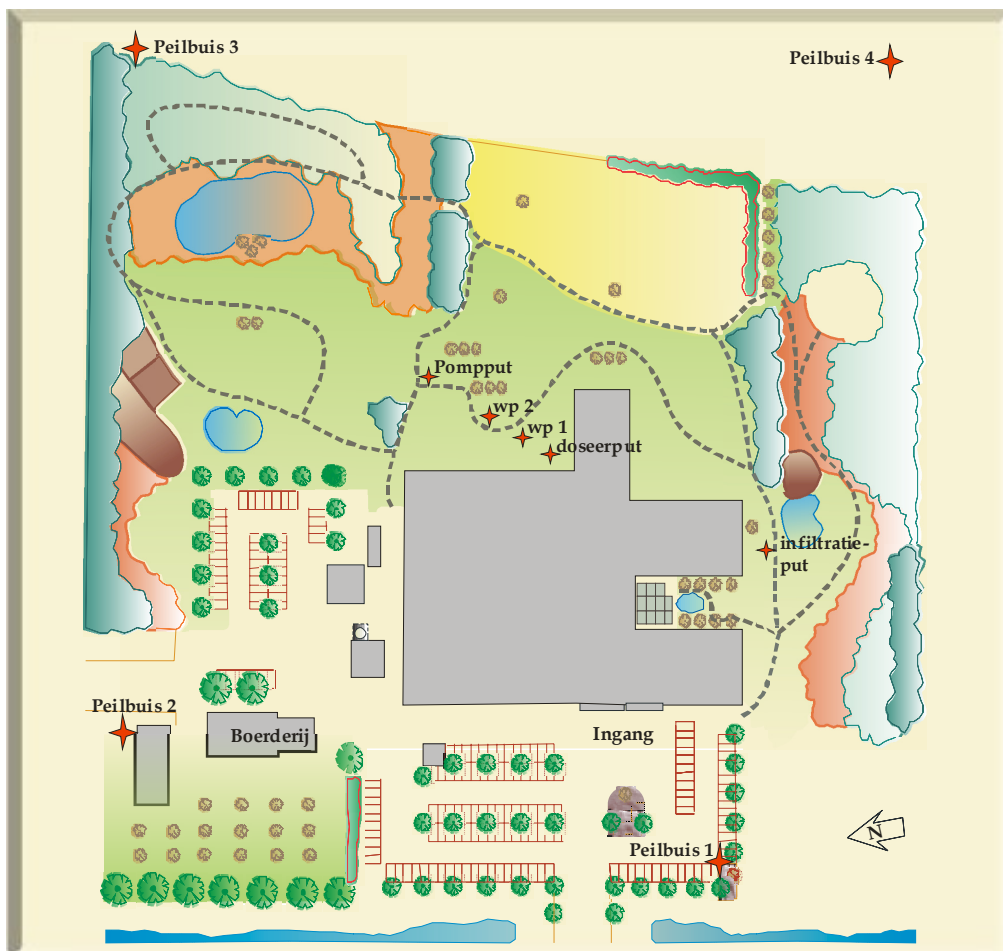
Uit bovenstaande beschrijving volgt dat een bodem die kwetsbaar is voor virustransport wordt gekenmerkt door een anoxisch watervoerend pakket met een relatieve hoge pH en lage temperatuur. Het terrein van Kiwa Water Research te Nieuwegein lijkt een dergelijke kwetsbaar watervoerend pakket te herbergen, mits de doseringen direct in het watervoerende pakket worden gedaan omdat boven het watervoerende pakket zich een ~ 9 meter dikke kleilaag bevindt. Daarom werden op die locatie grondwatermonsters genomen uit het eerste watervoerende pakket en geanalyseerd op een aantal geochemische parameters (Tabel 2.1). Het onderzochte grondwater had met een pH van ongeveer 7,5 een relatieve hoge pH en volgens de redoxclassificatie van Stuyfzand [38] kan het grondwater getypeerd worden als anoxisch (redoxlevel 4; SO₄ (meta)stabiel; typische redoxpotentiaal van -50 mV). De geochemische condities van het eerste watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein zijn dus zodanig dat het een lage capaciteit lijkt te hebben voor virusverwijdering. Daarom werd besloten om op deze locatie de verwijdering van virussen tijdens 60 dagen transport in een kwetsbaar watervoerend pakket te onderzoeken, door de doseringen direct in het watervoerende pakket uit te voeren, onder de 9 meter dikke kleilaag.

2.1.2 Puttenconfiguratie

Om de verwijdering van virussen in de ondergrond op het Kiwa Water Research-terrein te onderzoeken, werden vier peilputten, een doseerput, twee waarnemingsputten, een pompput en een infiltratieput geboord. Een bovenaanzicht van de locatie met de geplaatste putten is weergegeven in Figuur 2.1A. De vier peilputten werden op de vier uithoeken van het Kiwa Water Research-terrein geplaatst (Figuur 2.1A), zodat het natuurlijke verhang van het grondwater kon worden bepaald. Uit de grondwaterstand van de peilbuizen werd geconcludeerd dat het verhang in noordoostelijke richting is. Het gedoseerde water stroomt in één lijn naar de pompput wanneer de natuurlijke grondwaterstroming overeenkomt met de stroming veroorzaakt door de onttrekking. Om het gedoseerde water in één lijn naar de pompput te laten stromen, werden de overige putten (doseerput, waarnemingsputten en pompput) zo geplaatst dat ze ongeveer op één lijn lagen met de grondwaterstroom (Figuur 2.1).

Tabel 2.2 Afstanden en gemodelleerde reistijden tussen de verschillende putten

	Afstand (m)	Gemodelleerde reistijd (d)
Doseerput - Pompput	37,7	60
Waarnemingsput 1 - Pompput	29,9	45
Waarnemingsput 2 - Pompput	20,5	30
Waarnemingsput 1 - Doseerput	7,8	15
Waarnemingsput 2 - Doseerput	17,2	30
Pompput - Doseerput	37,7	60



Figuur 2.1 Kaart van het Kiwa Water Research-terrein waar de peilputten, doseerput, waarnemingsputten (wp1 en wp2), pompput en infiltratieput op zijn aangegeven

De puttenconfiguratie van de doseerput, waarnemingsputten en pompput is schematisch weergegeven in Figuur 2.1B, terwijl de afstanden tussen de putten is weergegeven in Tabel 2.2. De pompput ontrok het grondwater met een debiet van $11,32 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ en het opgepompte water werd met een retourleiding van ~ 125 meter getransporteerd naar de infiltratieput, waar het opgepompte grondwater weer werd teruggeïnfiltreerd in het watervoerende pakket. De positie van de infiltratieput lag ook ongeveer in één lijn met de overige putten (Figuur 2.1), zodat de richting van de grondwaterstroming niet werd beïnvloed.

Met behulp van een hydrologisch model werd de verblijftijd van 60 dagen in het watervoerende pakket omgerekend naar een afstand in meters; de doseerput werd op deze afstand van de pompput geplaatst (Tabel 2.2). Het hydrologische model werd ook gebruikt om de afstand van de waarnemingsputten tot de doseerput te berekenen, waarbij de waarnemingsputten zodanig werden geplaatst dat de gemodelleerde verblijftijd van het water, gemeten vanaf de doseerput, 15 dagen was tot de eerste waarnemingsput en 30 dagen tot de tweede waarnemingsput. Door middel van pulsen werden de putten geboord, de doseerput en de twee waarnemingsputten werden tot een diepte van 13 meter onder maaiveld geboord met een boorbuisdiameter van 168 mm, waarbij de filters werden geplaatst van 11 tot 13 meter. De pompput werd geboord tot een diepte van 15 meter met een boorbuisdiameter van 220 mm; de filters van de pompput werden geplaatst op een diepte van 10 tot 15 meter onder maaiveld.

2.2 Bodemprofielen en geochemische eigenschappen

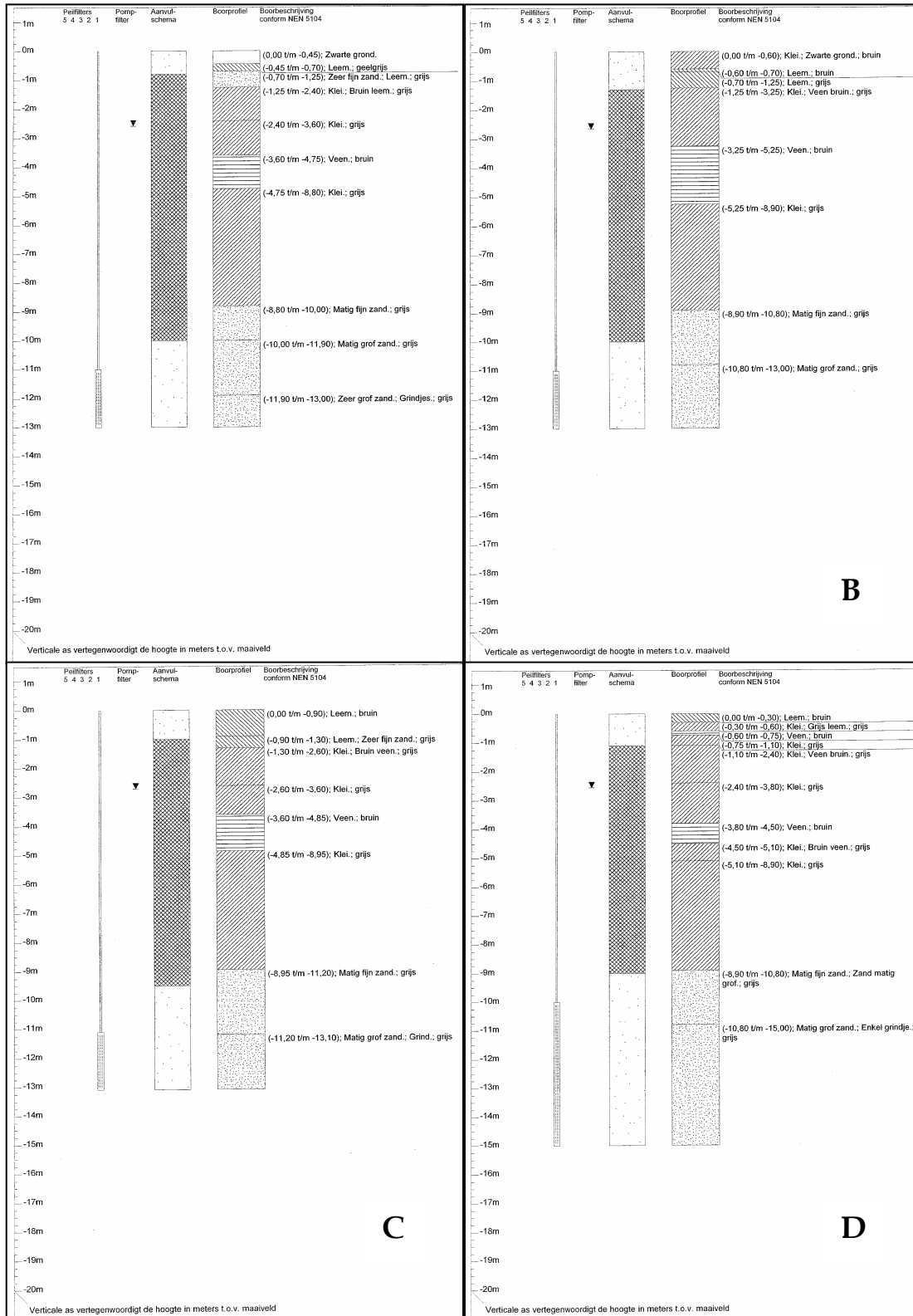
2.2.1 Bodemprofielen

Tijdens het boren van de doseerput, waarnemingsputten en pompput werd van elke boring een boorbeschrijving gemaakt (Figuur 2.2). Globaal komen de boorbeschrijvingen van de vier boringen overeen. De eerste 0,5 meter van de bodem bestaat uit een toplaag van zwarte grond. De tweede laag (60 cm dikte) bestaat uit leem vermengd met zeer fijn zand, daaronder zit een onderscheidende kleilaag die na 2 tot 3 meter wordt onderbroken door een veenlaag van 1 tot 2 meter. De kleilaag onder de veenlaag is ongeveer 4,5 meter dik en reikt tot ongeveer 8,90 meter onder maaiveld. Na deze kleilaag volgt een laag van 0,5 tot 1,5 meter met matig tot fijn zand, gevolgd door een laag van matig grof zand. De onderste kleilaag van 4,5 meter dik (Figuur 2.2) werkt als afsluitende laag boven het zandige pakket waarin de filters zijn geplaatst. De stroming van doseerput naar pompput, en daarmee de reactie tussen bodem en virusdeeltjes, vindt dan ook alleen plaats in dit zandige watervoerende pakket. In de beschrijving hieronder wordt daarom de geochemie van het zandige pakket behandeld.

2.2.2 Geochemische karakteristieken

Het zandige pakket (diepte $> 8,90 \text{ m}$ -mv; Figuur 2.2) behoort tot de Formatie van Kreftenheye en bestaat uit een laag met matig fijn zand (dikte 0,5 tot 1,5 m) bovenop een laag matig grof zand. De filters van doseerput en

waarnemingsputten zijn geplaatst in het matig grove zand. Het filter van de pompput is ook grotendeels in dit zand geplaatst, maar loopt door tot in het



Figuur 2.2 Boorbeschrijvingen van de doseerput (A), de eerste waarnemingsput (B), de tweede waarnemingsput (C) en de pompput (D).

Tabel 2.3 Percentages lutum, silt en zand en geschatte permeabiliteit

	Diepte (m -mv)	Lutum <2 (%)	silt 2 - 63 (%)	zand 63 - 2000 (%)	Permeabiliteit [m dag ⁻¹]
D1_1 ^a	11,0	0,7	2,7	96,6	11,6
D1_2	12,0	0,6	2,2	97,1	12,0
D1_3	13,0	0,5	1,6	97,9	15,1
W1_1	11,0	0,6	2,1	97,4	12,9
W1_2	12,0	0,6	2,0	97,5	12,7
W1_3	13,0	0,5	1,8	97,7	12,3
W2_1	11,0	0,8	3,0	96,3	7,3
W2_2	12,0	0,6	2,0	97,4	11,5
W2_3	13,0	0,5	1,8	97,7	14,9
P1_1	10,3	1,3	5,6	93,1	2,4
P1_2	11,3	0,6	2,1	97,3	11,6
P1_3	12,3	0,7	2,6	96,7	12,3
P1_4	13,3	0,3	0,7	99,0	20,8
P1_5	14,3	0,5	1,7	97,8	13,1

^a D is doseerput, W1 is eerste waarnemingspunt, W2 is tweede waarnemingsput en P is pompput

Tabel 2.4 Classificatie zandfractie volgens indeling Rijksgeologische Dienst

	diepte (m -mv)	uiterst fijn zand 63 - 106 (%)	zeer fijn zand 106 - 150 (%)	matig fijn zand 150 - 212 (%)	matig grof zand 212 - 300 (%)	zeer grof zand 300 - 425 (%)	uiterst grof zand 425 - 2000 (%)	totaal fijn zand 63 - 212 (%)	totaal grof zand 212 - 2000 (%)
D1_1 ^a	11,0	2,1	4,7	10,5	18,3	28,1	32,9	17,2	79,4
D1_2	12,0	2,0	4,8	10,6	19,4	30,6	29,8	17,5	79,7
D1_3	13,0	1,0	2,1	5,5	13,5	25,1	50,7	8,6	89,3
W1_1	11,0	1,5	3,4	8,8	21,5	34,3	27,8	13,8	83,6
W1_2	12,0	1,5	3,5	9,6	23,0	33,4	26,5	14,6	82,9
W1_3	13,0	1,3	2,9	7,3	17,0	28,6	40,6	11,4	86,3
W2_1	11,0	2,1	4,5	10,5	21,1	31,5	26,7	17,1	79,2
W2_2	12,0	1,4	3,2	7,9	17,6	29,8	37,5	12,5	84,9
W2_3	13,0	1,5	3,4	8,1	18,0	28,4	38,4	13,0	84,8
P1_1	10,3	3,0	6,7	16,6	27,2	26,2	13,4	26,3	66,8
P1_2	11,3	1,6	3,4	7,1	14,9	31,1	39,2	12,1	85,2
P1_3	12,3	1,5	3,3	9,1	22,4	33,3	27,1	13,9	82,8
P1_4	13,3	0,8	2,0	5,9	17,3	30,0	43,0	8,7	90,2
P1_5	14,3	1,2	2,9	9,8	26,4	33,0	24,4	13,9	83,8

^a D is doseerput, W1 is eerste waarnemingspunt, W2 is tweede waarnemingsput en P is pompput

matig fijne zand (Figuur 2.2). Tijdens installatie zijn in de doseerput en waarnemingsputten op drie dieptes monsters genomen (11; 12 en 13 m -mv); in de pompput zijn op vijf dieptes monsters genomen (10,3; 11,3; 12,3; 13,3 en 14,3 m -mv). De monsters zijn vervolgens geochemisch geanalyseerd in verschillende laboratoria.

Korrelgrootteverdeling en geschatte permeabiliteit

In Tabel 2.3 en 2.4 worden de korrelgrootteverdeling en geschatte permeabiliteit gegeven. Zoals uit boorbeschrijvingen al bleek, is het pakket grofzandig, met lage gehalten silt en klei. De korrelgrootteverdeling in het pakket is behoorlijk homogeen, met weinig textuurvariatie met de diepte en langs de stroombaan. Alleen het bovenste monster van de pompput (P1_1) heeft een hoger siltgehalte, maar dit monster is dan ook gestoken op geringere diepte (10,30 m -mv), in het matig fijne zand. Het pakket is goed waterdoorlatend; de permeabiliteit, berekend uit de korrelgrootteverdeling aan de hand van Ernst [12] en Fahmy [13], ligt tussen de 7 en 20 m dag⁻¹. De permeabiliteit van monster P1_1 is vanzelfsprekend geringer (2,4 m dag⁻¹)

Lutum, organische stof en cation exchange capacity (CEC)

Organische-stofgehalten zijn zeer laag, met in het algemeen waarden onder de 0,2% (Tabel 2.5). Ook hier geldt dat gehalten weinig variëren met de diepte of langs de stroombaan. De lage organische-stofgehalten en lage lutumgehalten vertalen zich in lage CEC-waardes (geschat uit gehalten organische stof, lutum en de pH). De CEC ligt tussen de 5 en 11 meq kg⁻¹, met uitzondering van monster P1_1. Het hogere lutumgehalte van dit monster resulteert in een iets hogere, maar absoluut gezien nog altijd geringe, CEC.

Tabel 2.5 Percentages organische stof en lutum en CEC (geschat op basis van organische stof, lutum en pH)

	Diepte (m -mv)	org.stof (%)	Lutum (%)	CEC (meq kg⁻¹)
D1_1	11,0	0,15	0,69	10,6
D1_3	13,0	0,10	0,46	5,6
W1_1	11,0	1,04	0,55	7,3
W1_3	13,0	0,12	0,54	6,9
W2_1	11,0	0,15	0,80	10,8
W2_3	13,0	0,15	0,52	6,9
P1_1	10,3	0,14	1,31	19,3
P1_3	12,3	0,11	0,74	9,8
P1_5	14,3	0,14	0,54	7,0

Mineralen en pH

Gegevens over kenmerkende mineralen en pH zijn samengevat in Tabel 2.6. De lage organische-stofgehalten vertalen zich in zeer lage organisch stikstof- (data niet getoond) en organische-zwavelgehalten. Van het totaal zwavel (S; Tabel 2.6) is dus het overgrote deel anorganisch. Gezien het anoxische redoxmilieu en de beschikbare hoeveelheden ijzer (Fe) is het aannemelijk dat het anorganische zwavel volledig voorkomt in de vorm van pyriet (FeS₂). Uit zwavel geschatte hoeveelheden pyriet variëren tussen de 50 en 200 mg kg⁻¹.

Oxalaat-extraheerbaar Fe en Al, als maat voor het aandeel metaal(hydr)oxiden, zijn niet bepaald. Echter, gezien het redoxmilieu is het zeer onwaarschijnlijk dat (hydr)oxiden voorkomen.

Het pakket is rijk aan kalk, met kalkgehalten tussen de 30 en 60 g kg⁻¹. Dit komt overeen met de pH van het grondwater (pH 7,5; Tabel 2.1) en de pH-H₂O (pH-H₂O tussen 8,2 en 8,9). Een hoge pH heeft overigens een verlagende werking op de actuele CEC, maar deze invloed is meegewogen in de berekening van de CEC in Tabel 2.5. Het elektrisch geleidingsvermogen (EGV) heeft een waarde die gangbaar is voor zoet grondwater.

Tabel 2.6 Zwavel-, pyriet- en kalkgehalten; pH-H₂O en elektrisch geleidingsvermogen (EGV). Pyrietgehalte is geschat uit gehalte anorganisch zwavel

	Diepte (m -mv)	S- organisch (mg kg ⁻¹)	S-totaal (mg kg ⁻¹)	FeS ₂ (mg kg ⁻¹)	CaCO ₃ (g kg ⁻¹)	pH-H ₂ O	EC-H ₂ O (20°C) (uS cm ⁻¹)
D1_1	11,0	6	105	185	41,0	8,76	2
D1_3	13,0	4	75	133	32,2	8,83	121
W1_1	11,0	41	70	53	47,6	8,76	154
W1_3	13,0	5	40	66	44,2	8,82	146
W2_1	11,0	6	45	73	55,9	8,55	176
W2_3	13,0	6	45	73	43,9	8,88	134
P1_1	10,3	6	110	195	67,2	8,21	240
P1_3	12,3	4	70	123	58,2	8,36	209
P1_5	14,3	5	35	55	59,3	8,73	100

Geochemie in relatie tot virustransport

Als locatie voor het experiment werd gezocht naar een anoxisch watervoerend pakket met een relatieve hoge pH en lage temperatuur, zodat afsterving en hechting van virusdeeltjes minimaal zou zijn. De geochemie zoals hierboven beschreven bevestigt de keuze voor de locatie op het terrein van Kiwa Water Research te Nieuwegein. Het watervoerende pakket is inderdaad anoxisch en heeft een hoge pH. Daarnaast is het aantal hechtingsplaatsen in het pakket zeer beperkt door de lage organische-stof- en lutumgehalten en de (waarschijnlijke) afwezigheid van metaal(hydr)oxiden. Verwacht wordt dat aanwezig pyriet en kalk niet (direct) van invloed zijn op virustransport.

2.3 Doseringen, monsternamen en metingen

2.3.1 Natriumbromide

Voordat natriumbromide als tracer werd gedoseerd was de pompput al twee maanden in bedrijf en was er in totaal 15.000 m³ water onttrokken. Het doel van de tracerdosering was tweeledig: (i) om de verblijftijden tussen de verschillende putten experimenteel vast te stellen en (ii) om de mate van verdunning van de dosering bij de waarnemingsputten en de pompput te bepalen. In eerder uitgevoerde veldexperimenten (Castricum en Someren) werd natriumchloride als conservatieve tracer gedoseerd en werd de

doorbraak met EGV-metingen bij de waarnemingsputten bepaald [33,34]. In ons veldexperiment worden metingen verricht in de pompput, waar het gedoseerde water in de pompput sterk verdund raakt met de rest van het onttrokken water (de pompput onttrekt het grondwater immers radiaal vanuit alle richtingen). Door de grote verdunning zal de concentratie van de tracer in het opgepompte water zo laag zijn dat het niet met de EGV kan worden gemeten. Daarom werd besloten om natriumbromide te gebruiken als conservatieve tracer. Het voordeel van natriumbromide als conservatieve tracer is dat, naast EGV-metingen, ook monsters genomen kunnen worden waaraan het bromidegehalte wordt bepaald. Omdat de detectiegrens van bromide laag is ($10 \mu\text{g l}^{-1}$) kan met bromidemetingen een groter verdunningseffect worden waargenomen dan met EGV-metingen. Natriumchloride en natriumbromide gedragen zich conservatief in het watervoerende pakket, wat betekent dat ze, bij verwaarlozing van dichtheidstroming, met dezelfde snelheid door het watervoerende pakket stromen als water.

Aangezien het grondwater anoxisch is en een relatief hoge ijzerconcentratie bevat, is het van belang dat zuurstof niet in het grondwater terecht komt, omdat ijzer dan onder invloed van zuurstof gaat uitvlokken tot ijzer(hydro)oxiden, die op hun beurt hechtingsplaatsen bieden voor de later gedoseerde micro-organismen. Er werd daarom 1 liter van een stockoplossing NaBr (500 g l^{-1}) toegevoegd aan een 500-liter-doseertank, waarna de gasfase van de doseertank 30 minuten werd doorgeblazen met stikstofgas (>99,9% N_2). Na het doorblazen werd de doseertank luchtdicht afgesloten en werd de geconcentreerde natriumbromideoplossing in de doseertank verdund met 500 liter anoxisch grondwater, die werd toegevoegd met een slang vanuit de monsterkraan bevestigd op de pompput. Nadat de geconcentreerde natriumbromideoplossing in het vat was verdund met 500 liter anoxisch grondwater (eindconcentratie NaBr: 1 g l^{-1}) werd de doseertank onder een lage druk van stikstofgas gezet.

De doseerslang werd 12 meter diep in de doseerput gehangen, zodat de natriumbromideoplossing direct op het putfilter werd gedoseerd. Met een debiet van 18,2 liter per uur werd de traceroplossing via twee slangenpompen in de doseerput gedoseerd (Figuur 2.3). De dosering werd gestart om 14:00 uur op 7 november 2005 en stopte om 14:00 uur op 11 november 2005. In totaal werd dus 96 uur gedoseerd, door na elke 24 uur de doseerslang te wisselen naar een andere doseertank met 500 liter anoxisch natriumbromideoplossing. Er werd gecontroleerd of de gedoseerde natriumbromideoplossing anoxisch was gebleven door, nadat 24 uur uit een tank was gedoseerd, een watermonster uit de doseertank te nemen en visueel te bepalen of er uitvlokking van ijzer had plaatsgevonden. Direct na het nemen van het watermonster werd geen uitvlokking van ijzer waargenomen, pas nadat het monster aan zuurstof was blootgesteld ontstonden ijzervlokken.



Figuur 2.3 Foto's van de doseertanks en slangenpompen waarmee de oplossingen vanuit de doseertank in de doseerput werd gepompt.

2.3.2 Virussen

De verwijdering van virussen in het watervoerende pakket werd bepaald met de bacteriofaag MS2 en Φ X174. Bacteriofaag MS2 is een icosahedrale faag met een diameter van 25 nm en heeft een laag iso-elektrisch punt van 3,5 [31,46]. Door dit lage iso-elektrische punt heeft MS2 een aanzienlijke negatieve lading bij pH-waarden van 6 tot 8 en daardoor hecht de bacteriofaag MS2 vrijwel niet aan de negatief geladen bodemdeeltjes. MS2 gedraagt zich in een watervoerend pakket met weinig organisch materiaal

dan ook als een conservatief virus [2,17,34]. Bacteriofaag ΦX174 is een icosahedrale faag met een diameter van 26 nm, maar heeft in tegenstelling tot MS2 een neutraal iso-elektrisch punt, waardoor ΦX174 minder negatief geladen is dan MS2 [14]. In vergelijking met MS2 is bacteriofaag ΦX174 minder hydrofoob en hecht daardoor minder goed aan organisch materiaal. In een watervoerend pakket met een hoog gehalte aan organisch materiaal gedraagt ΦX174 zich als een conservatief virus [31]. Beide bacteriofagen worden daarom ook beschouwd als worstcase modelvirussen voor humaanpathogene virussen: MS2 in een watervoerend pakket met een laag gehalte aan organisch materiaal en een pH tussen de 6 en 8, en ΦX174 in een watervoerend pakket met een hoog gehalte aan organisch materiaal en een pH tussen de 7 en 8.

Stockoplossingen van bacteriofagen MS2 en ΦX174 werden geleverd door GAP Enviromicrobial Services, Canada. De stockoplossing van MS2 bevatte $5,0 \times 10^{12}$ plaquevormende eenheden (pve) ml⁻¹, terwijl de stockoplossing van ΦX174 $1,1 \times 10^{10}$ pve ml⁻¹ bevatte. Evenals met de dosering van natriumbromide werd de dosering met bacteriofagen anoxisch gehouden. Er werd 1 liter van een gekoelde stockoplossing met bacteriofaag MS2 en 1 liter van een gekoelde stockoplossing met bacteriofaag ΦX174 toegevoegd aan de doseertank, waarna de gasfase van de doseertank 30 minuten werd doorgeblazen met stikstofgas (>99,9% N₂). Na het doorblazen werd de doseertank luchtdicht afgesloten en werd de geconcentreerde bacteriofaagsuspensie verdund met 500 liter anoxisch grondwater, die werd toegevoegd met een slang vanuit de monsterkraan op de pompput. Nadat de geconcentreerde bacteriofaagsuspensie in het vat verdund was met 500 liter anoxisch grondwater werd de doseertank onder een lage druk van stikstofgas gezet.

De doseerslang waarmee de fagen werden gedoseerd, werd 12 meter diep in de doseerput gehangen, zodat de suspensie met bacteriofagen direct op het putfilter werd gedoseerd. Met een debiet van 19,8 liter per uur werd de bacteriofaagsuspensie via twee slangenpompen in de doseerput gedoseerd (Figuur 2.3). De dosering werd gestart om 14:00 uur op 10 januari 2006 en stopte om 14:00 uur op 14 januari 2006. In totaal werd dus 96 uur gedoseerd, door na elke 24 uur de doseerslang te wisselen naar een andere doseertank met 500 liter anoxisch grondwater met bacteriofagen. Er werd gecontroleerd of de suspensie bacteriofagen in de doseertank anoxisch was gebleven door, nadat 24 uur uit een tank was gedoseerd, een watermonster uit de doseertank te nemen en visueel te bepalen of er uitvlokking van ijzer had plaatsgevonden. Direct na het nemen van het watermonster werd geen uitvlokking van ijzer waargenomen, pas nadat het monster aan zuurstof was blootgesteld werden ijzervlokken waargenomen.

2.3.3 *Monstername*

Doseertank

Elke doseertank werd bemonsterd één uur nadat de 500 liter natriumbromideoplossing of bacteriofaagsuspensie was gemaakt en direct nadat de dosering uit de tank was gestopt (na 24 uur doseren). Eén

doseertank met bacteriofagen werd in totaal 4 keer bemonsterd: na 0, 3, 18 en 24 uur doseren. Na 96 uur doseren werd ook een monster genomen van het water dat uit de doseerslang kwam.

Putten

Tijdens de dosering van bromide als tracer werden de twee waarnemingsputten en de pompput bemonsterd. De bromidedosering liep van 7 tot en met 11 november 2005. Van 14 november tot en met 19 december 2005 (7 tot en met 42 dagen na start dosering) werden regelmatig monsters genomen uit de eerste waarnemingsput. De tweede waarnemingsput werd regelmatig bemonsterd tussen 2 december 2005 en 16 januari 2006 (25 tot en met 70 dagen na start dosering). De pompput ten slotte werd bemonsterd tussen 23 december 2005 en 8 februari 2006 (46 tot en met 93 dagen na start dosering). Het volume in de waarnemingsputten werd twee keer ververs (24 liter) voordat 250 ml grondwater werd bemonsterd. Doordat de pompput continu water oppompt werd bij de pompput alleen het volume van de monsterkraan minimaal twee keer ververs, voordat 250 ml grondwater werd afgetapt.

Tijdens de dosering van de bacteriofaagsuspensie werden de doseerput, de twee waarnemingsputten en de pompput bemonsterd. De dosering liep van 10 tot en met 14 januari 2006. Van 14 januari tot en met 22 juni 2006 (4 tot en met 163 dagen na start dosering) werden er monsters genomen uit de doseerput, van 20 januari tot en met 22 juni 2006 (10 tot en met 163 dagen na start dosering) werden er monster genomen uit de eerste waarnemingsput en van 3 februari tot en met 22 juni 2006 (24 tot en met 163 dagen na start dosering) werden er monsters genomen uit de tweede waarnemingsput. De pompput werd bemonsterd van 9 maart tot en met 22 juni 2006 (58 tot en met 163 dagen na start dosering). Het volume van de doseerput werd een halve keer ververs (6 liter) voordat 50 ml grondwater werd bemonsterd. Het volume van de waarnemingsputten werd twee keer ververs (24 liter) voordat 50 ml van het grondwater werd bemonsterd. Bij de pompput werden er groot-volumemonsters geconcentreerd met de hemoflow, zodat uiteindelijk volumes tot 10 liter werden geanalyseerd op bacteriofagen MS2 en Φ X174. De concentratie van bacteriofaag MS2 was echter van 13 maart tot en met 06 april 2006 (62 tot en met 86 dagen na start dosering) hoog genoeg in het opgepompte grondwater bij de pompput, zodat in die periode de aantallen MS2-fagen zonder concentreringsstap konden worden bepaald.

2.3.4 *Analyses*

Bromide

Bromide werd gemeten met behulp van ionchromatografie zoals beschreven in Kiwa Water Research-huisvoorschrift EPA 300.0, aangepast voor water.

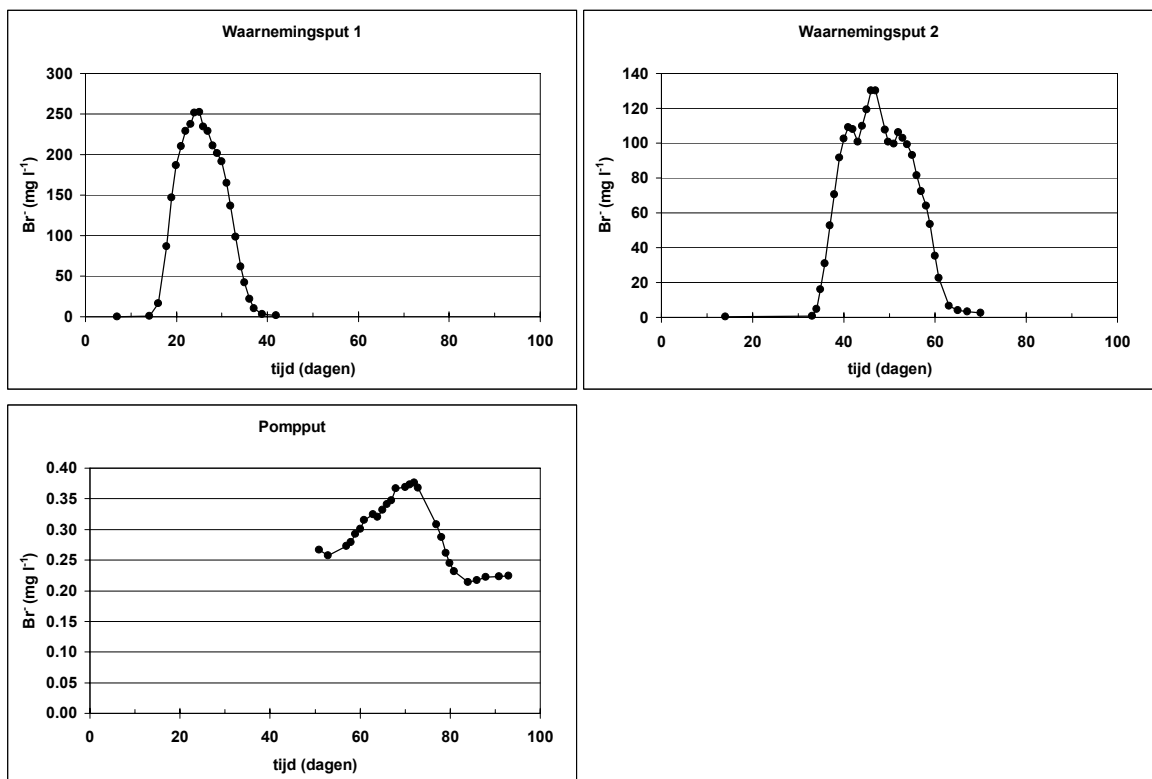
Bacteriofagen MS2 en Φ X174

Het aantal MS2- en Φ X174-bacteriofagen werd bepaald met behulp van plaquevormende eenheden, zoals beschreven in Kiwa Water Research-huisvoorschriften LMB-037 (MS2) en LMB-041 (Φ X174). Kort beschreven is de

gevolgde werkwijze als volgt: het monster of een verdunning daarvan werd in een petrischaal gemengd met semi-solid agarmedium en een cultuur van de gastheerstam (voor MS2 is dit *Salmonella typhimurium* stam WG49 en voor ΦX174 is dit *Escherichia coli* stam WG5). De petrischalen werden vervolgens 24 uur bebroed bij 37°C. Na incubatie werd het aantal heldere zones (plaques) geteld en de aantallen werden uiteindelijk omgerekend naar plaquevormende eenheden per ml (pve ml⁻¹).

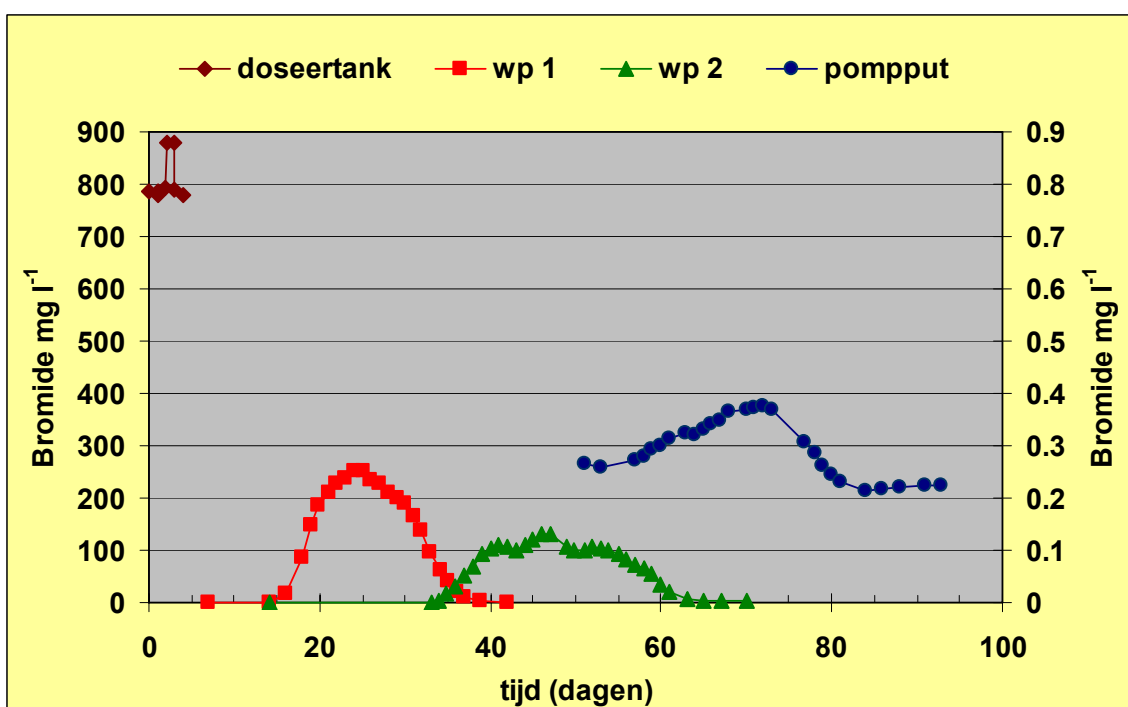
3 Resultaten van doseerproef met bromide

Natriumbromide werd gedurende vier dagen als conservatieve tracer gedoseerd in de doseerput. Na verloop van tijd werd in de twee waarnemingsputten en in de pompput een verhoogde concentratie bromide gemeten. De doorbraakcurven van bromide bij elk van de putten is weergegeven in Figuur 3.1 en 3.2. In Figuur 3.2 is ook de concentratie bromide weergegeven die in de vier verschillende doseertanks werd gemeten. In drie van de vier doseertanks werd een gemiddelde bromideconcentratie van 786 mg l^{-1} bromide gemeten, terwijl in één doseertank de bromideconcentratie 879 mg l^{-1} was. In het laatste geval was de hogere bromideconcentratie waarschijnlijk het gevolg van een abusievelijk lager gebruikt eindvolume in de doseertank (450 liter in plaats van 500 liter). Deze hogere concentratie bromide werd gedoseerd van 48 tot 72 uur na start van de dosering. De gemiddelde bromideconcentratie van de gehele dosering (0 tot 96 uur) was 809 mg l^{-1} .



Figuur 3.1 Doorbraakcurven van bromide gemeten bij de twee waarnemingsputten en de pompput.

Veertien dagen na de start van de dosering met natriumbromide werd er voor het eerst een verhoogde concentratie bromide in de eerste waarnemingsput waargenomen en na 25 dagen werd de maximale doorbraak van bromide bij de eerste waarnemingsput geobserveerd (Figuur 3.1; Tabel 3.1). De bromideconcentratie bij de maximale doorbraak was 252 mg l⁻¹, dat 31,1% van de gemiddelde gedoseerde bromideconcentratie was. In de tweede waarnemingsput werd 33 dagen na start van de dosering voor het eerst een verhoogde bromideconcentratie waargenomen en na 47 dagen was de maximale doorbraak (Figuur 3.1; Tabel 3.1). Ten tijde van de maximale doorbraak in de tweede waarnemingsput was de bromideconcentratie 130 mg l⁻¹, dat 16,1% van de gemiddelde gedoseerde bromideconcentratie was. In de pompput werd 57 dagen na start van de dosering een verhoging van de bromideconcentratie geconstateerd (Figuur 3.1; Tabel 3.1). De maximale doorbraak van bromide bij de pompput was 72 dagen na start van de dosering, waarbij de maximale verhoogde bromideconcentratie 0,153 mg l⁻¹ was, 0,019% van de gemiddelde gedoseerde concentratie. De verblijftijd van doseerput tot beide waarnemingsputten en pompput kan afgeleid worden uit de halve hoogte van de stijgende flank van de doorbraakcurve. De verblijftijden zijn ook weergegeven in Tabel 3.1.



Figuur 3.2 Bromideconcentratie gemeten in de doseertank, de twee waarnemingsputten (wp 1 en wp 2) en de pompput.

Tabel 3.1 Karakteristieken van de bromidedoorbraak bij de twee waarnemingsputten (wp 1 en wp 2) en de pompput.

	verblijftijd (d)	Tijd tot maximale doorbraak (d)	Maximale concentratie (mg l ⁻¹)	Massabalans (%)
WP 1	19	25	252	100
WP 2	38	47	130	78
Pompput	60	72	0,153	52 ^a

^a waarde gecorrigeerd voor verdunning dosering met onttrokken water (doseerdebiet/onttrekkingsdebiet; 18,2/11.320)

We concluderen uit de resultaten van de tracerproef dat de verblijftijd van het water van de doseerput naar de pompput ongeveer 60 dagen was, overeenkomstig de inschatting van het hydrologische model. De verblijftijd reistijd van het water van de pompput naar de eerste en tweede waarnemingsput was 19 en 38 dagen respectievelijk, ook in overeenstemming met de door het model voorspelde verblijftijden. De maximale concentratie bromide in de twee waarnemingsputten was lager dan de gedoseerde bromideconcentratie, wat wordt veroorzaakt door longitudinale en verticale dispersie. De concentratie bromide in de pompput was veel lager dan de gedoseerde hoeveelheid, wat komt doordat in de pompput de gedoseerde tracer wordt verdund met het overige radiaal onttrokken grondwater.

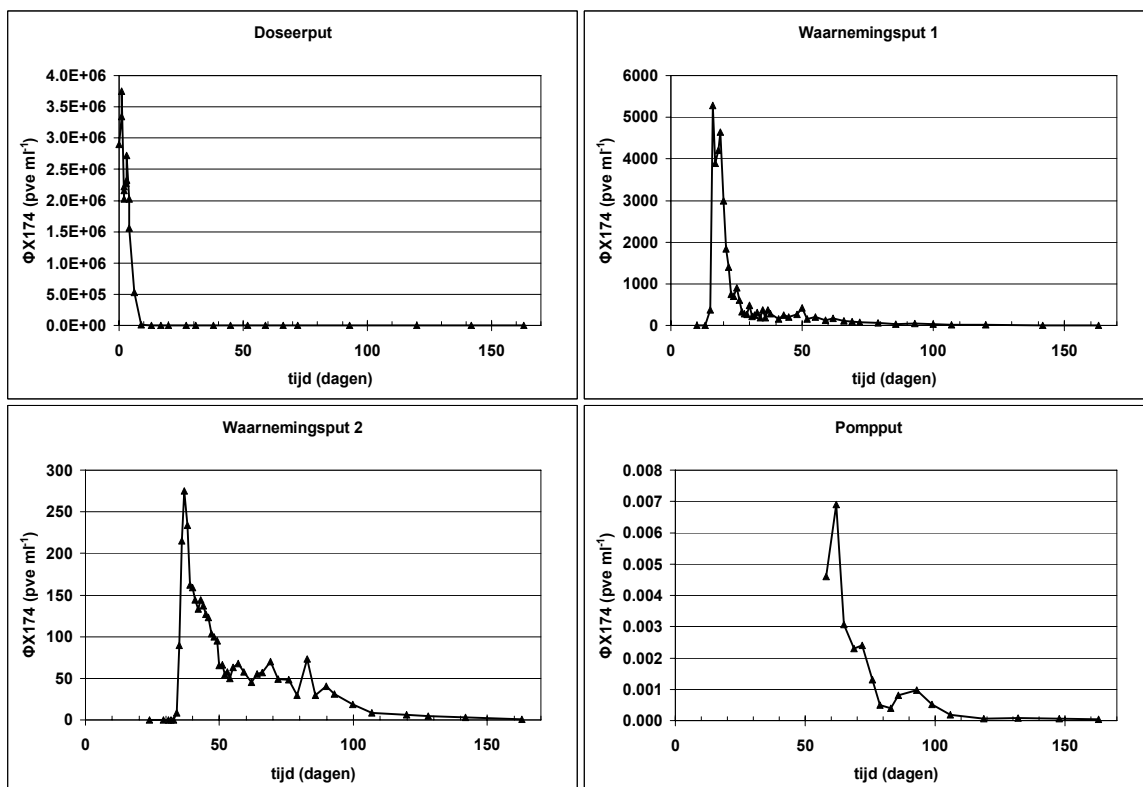
4 Resultaten van doseerproef met bacteriofagen MS2 en Φ X174

4.1 Doorbraak bacteriofagen MS2 en Φ X174

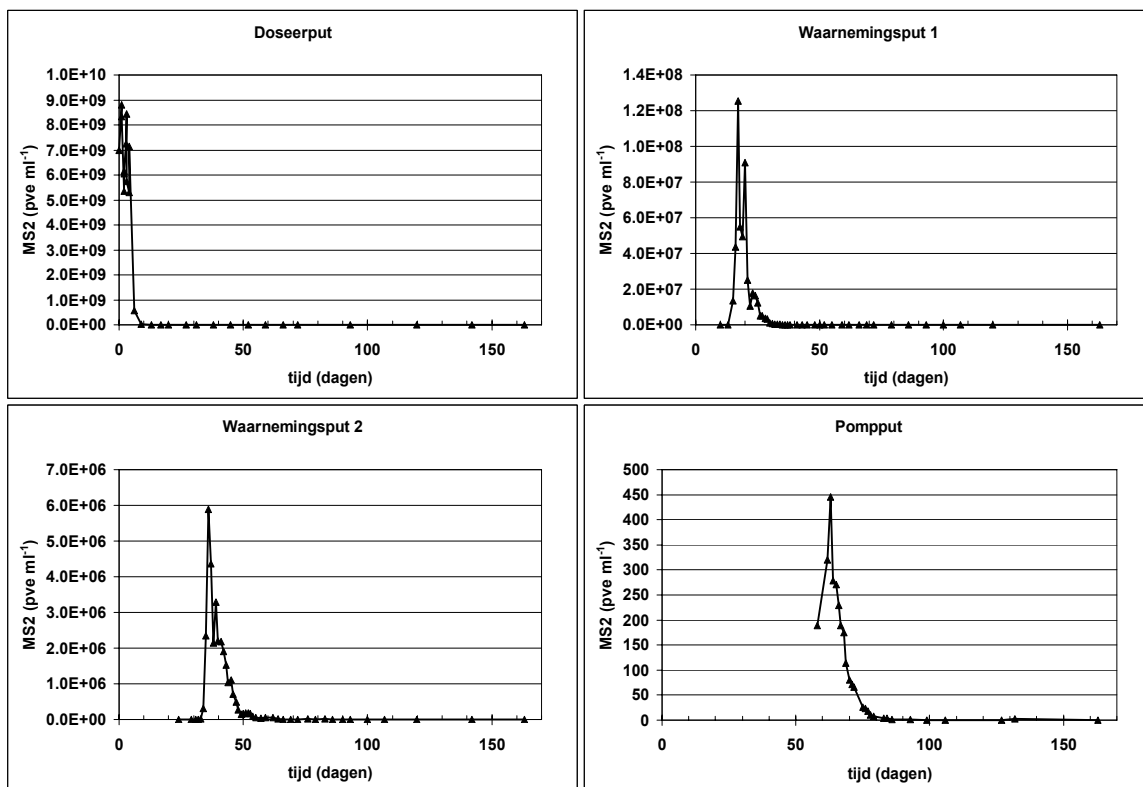
De bacteriofagen MS2 en Φ X174 werden gedurende vier dagen gedoseerd in de doseerput. De gemiddelde concentratie bacteriofaag Φ X174 in de vier doseertanks was $2,54 \times 10^6$ pve ml⁻¹, terwijl de gemiddelde concentratie MS2-fagen $6,94 \times 10^9$ was. Het verschil in beginconcentratie tussen bacteriofagen MS2 en Φ X174 komt doordat de stockoplossing van MS2-fagen een veel hogere concentratie bacteriofagen bevatte dan de stockoplossing van bacteriofaag Φ X174. De concentratie bacteriofagen in water na de doseerslang werd ook bepaald en deze lag gelijk aan de concentratie die in de doseertank werd gemeten. De bacteriofagen hechten dus niet aan de doseerslang, waardoor de concentratie die in de doseertank werd gemeten gelijk is aan de concentratie die de doseerput bereikte. De concentratie van bacteriofagen in de doseertanks is ook in de tijd gemeten. Hieruit bleek dat de concentratie fagen vlak voor doseren (volle tank), na 6 uur, 12 uur, 18 uur en 24 uur (lege tank) gelijk was in de doseertanks.

Zowel bacteriofaag MS2 als Φ X174 werden tot het einde van het experiment (163 dagen na doseren) in de doseerput teruggevonden. De afname van beide bacteriofagen in de doseerput is weergegeven in Figuren 4.1 – 4.4. In Figuur 4.1 en 4.2 is de concentratie bacteriofagen uitgezet op een gewone schaal en uit deze figuren volgt dat beide bacteriofagen in de doseerput snel afnamen tot relatief zeer lage aantallen. In Figuur 4.3 en 4.4 is de concentratie bacteriofagen uitgezet op logaritmische schaal. In deze figuren is een lange staart zichtbaar en beide fagen werden dus lang gedetecteerd. Door hechting aan en loslaten van de putwand en bodemdeeltjes in directe omgeving van de doseerput werden deze fagen nog steeds in het water aangetroffen. Daarnaast tonen deze resultaten ook aan dat in 163 dagen beide bacteriofagen niet volledig waren geïnactiveerd.

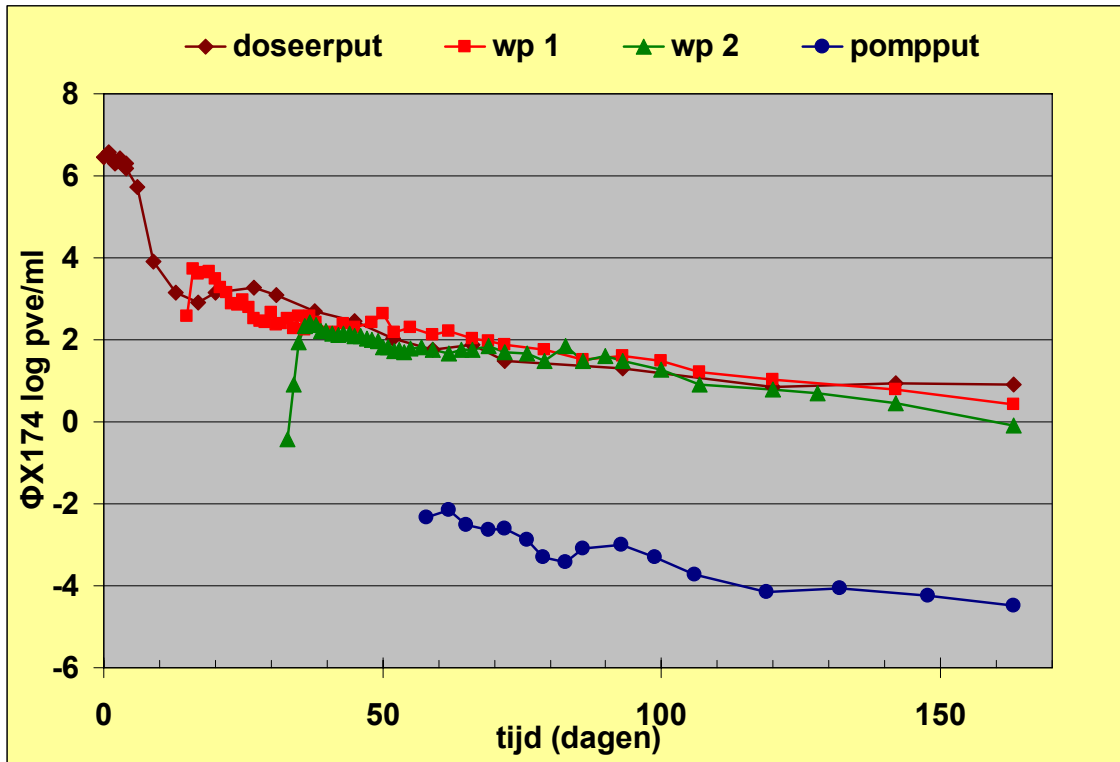
De doorbraakcurven van bacteriofagen Φ X174 en MS2 bij waarnemingsputten 1 en 2 zijn weergegeven in Figuur 4.1 - 4.4. Na ongeveer 14 dagen werden beide bacteriofagen voor de eerste keer waargenomen in de eerste waarnemingsput en 18 tot 19 dagen na start van de dosering was de maximale doorbraak (Tabel 4.1). Bij de tweede waarnemingsput werden na ongeveer 32 dagen beide fagen voor de eerste keer aangetroffen en de maximale doorbraak was in deze put op dag 36 tot 37 (Tabel 4.1). Er is een duidelijk verschil tussen de doorbraakcurven van bacteriofagen Φ X174 en MS2. De plaquevormende eenheden van bacteriofaag MS2 namen na de maximale doorbraak sterk af, maar werden tot 163 dagen na start van de dosering in beide waarnemingsputten waargenomen. De plaquevormende eenheden van bacteriofaag Φ X174 namen na de maximale doorbraak veel minder sterk af dan MS2, waardoor in de tweede waarnemingsput zelfs een staart werd waargenomen wanneer de aantallen Φ X174 op een niet-



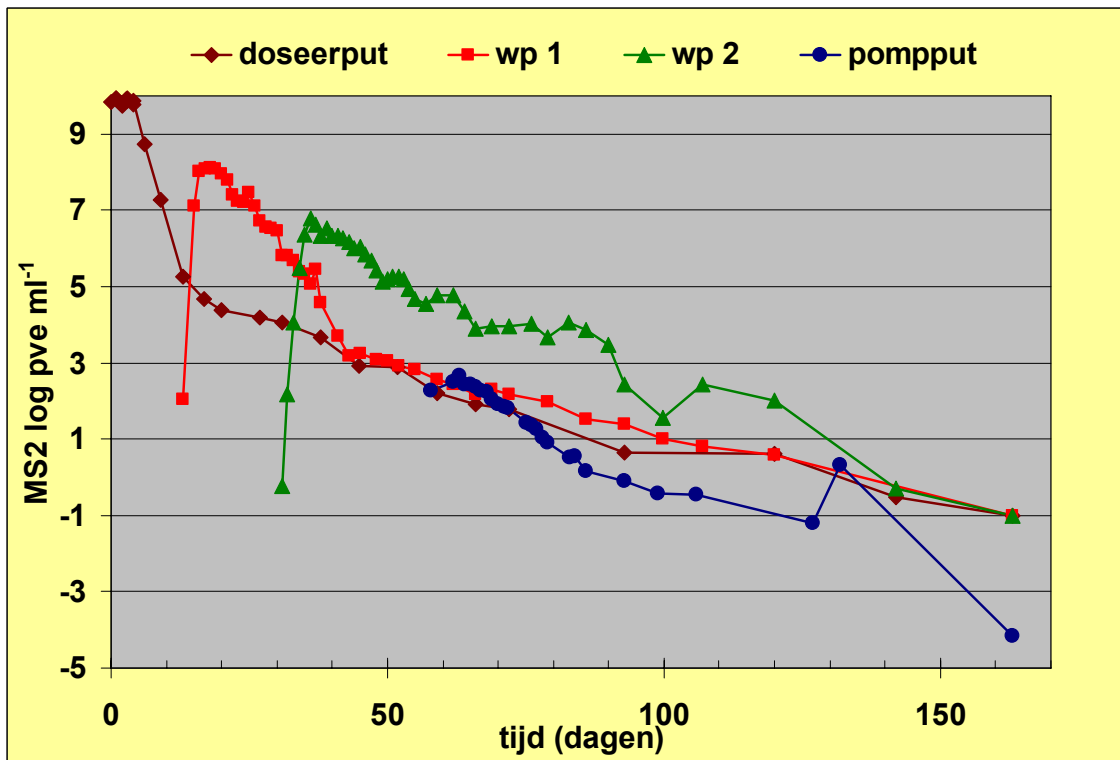
Figuur 4.1 Doorbraakcurven van bacteriofaag $\Phi X174$ gemeten bij de doseerput, waarnemingsputten en pompput. De aantallen zijn uitgezet op een normale schaal.



Figuur 4.2 Doorbraakcurven van bacteriofaag MS2 gemeten bij de doseerput, waarnemingsputten en pompput. De aantallen zijn uitgezet op een normale schaal.



Figuur 4.3 Doorbraakcurven van bacteriofaag Φ X174 gemeten bij de doseerput, de twee waarnemingsputten (wp 1 en wp 2) en de pompput. De aantallen zijn uitgezet op een logaritmische schaal.



Figuur 4.4 Doorbraakcurven van bacteriofaag MS2 gemeten bij de doseerput, de twee waarnemingsputten (wp 1 en wp 2) en de pompput. De aantallen zijn uitgezet op een logaritmische schaal.

Tabel 4.1 Karakteristieken van de doorbraak van bacteriofagen Φ X174 en MS2 bij de twee waarnemingsputten (wp 1 en wp 2) en de pompput.

	Minimale verblijftijd (d)		Verblijftijd maximale doorbraak (d)		Maximale concentratie (N ml ⁻¹)	
	Φ X174	MS2	Φ X174	MS2	Φ X174	MS2
WP 1	15	13	19	18	$4,6 \times 10^3$	$1,4 \times 10^8$
WP 2	33	31	37	36	$2,8 \times 10^2$	$5,9 \times 10^6$
Pompput	(58)	(58)	62	63	$6,9 \times 10^{-3}$	$4,5 \times 10^2$

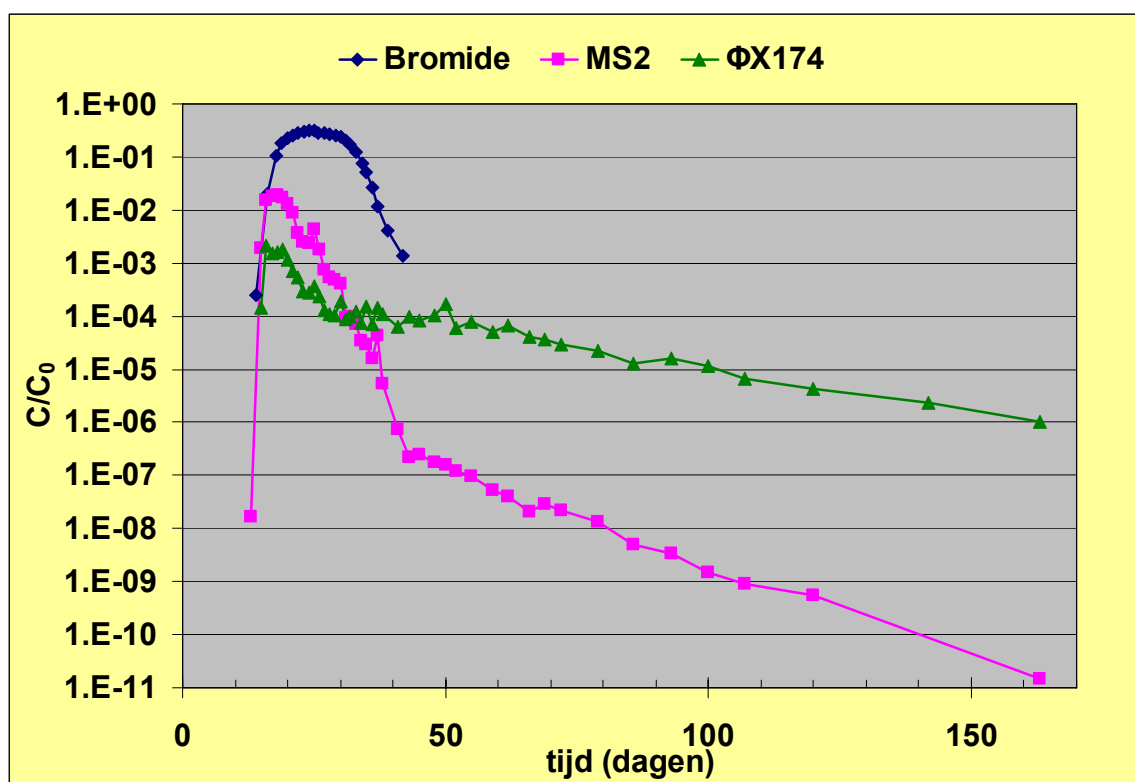
logaritmische schaal zijn weergegeven (Figuur 4.1). Door deze trage afname werd ook bacteriofaag Φ X174 tot 163 dagen na start van de dosering teruggevonden in beide putten. De lange staart die werd waargenomen wanneer de concentratie van de bacteriofagen MS2 en Φ X174 op logschaal is uitgezet (Figuur 4.3 en 4.4), wordt waarschijnlijk veroorzaakt doordat gehechte bacteriofagen in het watervoerende pakket gedeeltelijk levensvatbaar blijven en na verloop van tijd weer loslaten.

In de pompput was de concentratie van bacteriofaag Φ X174 laag en kon niet zonder concentreringsstap worden gemeten, waardoor er groot-volumemonsters werden genomen die met de hemoflow werden geconcentreerd. De aantallen MS2-fagen in de pompput waren in eerste instantie wel hoog genoeg en direct meetbaar, maar vanaf 86 dagen na start van de dosering moesten ook voor bacteriofaag MS2 groot-volumemonsters worden geconcentreerd met de hemoflow. Op dag 58 werd voor de eerste keer een monster uit de pompput genomen en dit monster bleek positief te zijn voor beide bacteriofagen (Figuur 4.1 – 4.4). Daarom is niet precies aan te geven wat de minimale verblijftijd tussen de doseerput en pompput is. In de twee waarnemingsputten was de minimale verblijftijd van de bacteriofagen echter gelijk aan de minimale verblijftijd van bromide (Tabel 3.1 en 4.1). Daarom is het aannemelijk dat de minimale verblijftijd van de bacteriofagen bij de pompput ook gelijk was met de minimale verblijftijd van bromide (58 dagen) bij de pompput. De maximale doorbraak van beide bacteriofagen bij de pompput was 62 tot 63 dagen na start van de dosering (Tabel 4.1).

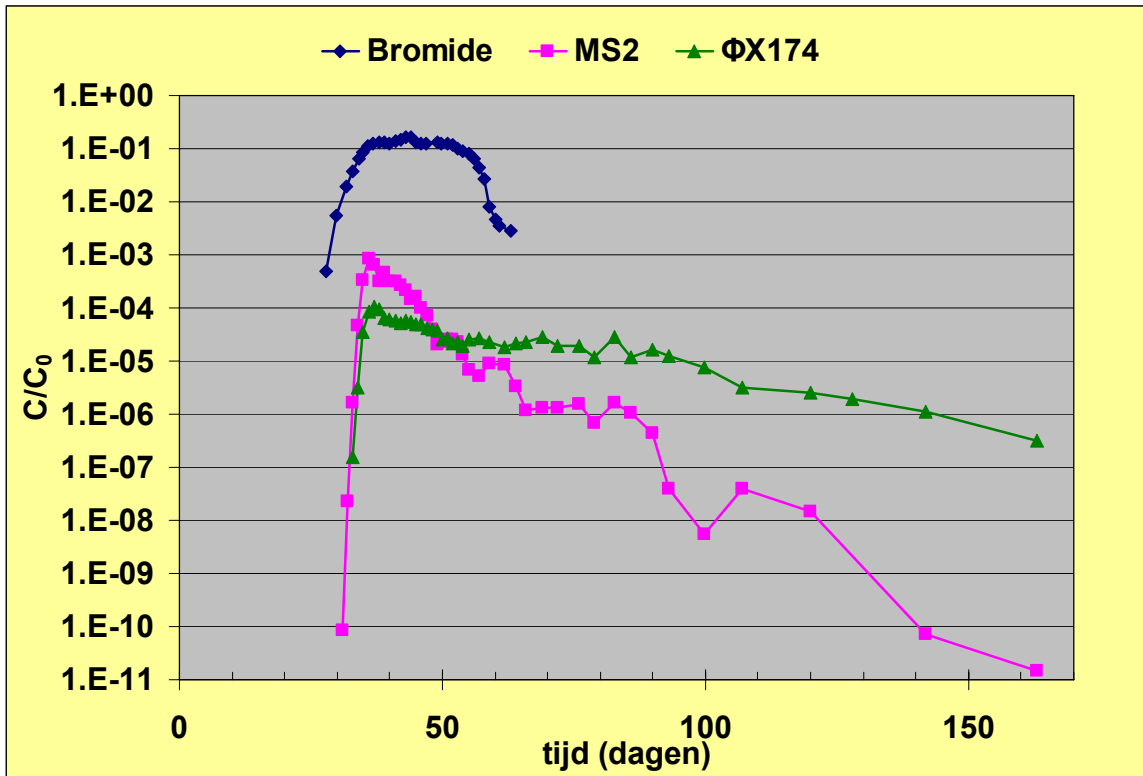
De maximale doorbraak van de bacteriofagen was bij de waarnemingsputten en pompput eerder dan de maximale doorbraak van bromide (Tabel 3.1 en 4.1). Bij de eerste waarnemingsput was de maximale doorbraak van de fagen 6 tot 7 dagen eerder dan de maximale doorbraak van bromide, bij de tweede waarnemingsput was dit verschil 10 tot 11 dagen en bij de pompput was de maximale doorbraak van beide fagen 9 tot 10 dagen eerder dan de maximale doorbraak van bromide.

5 Verwijderingscapaciteit kwetsbaar watervoerend pakket

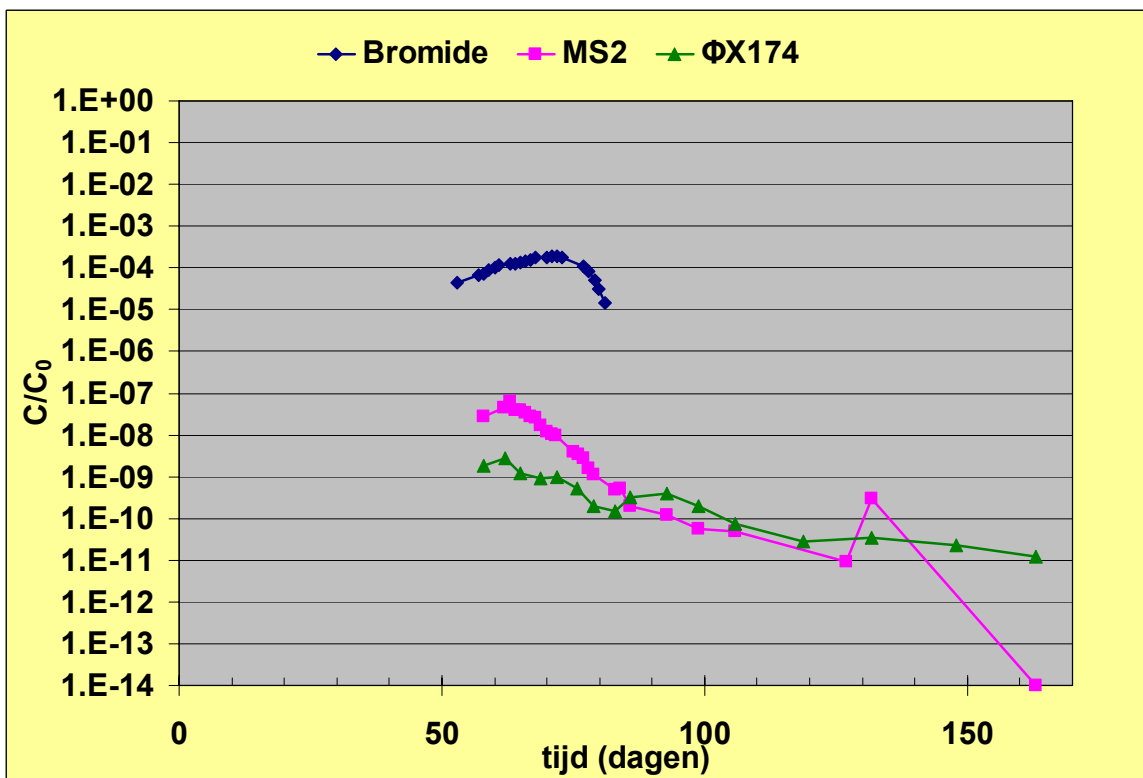
De verdunning van bromide en de verwijdering en verdunning van de twee bacteriofagen kan worden weergegeven door de gemeten concentratie in de waarnemingsputten en de pompput (C) te delen door de gemiddelde concentratie die gedoseerd is (C_0). Daarom worden doorbraakcurven vaak weergegeven door de C/C_0 uit te zetten tegen de tijd (Figuur 5.1 - 5.3). In beide waarnemingsputten en de pompput lagen de maximale C/C_0 waarden van de bacteriofagen lager dan de C/C_0 van de conservatieve tracer bromide. Daarnaast was bij elke waarnemingsput de maximale C/C_0 van bacteriofaag $\Phi X174$ lager dan die van bacteriofaag MS2. We concluderen op basis van deze resultaten dat verwijdering van beide bacteriofagen optreedt in het watervoerende pakket, waarbij $\Phi X174$ beter wordt verwijderd dan MS2.



Figuur 5.1 C/C_0 -doorbraakcurven van bromide, $\Phi X174$ en MS2 gemeten bij de eerste waarnemingsput.



Figuur 5.2 C/C_0 -doorbraakcurven van bromide, Φ X174 en MS2 gemeten bij de tweede waarnemingsput.



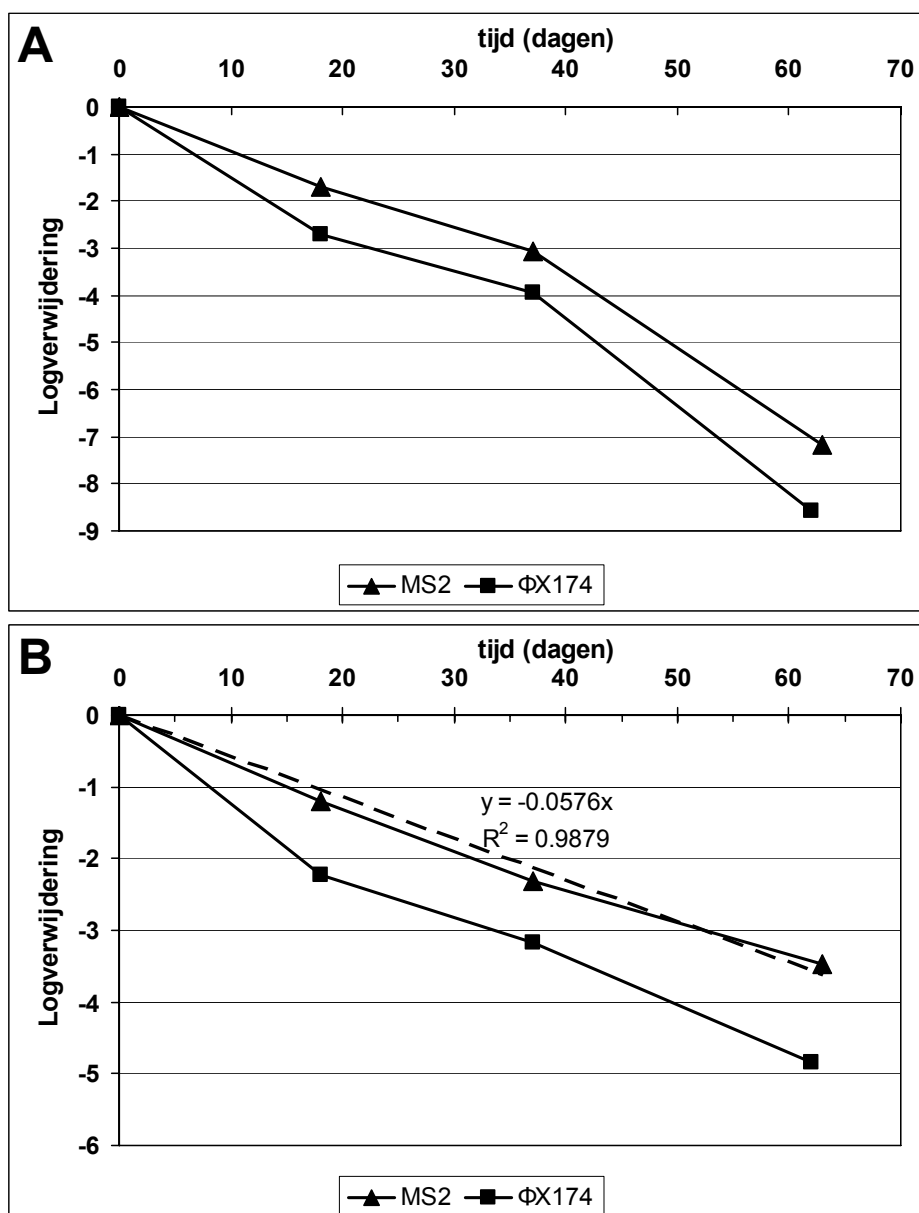
Figuur 5.3 C/C_0 -doorbraakcurven van bromide, Φ X174 en MS2 gemeten bij de pompput.

De verwijderingscapaciteit van het watervoerende pakket tussen de doseerput en de waarnemingsputten of pompput wordt bepaald door de maximale concentratie bacteriofagen in elke waarnemingsput en pompput te delen door de gemiddelde gedoseerde concentratie bacteriofagen ($\max C/C_0$). De verwijderingscapaciteit van het watervoerende pakket is weergegeven in Tabel 5.1 en Figuur 5.4. De op deze manier berekende verwijderingscapaciteit bevat naast de verwijdering van bacteriofagen ook de verdunning van bacteriofagen die wordt veroorzaakt door dispersie bij de waarnemingsputten. Dispersie speelde ook een rol bij de pompput, maar daarnaast werd het gedoseerde water bij de pompput verdund met het overige grondwater dat werd onttrokken door de pomp (het grondwater werd immers radiaal onttrokken en dus niet alleen uit de richting van het gedoseerde water). Hierdoor was het verdunningseffect in de pompput veel groter dan in de waarnemingsputten. Dit wordt gevisualiseerd in Figuur 5.4A, waar de verwijderingscapaciteit het grootst was tussen de tweede waarnemingsput en de pompput. De afname in bacteriofaagaantallen tijdens het traject van de tweede waarnemingsput tot de pompput was dus niet zozeer verwijdering, maar voornamelijk verdunning (Figuur 5.4A; dag 37 t/m 62).

Om de werkelijke verwijderingscapaciteit van het watervoerende pakket te berekenen werden de gevonden waarden gecorrigeerd voor het verdunningseffect, door de bromideverdunning ($\max C/C_0$ voor bromide) van de totale verwijderingscapaciteit voor de bacteriofagen af te trekken. Hierbij wordt aangenomen dat de grondwaterstroming tijdens beide doseringen gelijk was, waardoor dezelfde pluim van beide dosering bij de waarnemingsputten en pompput aankwam. De grondwaterstand in de peilputten (zie Figuur 2.1 voor locatie peilputten) was tijdens de doseringen in drie van de 4 putten evenredig gestegen of gedaald. Alleen de grondwaterstand in peilput 1 is ten opzichte van de andere peilputten licht gestegen. Hierdoor zou er een kleine verandering in de stroming van de bacteriofagen ten opzichte van bromide hebben kunnen plaatsvinden, maar ten opzichte van de totale verwijdering is dit verschil verwaarloosbaar. De werkelijke verwijderingscapaciteit van het watervoerende pakket voor MS2 en $\Phi X174$ is weergegeven in Tabel 5.1 en Figuur 5.4B. De verwijdering van bacteriofaag MS2 tijdens bodempassage was lager dan die van bacteriofaag $\Phi X174$, zoals ook al was opgemerkt op basis van de C/C_0 doorbraakcurven. De logverwijdering van bacteriofaag MS2 uitgezet tegen de verblijftijd verloopt lineair, terwijl de logverwijdering van $\Phi X174$ tegen de verblijftijd in eerste traject (tot 18 dagen) hoger is dan in het tweede traject. Tijdens 63 dagen verblijftijd in het onderzochte watervoerende pakket werd bacteriofaag MS2 met 3,5 logeenheden verwijderd en bacteriofaag $\Phi X174$ met 4,9 logeenheden.

Tabel 5.1 Logverwijdering van bacteriofagen Φ X174 en MS2 bij de twee waarnemingsputten (wp 1 en wp 2) en de pompput.

	Afstand (m)	Reistijd (d)	Verwijdering en verdunning (Log N)		Verwijdering (Log N)	
			Φ X174	MS2	Φ X174	MS2
WP 1	7,8	18	2,7	1,7	2,2	1,2
WP 2	17,2	37	4,0	3,1	3,2	2,3
Pompput	37,7	62	8,6	7,2	4,9	3,5



Figuur 5.4 Logverwijdering van bacteriofagen Φ X174 en MS2 tijdens transport in de verzadigde zone van de anoxische aquifer. A, verwijdering inclusief verdunning; B, verwijdering exclusief verdunning.

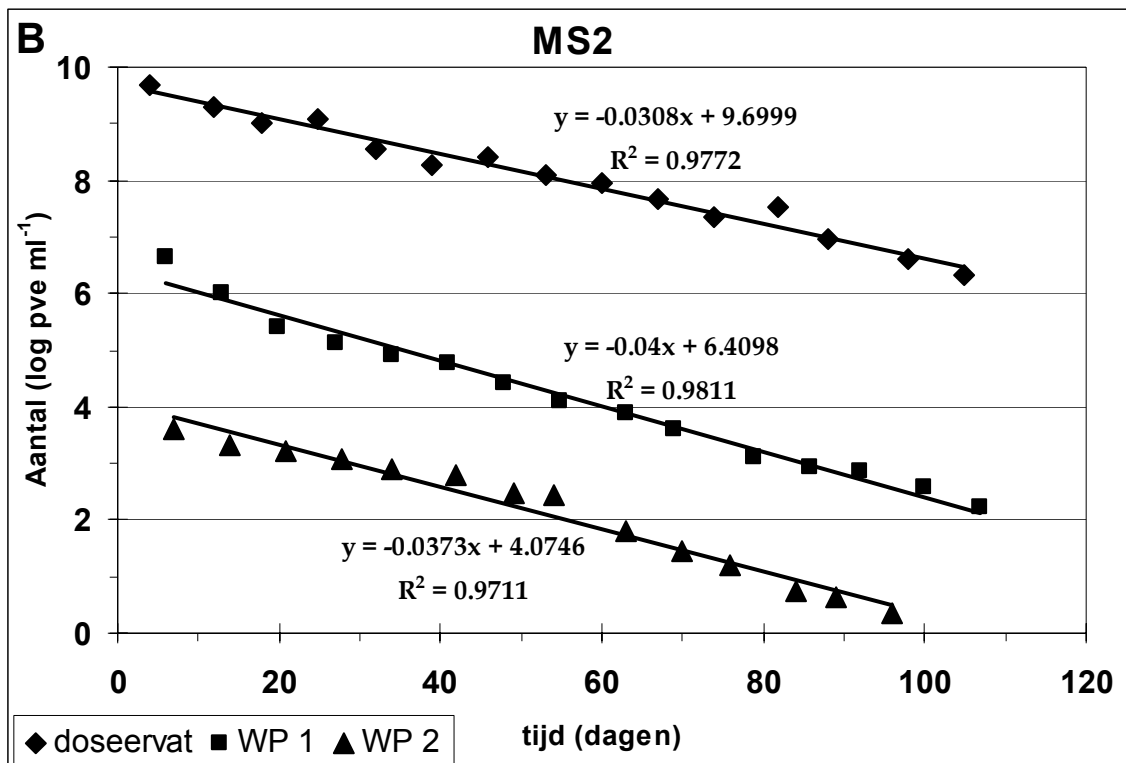
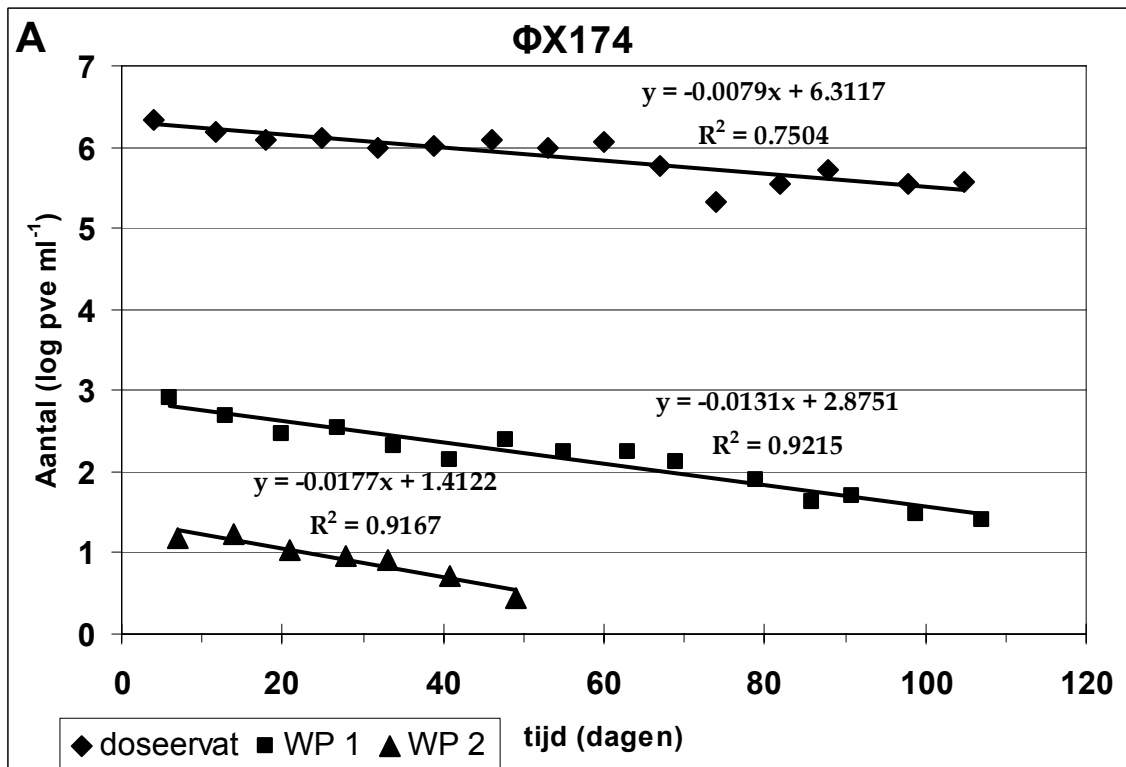
6 Afsterving in grondwater

De afsterving van de bacteriofagen MS2 en Φ X174 werd bepaald in een grondwatermonster genomen uit de doseertank, in een grondwatermonster genomen uit de eerste waarnemingsput ten tijde van maximale doorbraak van de bacteriofagen en in een grondwatermonster genomen uit de tweede waarnemingsput, 43 dagen nadat daar de maximale bacteriofaagdoorbraak was waargenomen. Om de afstervingsnelheid van de bacteriofagen betrouwbaar te meten, is het van belang dat de fysisch/chemische condities in het monster gelijk waren aan de condities in het watervoerende pakket. Daarom werden de grondwatermonsters in flessen onder anoxische condities geïncubeerd bij een temperatuur van 11°C, condities die vergelijkbaar zijn met de condities in het watervoerende pakket. Gedurende 100 dagen werd eens in de week een deelmonster uit de flessen met de grondwatermonsters genomen en de plaquevormende eenheden van MS2 en Φ X174 fagen werden bepaald. Met de verkregen resultaten werd vervolgens de inactivatiesnelheid bepaald.

6.1 Afsterving niet-gehechte bacteriofagen in grondwater

De afsterving van bacteriofaag Φ X174 is weergegeven in Figuur 6.1A. Er is een duidelijke lineaire correlatie tussen de log-waarden van de aantallen Φ X174-fagen en de tijd, wat erop duidt dat de inactivatie van bacteriofaag Φ X174 volgens een eerste-orde reactie verloopt. Ook in eerdere experimenten werd een eerste-orde afname van bacteriofagen in grondwater waargenomen [10,48,50,51]. De inactivatie was het laagst in het doseervat, hoger in de eerste waarnemingsput en het hoogst in de tweede waarnemingsput. De drie inactivatiewaarden lagen echter in dezelfde range (0,0079 log dag⁻¹ tot 0,0177 log dag⁻¹) met een gemiddelde waarde van 0,0129 log dag⁻¹.

In Figuur 6.1B is de afsterving van bacteriofaag MS2 weergegeven in het grondwater bemonsterd uit het doseervat en uit de twee waarnemingsputten. Ook bij bacteriofaag MS2 is een duidelijke lineaire correlatie tussen de logaritmische waarde van de MS2-aantallen en de tijd waarneembaar, wat erop duidt dat de inactivatie van bacteriofaag MS2 ook volgens een eerste-orde reactie verloopt. De inactivatie van bacteriofaag MS2 was het laagst in het grondwater uit het doseervat en het hoogst in de eerste waarnemingsput, maar de inactivatiesnelheid was in alle drie de monsters ongeveer gelijk en lag tussen 0,0308 log dag⁻¹ en 0,04 log dag⁻¹, met een gemiddelde waarde van 0,0359 log dag⁻¹.



Figuur 6.1 Inactivatie van bacteriofagen ΦX174 (A) en MS2 (B) in grondwater uit het doseervat en de twee waarnemingsputten (wp 1 en wp 2). De richtingscoëfficiënt van de helling van de lijn geeft hierbij de inactivatiesnelheid weer.

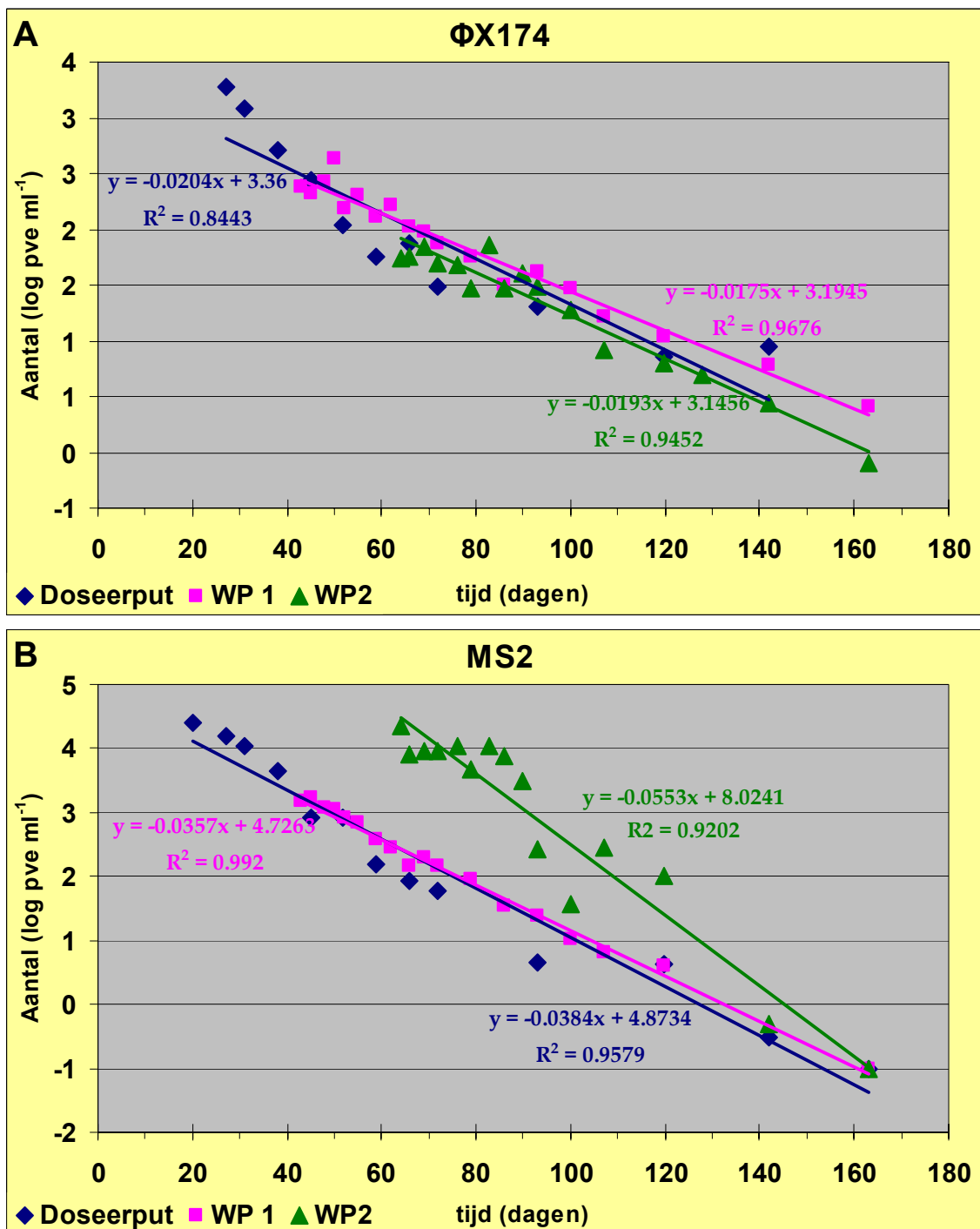
6.2 Afsterving gehechte bacteriofagen in grondwater

De afsterving van bacteriofagen die zijn gehecht aan bodemdeeltjes wordt bepaald uit de helling van de staart in de doorbraakcurven [33]. Dit zijn de fagen die zijn blijven hechten aan bodemdeeltjes en na verloop van tijd weer loskomen en met het grondwater worden meegevoerd. Aangenomen dat de kinetiek van loskomen constant is in de tijd, is de helling van de staart dus een maat voor de afsterving van fagen die aan de bodemdeeltjes zijn gehecht. In Figuur 6.2 is de staart van de doorbraakcurven bij de doseerput en de twee waarnemingsputten weergegeven. De inactivatie van de gehechte Φ X174-fagen is duidelijk loglineair in de tijd (Figuur 6.2A) en de afsterving van de gehechte fagen is dus net als bij de niet-gehechte fagen een eerste-ordereactie. De inactivatieconstante van de gehechte Φ X174-fagen was in de drie putten ongeveer gelijk. De gemiddelde inactivatieconstante van de gehechte Φ X174-fagen was $0,0191 \text{ log dag}^{-1}$, wat iets hoger was dan de gemiddelde inactivatieconstante van de niet-gehechte Φ X174-fagen in grondwater ($0,0129 \text{ log dag}^{-1}$; zie 6.1). Deze waarneming is in overeenstemming met eerdere studies waar ook een hogere inactivatieconstante van gehechte fagen werd gerapporteerd [5,33].

De inactivatie van de gehechte MS2-fagen is ook loglineair in de tijd (Figuur 6.2B). De inactivatieconstante van de gehechte MS2-fagen was in de doseerput en eerste waarnemingsput ongeveer gelijk, maar was beduidend hoger in de tweede waarnemingsput. De betrouwbaarheid van de correlatie in de tweede waarnemingsput was echter een stuk kleiner (R^2 van 0,92) dan in de andere twee putten (R^2 van 0,99 en 0,96). De afsterving van de gehechte MS2-fagen was voor de doseerput en de tweede waarnemingsput iets hoger dan de afsterving van de niet-gehechte MS2-fagen. De inactivatieconstante van de gehechte MS2-fagen in de eerste waarnemingsput was echter iets lager dan die van de niet-gehechte MS2-fagen. De gemiddelde inactivatieconstante van de gehechte MS2-fagen was $0,0431 \text{ log dag}^{-1}$, wat ongeveer gelijk is aan de inactivatieconstante van de niet-gehechte MS2-fagen ($0,0359 \text{ log dag}^{-1}$; zie 6.1). Het lijkt dus dat de inactivatieconstante van de niet-gehechte en de gehechte bacteriofagen ongeveer gelijk was in de verzadigde zone van de bodem op het Kiwa Water Research-terrein.

6.3 Discussie

De inactivatie van bacteriofaag MS2 in grondwater fluctueerde tussen $0,0308$ en $0,04 \text{ log dag}^{-1}$ waarbij de laagste waarde werd waargenomen in het gedoseerde water en de hoogste waarde in het water van de eerste waarnemingsput. Voor bacteriofaag Φ X174 werd de laagste inactivatiewaarde ($0,0079 \text{ log dag}^{-1}$) ook waargenomen in de doseerput, terwijl de hoogste waarde ($0,0177 \text{ log dag}^{-1}$) werd verkregen in water uit de tweede waarnemingsput. In beide gevallen zijn de verschillen in inactivatieconstante van één bacteriofaag klein en deze verschillen worden waarschijnlijk door variatie in de toegepaste methode veroorzaakt.



Figuur 6.2 Inactivatie van gehechte bacteriofagen Φ X174 (A) en MS2 (B) in de verzadigde zone gemeten bij de doseerput en de twee waarnemingsputten (wp 1 en wp 2). De richtingscoëfficiënt van de helling van de lijn geeft hierbij de inactivatiesnelheid weer.

De inactivatie van de bacteriofagen MS2 en Φ X174 is ook in eerdere studies onderzocht (Tabel 6.1). De gemiddelde inactivatieconstante voor MS2 was in onze studie $0,0359 \text{ log dag}^{-1}$. Deze waarde ligt duidelijk onder het gemiddelde van de gepubliceerde waarden, maar komt overeen met de lagere waarden voor de gepubliceerde inactivatieconstante. Een eerdere studie heeft aangetoond dat de afbraak van MS2 onder anoxische condities lager ligt dan onder oxische condities [15]. De anoxische condities waaronder de inactivatie van MS2 is bepaald in onze studie, verklaart waarschijnlijk de relatief lage inactivatieconstante voor bacteriofaag MS2. Informatie over inactivatie van Φ X174 in grondwater bij een temperatuur van $\sim 11^\circ\text{C}$ is schaars. In een studie van DeBorde et al. [9] werd een inactivatieconstante van $0,0279 \text{ log dag}^{-1}$ gerapporteerd (Tabel 6.1). Deze waarde is duidelijk hoger dan de gemiddelde inactivatieconstante gevonden in onze studie voor Φ X174 ($0,0129 \text{ log dag}^{-1}$), maar in de studie van DeBorde et al. [9] is de inactivatieconstante van Φ X174 bepaald in oxisch grondwater.

Tabel 6.1 Gepubliceerde waarden voor de inactivatieconstante van MS2 en Φ X174

Bacteriofaag	Temperatuur ($^\circ\text{C}$)	Inactivatieconstante (log dag^{-1})	Referentie
MS2	7	0,000369	Yahya et al., [48]
MS2	7	0,0469	Yahya et al., [48]
MS2	10	0,0489	Blanc en Nasser, [5]
MS2	11	0,0359	Deze studie
MS2	12	0,093	Yates et al., [50]
MS2	12	0,162	Yates et al., [50]
MS2	12	0,030	Yates et al., [50]
MS2	12	0,095	Yates et al., [50]
MS2	12	0,040	Yates et al., [50]
MS2	12	0,034	Yates et al., [50]
MS2	12	0,037	Yates et al., [50]
MS2	12	0,0303	Yates et al., [51]
MS2	12	0,0942	Yates et al., [51]
MS2	12	0,0344	Yates et al., [51]
MS2	12	0,037	Yates et al., [51]
MS2	13	0,077	Yates et al., [50]
MS2	13	0,114	Yates et al., [50]
MS2	13	0,0768	Yates et al., [51]
MS2	13	0,1139	Yates et al., [51]
MS2	5	0,0369	Schijven et al. [33]
MS2	5	0,0400	Schijven et al. [33]
MS2	5	0,0400	Schijven et al. [33]
MS2	12	0,0434	Schijven et al. [34]
MS2	12	0,0104	Schijven et al. [34]
MS2	10 - 11	0,0571	DeBorde et al. [9]
Φ X174	11	0,0129	Deze studie
Φ X174	10 - 11	0,0279	DeBorde et al. [9]

7 Hechting

Naast inactivatie speelt hechting ook een belangrijke rol bij de verwijdering van micro-organismen in het watervoerende pakket. Bij hechting van virussen in stromend water aan deeltjes in een poreus medium spelen twee processen een rol: transport naar het oppervlak van de deeltjes en interactie tussen het virusdeeltje en de bodemdeeltjes. De hechtingsnelheidscoëfficiënt k_{att} beschrijft de mate van hechting van virussen aan bodemdeeltjes en deze k_{att} is zowel afhankelijk van stroming- en diffusiekaracteristieken alsook van de eigenschappen van het watervoerende pakket en het virus. De hechting kan echter ook beschreven worden door de botsingsefficiëntie α , die de hechtingsnelheid van virussen beschrijft zonder de effecten van stroming en diffusie. De botsingsefficiëntie kan bepaald worden met de colloïd-filtratie theorie van Yao [49].

7.1 Berekening botsingsefficiëntie

De botsingsefficiëntie is een empirische constante die de elektrostatische interacties tussen micro-organismen en het poreuze medium beschrijft. Deze constante wordt door de volgende formule beschreven [49]:

$$\alpha = \frac{2}{3} \frac{d_c}{(1-\varepsilon)} \frac{k_{att}}{v} \frac{1}{\eta} \quad (1)$$

waarbij α de botsingsefficiëntie is, d_c de korreldiameter, ε de porositeit, k_{att} de hechtingsnelheidscoëfficiënt, v de stroomsnelheid en η de 'single collector efficiency'.

De hechtingsnelheidscoëfficiënt (k_{att}) van virussen aan bodemdeeltjes tijdens virustransport onder steady state condities wordt beschreven door de volgende formule [33]:

$$k_{att} = \frac{\left[1 - 2\alpha_L \frac{2,3}{x} \log\left(\frac{C_{max}}{C_0}\right) \right]^2 - 1}{4\alpha_L} v - \mu_i \quad (2)$$

waarbij α_L de longitudinale dispersiviteit is, x de afstanden tussen de putten, C_{max} de maximale doorbraakconcentratie van de bacteriofagen bij de waarnemingsputten en pompput, C_0 de gedoseerde concentratie bacteriofagen en μ_i de inactivatieconstante van bacteriofagen MS2 of Φ X174.

De 'single collector efficiency' (η) wordt beschreven door [42]:

$$\eta = 2,4 A_S^{1/3} N_{Pe}^{-0,715} N_R^{-0,081} N_{vdW}^{0,052} + 0,55 A_S N_R^{1,675} N_A^{0,125} + 0,22 N_R^{-0,24} N_G^{1,11} N_{vdW}^{0,053} \quad (3)$$

waarbij A_S de Happel's porosity dependent parameter is, die wordt beschreven door:

$$A_S = 2 \frac{(1-\gamma)^5}{(2-3\gamma+3\gamma^5-2\gamma^6)} \quad (4)$$

waarbij $\gamma = (1-\varepsilon)^{1/3}$

N_{Pe} is het peceletgetal en wordt beschreven door:

$$N_{Pe} = \frac{d_c v \varepsilon}{D_{BM}} \quad (5)$$

hierbij is D_{BM} de diffusieconstante:

$$D_{BM} = \frac{K_B (T + 273)}{3\pi d_p \mu} \quad (6)$$

waarbij K_B de Boltzmann constante ($1,38 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$) is, T de watertemperatuur ($^{\circ}\text{C}$), d_p de virusgrootte en μ de dynamische viscositeit.

N_R is het interceptiegetal en wordt beschreven door:

$$N_R = \frac{d_p}{d_c} \quad (7)$$

N_{vdW} is het vanderwaalsgetal en wordt beschreven door:

$$N_{vdW} = \frac{A}{K_B (T + 273)} \quad (8)$$

waarbij A de Hamaker constante ($4 \times 10^{-21} \text{ J}$) is

N_A is het attractiegetal en wordt beschreven door:

$$N_A = \frac{A}{12\pi d_p^2 v \varepsilon} \quad (9)$$

en N_g het gravitatiegetal en luidt:

$$N_g = \frac{2}{9} \left(\frac{d_p^2 (\rho_p - \rho_B) g}{v \varepsilon \mu} \right) \quad (10)$$

waarbij ρ_p de virusdeeltjesdichtheid is, ρ_B de dichtheid van water en g de gravitatieconstante ($9,8806 \text{ m s}^{-2}$).

7.2 Botsingsefficiëntie

De botsingsefficiëntie voor MS2 en Φ X174 bij de verschillende waarnemingsputten en de pompput werd berekend met behulp van formules

(1) t/m (10). Twee van de parameters die worden gebruikt in de formules zijn de longitudinale dispersiviteit (α_L) en de stroomsnelheid (v). Beide waarden worden bepaald uit de doorbraakcurven van de tracer bromide. In laboratorium- en veldstudies waar voorkeurstroming afwezig is, werd waargenomen dat dispersie van bacteriofagen en de zouttracer vergelijkbaar zijn [2-4,27,33]. Daarom wordt verondersteld dat de waarden voor v en α_L verkregen met doorbraakcurven van bromide ook gelden voor beide bacteriofagen.

7.2.1 *Stroomsnelheid en longitudinale dispersiviteit*

De differentiaalvergelijking voor dispersief transport van een merkstof (de *convectie-dispersie-vergelijking*) door een niet uniforme stroombuis in een stationair stromingspatroon luidt:

$$\alpha_L v(s) \frac{\partial^2 c}{\partial s^2} - v(s) \frac{\partial c}{\partial s} = \frac{\partial c}{\partial t} \quad (11)$$

waarbij α_L de longitudinale dispersiviteit (m) is, v is de stroomsnelheid (m dag⁻¹), c is de concentratie van een merkstof (kg m⁻³), s is de afstand gemeten langs de stroombuis (m) en t is de tijd (dag).

Er wordt vaak gewerkt met een dispersiecoëfficiënt $D = \alpha_L \times v$, maar omdat in een kromme of anderszins niet-uniforme stroombuis v een functie is van de plaats, is het in ons geval beter om met α_L te werken. De longitudinale dispersiviteit is een eigenschap van het poreuze medium zelf. In de literatuur wordt de dispersiviteit vaak ook als een tensor beschreven, maar er zijn steeds meer aanwijzingen dat de component van de dispersiviteitstensor in de richting van de stroming zodanig overheerst dat voor ons doel formule (11) bruikbaar kan worden geacht.

De longitudinale dispersiviteit is op twee manieren berekend. In de eerste methode werd de longitudinale dispersiviteit theoretisch berekend, waarbij gebruik is gemaakt van het programma Menyanthes. De gebruikte methode om de longitudinale dispersiviteit te berekenen is weergegeven in Bijlage I. De op deze manier berekende longitudinale dispersiviteit in de verschillende putten is weergegeven in tabel 7.1. Naast de theoretische berekening van de longitudinale dispersiviteit is de longitudinale dispersiviteit ook bepaald met het computerprogramma CXTFIT. Het computerprogramma CXTFIT heeft de analytische oplossing voor formule (11) inclusief de code voor inverse parameter berekeningen [41]. Door de doorbraakcurven van bromide te fitten met behulp van het CXTFIT, kan het programma de waarden voor v en α_L schatten (Tabel 7.1).

De waarden voor α_L verkregen met de theoretische berekening waren iets hoger dan de waarden voor α_L verkregen met het computerprogramma CXTFIT, maar zoals verwacht was het verschil klein (Tabel 7.1). In de verdere berekeningen zijn de α_L -waarden gebruikt die werden verkregen met het computerprogramma CXTFIT.

Tabel 7.1 Waarden voor de longitudinale dispersiviteit (α_L) en de stroomsnelheid (v) bepaald met computerprogramma CXTFIT en met een theoretische berekening (zie bijlage I).

	CXTFIT		Theoretisch
	α_L (m)	v (m dag ⁻¹)	α_L (m)
WP 1	0,19	0,33	0,21
WP 2	0,26	0,38	0,43
Pompput	0,23	0,56	n.b ^a

^a n.b. is niet bepaald

7.2.2 Botsingsefficiëntie

Met behulp van de parameterwaarden voor de longitudinale dispersiviteit en de stroomsnelheid werd vervolgens de botsingsefficiëntie met behulp van formule (1) tot (10) (paragraaf 7.1) berekend. De waarden voor de verschillende parameters zijn weergegeven in Tabel 7.2 en de berekende botsingsefficiënties zijn weergegeven in Tabel 7.3.

Tabel 7.2 Waarden voor de verschillende parameters gebruikt om de botsingsefficiëntie te berekenen.

Parameter		Waarde
Korreldiameter	d_c	405 μm
Porositeit	ε	0,32
Stroomsnelheid	v	wp1: 0,33 m dag ⁻¹ wp2: 0,38 m dag ⁻¹ pompput: 0,56 m dag ⁻¹
Longitudinale dispersiviteit	α_L	wp1: 0,19 m wp2: 0,26 m pompput: 0,23 m
Afstand tussen de putten	x	doseerput - wp1: 7,8 m doseerput - wp2: 17,2 m doseerput - pompput: 37,7 m
Maximale doorbraakconcentratie bacteriofagen	C_{max}	MS2 wp1: $4,32 \times 10^8$ N ml ⁻¹ MS2 wp2: $3,68 \times 10^8$ N ml ⁻¹ MS2 pompput: $2,31 \times 10^8$ N ml ⁻¹ ΦX174 wp1: $1,49 \times 10^4$ N ml ⁻¹ ΦX174 wp2: $1,71 \times 10^3$ N ml ⁻¹ ΦX174 pompput: $3,58 \times 10^1$ N ml ⁻¹
Gedoseerde concentratie bacteriofagen	C_0	MS2: $6,94 \times 10^9$ N ml ⁻¹ ΦX174 : $2,54 \times 10^6$ N ml ⁻¹
Inactivatieconstante	μ_i	MS2: 0,08297 dag ⁻¹ ΦX174 : 0,0297 dag ⁻¹
Boltzmanconstante	K_B	$1,38 \times 10^{-23}$ J K ⁻¹
Temperatuur	T	11,3 °C
Virusgrootte	d_p	MS2: 25 nm ΦX174 : 26 nm
Dynamische viscositeit	μ	$1,26 \times 10^{-3}$ kg m ⁻¹ s ⁻¹
Hamaker constante	A	$4,0 \times 10^{-21}$ J
Dichtheid virusdeeltjes	ρ_P	1460 kg m ⁻³
Dichtheid water	ρ_B	999,703 kg m ⁻³
Gravitatieconstante	g	9,8806 m s ⁻²

Tabel 7.3 Botsingsefficiëntie voor bacteriofagen MS2 en ΦX174

Bacteriofaag	wp 1 ^a	wp 2 ^a	pompput
MS2	$3,4 \times 10^{-5}$	$2,9 \times 10^{-5}$	$2,8 \times 10^{-5}$
ΦX174	$1,7 \times 10^{-4}$	$1,1 \times 10^{-4}$	$1,0 \times 10^{-4}$

^a wp1: eerste waarnemingsput; wp2: tweede waarnemingsput

De botsingsefficiëntie van MS2 en ΦX174 is redelijk constant over het hele transporttraject. Dit betekent dat de hechting van bacteriofagen aan bodemdeeltjes over het hele traject constant was en dat het aantal hechtingsplaatsen voor bacteriofagen dus over het hele traject ongeveer gelijk ligt.

De botsingsefficiëntie van MS2 is ongeveer een factor 3,5 tot 5 lager dan de botsingsefficiëntie van ΦX174. Bacteriofaag MS2 is een virusdeeltje met een laag iso-elektrisch punt van 3,5, terwijl bacteriofaag ΦX174 een iso-elektrisch punt van 6,7 heeft. Het grondwater op de veldlocatie had een pH van 7,54, waardoor bacteriofaag MS2 sterker negatief geladen was dan ΦX174. Hierdoor hechtte bacteriofaag MS2 minder goed aan de negatief geladen bodemdeeltjes dan bacteriofaag ΦX174. Naast elektrostatische aantrekkingskracht tussen bodemdeeltjes en virusdeeltjes, kunnen virusdeeltjes ook door hydrofobe interacties met organisch materiaal hechten. Het bacteriofaagdeeltje ΦX174 is minder hydrofoob dan MS2 en zal daardoor slechter hechten aan organisch materiaal dan bacteriofaag MS2. Omdat de botsingsefficiëntie van MS2 lager ligt dan de botsingsefficiëntie van ΦX174, kunnen we concluderen dat de hechting van virusdeeltjes aan bodemdeeltjes door elektrostatische interacties belangrijker is dan de hechting van virusdeeltjes door hydrofobe interacties met organisch materiaal. Dit is volgens verwachting omdat het watervoerende pakket een zeer laag gehalte aan organisch materiaal heeft (Tabel 2.5).

7.3 Discussie

In vergelijking met andere studies uitgevoerd in Nederland zijn de botsingsefficiënties gevonden in onze studie laag (Tabel 7.4). Een eerdere studie, uitgevoerd met bacteriofaag MS2 in de duinen bij Castricum, resulteerde in botsingsefficiënties variërend van $1,4 \times 10^{-3}$ tot $2,9 \times 10^{-4}$ [33]; een factor 10 tot 100 hoger dan in onze studie. Het watervoerende pakket bij Castricum wordt gekenmerkt door oxisch zand met relatief hoog gehalte aan metaal(hydro)oxiden en organisch materiaal, waardoor relatief veel hechtingsplaatsen voor MS2 aanwezig zijn. De verwijdering van bacteriofaag MS2 is ook onderzocht tijdens diepinfiltratie in een anoxisch watervoerend pakket ('DIZON')[34]. In de DIZON studie waren de botsingsefficiënties voor MS2 in het oxische deel van het watervoerende pakket ook een factor 10 tot 100 hoger (variërend van $1,4 \times 10^{-3}$ tot $2,0 \times 10^{-4}$). In het anoxische deel van het watervoerende pakket was de botsingsefficiëntie echter $1,5 \times 10^{-5}$ [35], een waarde die vergelijkbaar is met de waarden gevonden in onze studie voor MS2. De hogere botsingsefficiënties voor bacteriofaag MS2 tijdens de diepinfiltratiestudie kunnen worden verklaard doordat zuurstofrijk oppervlaktewater werd geïnfilterd, waardoor de redoxstatus van het anoxische watervoerende pakket veranderde van anoxisch naar oxisch. Deze

verandering resulteerde in de oxidatie van ijzerionen naar ijzer(hydr)oxiden, waardoor extra hechttingsplaatsen voor bacteriofaag MS2 beschikbaar kwamen.

Tabel 7.4 Gepubliceerde waarden voor de botsingsefficiëntie van bacteriofagen MS2 en Φ X174

Bacteriofaag	Botsingsefficiëntie	Referentie
MS2	$3,4 \times 10^{-5}$	Deze studie
MS2	$2,9 \times 10^{-5}$	Deze studie
MS2	$2,8 \times 10^{-5}$	Deze studie
MS2	$1,4 \times 10^{-3}$	Schijven et al., [33]
MS2	$1,0 \times 10^{-3}$	Schijven et al., [33]
MS2	$9,2 \times 10^{-4}$	Schijven et al., [33]
MS2	$6,5 \times 10^{-4}$	Schijven et al., [33]
MS2	$4,3 \times 10^{-4}$	Schijven et al., [33]
MS2	$2,7 \times 10^{-4}$	Schijven et al., [33]
MS2	$1,4 \times 10^{-3}$	Schijven et al., [34]
MS2	$2,0 \times 10^{-4}$	Schijven et al., [34]
MS2	$8,0 \times 10^{-4}$	Schijven et al., [34]
MS2	$2,9 \times 10^{-4}$	Schijven et al., [34]
MS2	$1,5 \times 10^{-5}$	Schijven et al., [35]
MS2	$4,02 \times 10^{-3}$	Pang et al., [26]
MS2	$1,52 \times 10^{-3}$	Pang et al., [26]
MS2	$1,81 \times 10^{-3}$	Pang et al., [26]
MS2	$2,37 \times 10^{-4}$	Pang et al., [26]
MS2	$1,57 \times 10^{-3}$	Pang et al., [26]
MS2	$2,49 \times 10^{-3}$	Pang et al., [26]
MS2	$4,0 \times 10^{-3}$	DeBorde et al., [8]
MS2	$4,0 \times 10^{-3}$	DeBorde et al., [8]
Φ X174	$1,7 \times 10^{-4}$	Deze studie
Φ X174	$1,1 \times 10^{-4}$	Deze studie
Φ X174	$1,0 \times 10^{-4}$	Deze studie
Φ X174	$6,0 \times 10^{-3}$	DeBorde et al., [8]
Φ X174	$6,0 \times 10^{-3}$	DeBorde et al., [8]

Wanneer de botsingsefficiënties worden vergeleken met botsingsefficiënties gepubliceerd in buitenlandse studies, dan zijn de botsingsefficiënties gevonden in onze studie lager dan gepubliceerde waarden voor de botsingsefficiëntie van MS2 en Φ X174 (Tabel 7.4). Voor MS2 geldt dat de gepubliceerde waarden uit internationale studies een factor 10 tot 100 hoger zijn [8,26,33,34] dan de gevonden waarden in onze studie. De waarden uit de internationale studies zijn dus vergelijkbaar met de waarden gevonden in de veldstudies bij Castricum en DIZON. Voor Φ X174 zijn er weinig botsingsefficiënties gepubliceerd die zijn verkregen uit veldstudies. De twee gepubliceerde waarden voor de botsingsefficiëntie van Φ X174 [8] zijn een factor 30 tot 60 hoger dan de gevonden waarden in onze studie. De hogere botsingsefficiënties die gevonden zijn in de internationale studies kunnen worden verklaard doordat die studies zijn uitgevoerd in een oxisch watervoerend pakket waar de korreldiameter groter was dan in onze studie. Zowel de oxische redoxstatus als de grotere korreldiameter zorgen voor hogere botsingsefficiënties.

8 Discussie

8.1 Algemeen

Het doel van deze studie was om de virusverwijdering tijdens 60 dagen transport in de verzadigde zone van een kwetsbare bodem te bepalen. Daartoe is op basis van een hydrologisch model een aantal putten op het Kiwa Water Research-terrein geplaatst, zodanig dat de reistijd tussen de doseerput en pompput ongeveer 60 dagen zou moeten zijn. Uit de resultaten van de tracer-en bacteriofaagdosering bleek dat de verblijftijd tussen doseerput en pompput ongeveer 60 dagen was en de maximale doorbraak bij de pompput werd gemeten na 63 tot 75 dagen. De experimenteel gemeten reistijd kwam dus goed overeen met de gemodelleerde reistijd, waardoor het mogelijk is om gefundeerde uitspraken te doen over virusverwijdering tijdens 60 dagen transport in een kwetsbaar watervoerend pakket.

8.1.1 *Bacteriofagen breken eerder door dan bromide*

De resultaten toonden aan dat de maximale doorbraak van de conservatieve tracer bromide later werd gemeten dan de maximale doorbraak van beide bacteriofagen. De meest logische verklaring voor deze discrepantie is dat bromide, in tegenstelling tot de bacteriofagen, door alle poriën stroomt. Wanneer bacteriofagen te groot zijn om door de kleinste poriën te stromen worden ze voor een groter gedeelte door de overige poriën getransporteerd. Het netto oppervlak waar de bacteriofagen doorheen stromen is daardoor kleiner dan het netto oppervlak waar bromide doorheen stroomt. Hierdoor is de gemiddelde stroomsnelheid van doorstromen voor bacteriofagen groter dan voor bromide. Dit heeft tot gevolg dat de maximale concentratie bacteriofagen eerder wordt bereikt dan de maximale bromideconcentratie. Dit fenomeen wordt ook wel porie-exclusie genoemd en is ook gerapporteerd in eerdere studies [2,8,16,25,39].

De porie-exclusie werd vooral waargenomen over het traject van doseerput tot de tweede waarnemingsput. In dat traject nam het verschil in tijd tussen de maximale doorbraak van de bacteriofagen en natriumbromide toe tot ongeveer 6 dagen in de eerste waarnemingsput en tot ongeveer 10 dagen in de tweede waarnemingsput. Bij de pompput was het verschil in tijd van de maximale doorbraak 10 dagen en in het laatste traject lijken dus zowel de bacteriofagen als de bromide met dezelfde snelheid door het watervoerende pakket getransporteerd te worden. Een verklaring hiervoor kan zijn dat het watervoerende pakket over het traject van doseerput tot pompput niet homogeen is. Mocht bijvoorbeeld het aantal kleine poriën groter zijn in het eerste traject in vergelijking tot het tweede traject, dan zal het verschil in doorbraaktijd tussen bromide en bacteriofagen in het eerste deel groter zijn dan in het tweede deel, vergelijkbaar met de waarnemingen in onze studie.

Tijdens de 62 tot 63 dagen gemiddelde verblijftijd in het anoxisch watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein was de verwijdering van bacteriofaag MS2 3,5 logeenheden en van Φ X174 4,9

logeenheden. De gemiddelde inactivatieconstante van de gehechte MS2-fagen was $0,0359 \text{ log dag}^{-1}$ en dus zijn er 2,3 logeenheden niet-gehechte MS2-fagen afgestorven tijdens de 63 dagen verblijftijd ($63 \times 0,0359$). Dit betekent dat 1,2 logeenheden MS2-fagen door hechting zijn verwijderd. Voor bacteriofaag Φ X174 geldt dat 0,8 logeenheden door afsterving zijn verwijderd ($62 \times 0,0129$) en 4,1 logeenheden door hechting. Bacteriofaag MS2 gedraagt zich dus conservatiever dan Φ X174 als het om hechting gaat, maar de inactivatie van MS2 in grondwater is minder conservatief dan Φ X174.

8.1.2 *Vertaling van bacteriofagen naar humaanpathogene virussen*

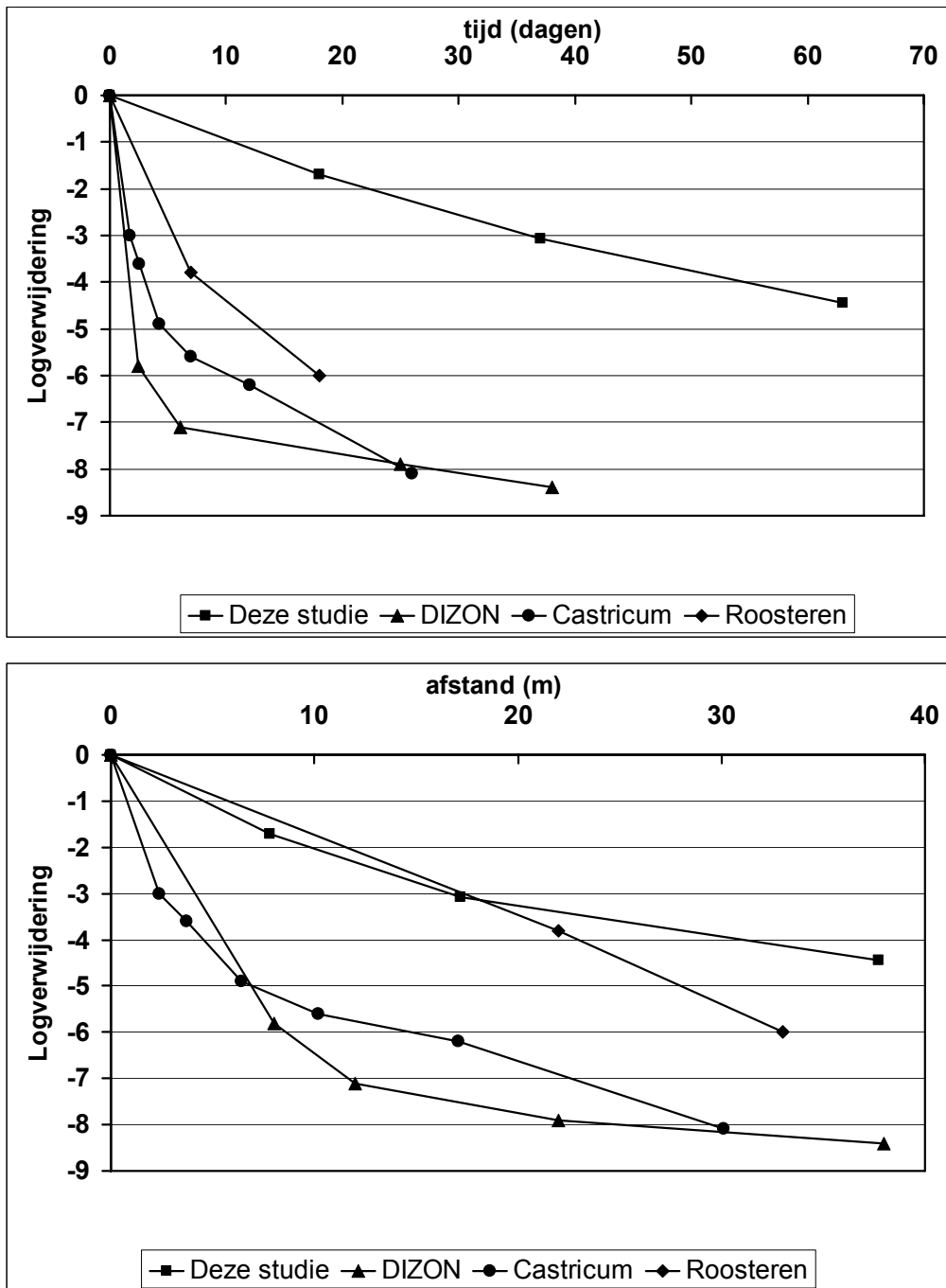
Mocht er een humaanpathogeen enterovirus bestaan die zowel in hechting als inactivatie conservatief is dan zou de verwijdering van zo'n virus over 62 tot 63 dagen verblijftijd 2,0 logeenheden zijn. Een humaanpathogeen virus dat zich zo conservatief gedraagt met betrekking tot de hechting en inactivatie is echter niet beschreven in de literatuur. Voor Poliovirus 1, Echovirus 1, Hepatitis A virus, Coxsackievirus 1 en Rotavirus is bekend dat ze een vergelijkbare of hogere inactivatieconstante hebben dan de inactivatieconstante voor MS2 [5,10,18,23,24,50,51]. Voor Coxsackievirus A9 en B1 zijn door Dizer et al. [10] inactivatieconstanten gerapporteerd die gelijk zijn aan die van Φ X174. In de studie van Dizer et al. [10] werd echter waargenomen dat de afsterving van Coxsackievirus A9 en B1 in twee fasen verliep: een snelle inactivatie tijdens de eerste 50 tot 60 dagen en een trage inactivatie na 60 dagen. De inactivatieconstante voor Coxsackievirus A9 en B1 was over de eerste 60 dagen vergelijkbaar met de inactivatieconstante van MS2 en dus hebben deze twee humaanpathogene virussen tijdens 60 tot 100 dagen bodemtransport ook geen conservatieve inactivatieconstante die vergelijkbaar is met Φ X174. Over hechting van humaanpathogene virussen tijdens bodempassage is nauwelijks iets bekend. Resultaten van een veldstudie toonden aan dat de verwijdering van poliovirus 1 hoger was dan van MS2 tijdens bodempassage in een oxisch watervoerend pakket. Er is op dit moment geen humaanpathogeen virus bekend dat zich conservatief gedraagt ten aanzien van zowel hechting als inactivatie. We concluderen daarom dat het gebruik van onderzoeksresultaten met MS2 en Φ X174 leidt tot conservatieve uitspraken voor humaanpathogene virussen.

8.2 **Vergelijking met eerdere studies**

Onderzoek naar virusverwijdering tijdens transport in het watervoerende pakket is in het verleden op meerdere locaties in Nederland uitgevoerd [22,33,34]. De kenmerken van het watervoerende pakket op deze locaties zijn echter anders dan in het watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein (Tabel 8.1). In Castricum en Roosteren was het watervoerende pakket oxisch en werd het water onttrokken uit infiltratiepanden (Castricum) of uit de rivier De Maas (Roosteren). Verder had het watervoerende pakket bij Roosteren een duidelijk lagere pH (6,5) en had het zand/grind een duidelijk grotere korreldiameter (20 mm) dan het watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein. Het watervoerende pakket bij Someren (DIZON) was anoxisch, maar had een lagere pH (6,6) dan het watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein. Daarnaast werd in de DIZON-veldstudie

Tabel 8.1 Eigenschappen van de verschillende aquifers waar verwijdering van bacteriofagen tijdens bodemtransport is onderzocht

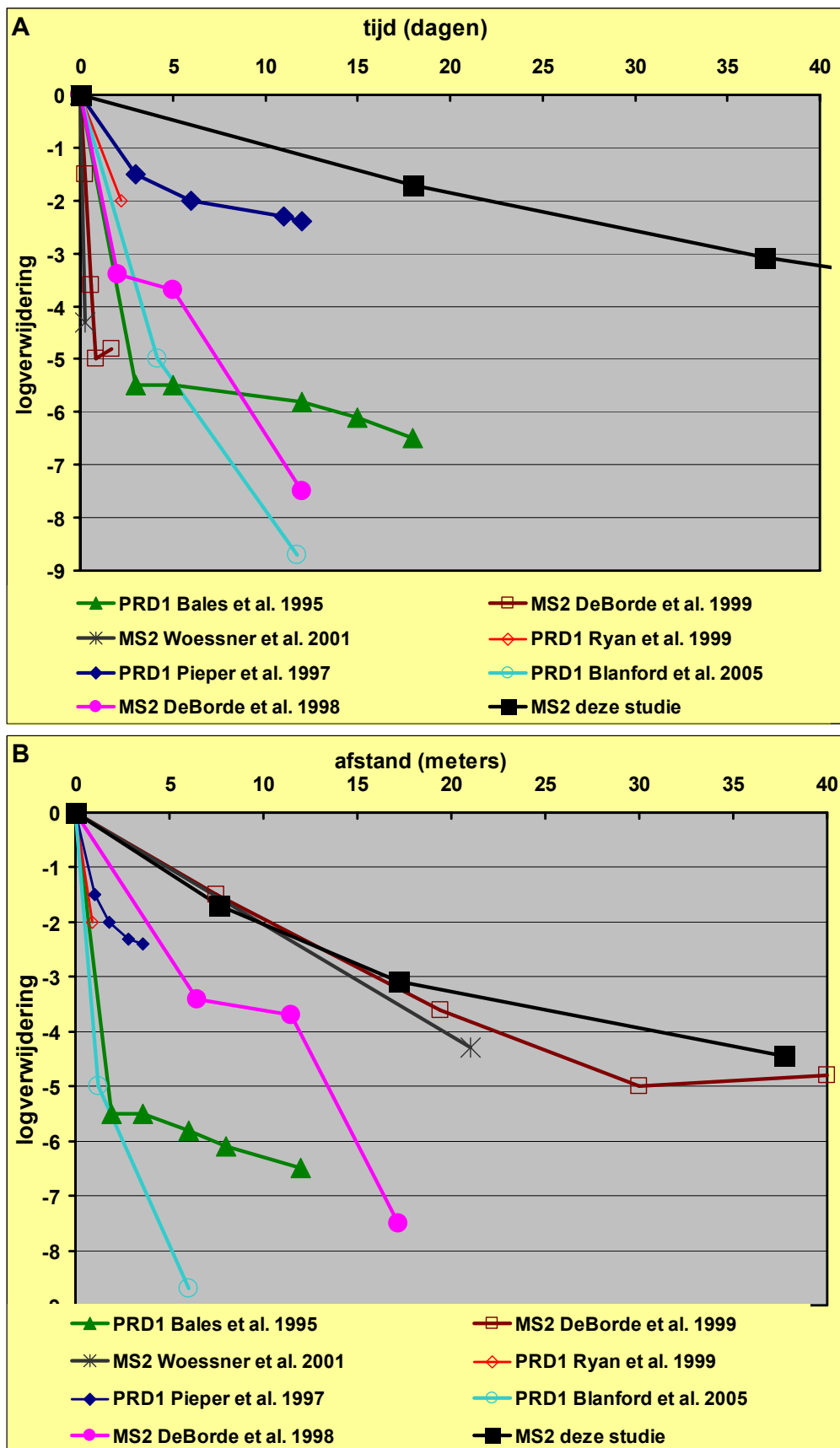
	Watervoerend pakket	Korrel-diameter	Diepte dosering	Zuurstof	IJzer	NH4	pH	Fe-hydroxiden	Studies
Kiwa Water Research-terrein	Scheidende laag aanwezig		11 - 13	0,61 – 0,75	1,7 – 2,1	1,0 -1,4	7,5	Waarschijnlijk niet aanwezig	Deze studie
Castricum	Geen scheidende laag aanwezig	0,21	0,8	1.1	0.5	ND	7.5-7.8	Aanwezig	Schijven et al. [33]
Roosteren	Scheidende lagen aanwezig	20	nvt	0 – 8,3	0 - 12	0,03 – 0,3	6,5 – 7,0	Aanwezig	Medema en Stuyfzand [22]
DIZON	Scheidende lagen aanwezig	0,27	280-310	0 – 0,8	0 – 4,9	0 – 1,2	6,5 – 7,0	Aanwezig	Schijven et al. [34]
Cape Cod (USA)	Geen scheidende lagen aanwezig	0,60	6,4 -6,7	6-11	<0,0028	<0,13	5,0 - 5,7	Aanwezig	Bales et al. [4] Pieper et al. [27] Ryan et al. [28]
Missoula I (USA)	Geen scheidende lagen aanwezig	Fijn zand	1,8 – 2,3	3,5	ND	ND	7,2	Niet aanwezig	Blanford et al. [6] De Borde et al. [8] Woessner et al. [47]
Missoula II (USA)	Geen scheidende lagen aanwezig	2,4	3 - 6	3,4 – 6,4	ND	<0,13	6,6 – 7,2	Onbekend	De Borde et al. [9]



Figuur 8.1 De waargenomen logverwijdering van MS2 als functie van de verblijftijd (A) en als functie van de afstand (B) in vier verschillende aquifers in Nederland. Data van DIZON, Castricum en Roosteren zijn gehaald uit Medema & Stuyfzand [22].

oxisch oppervlaktewater kunstmatig geïnfiltreerd, waardoor in een zone rondom de infiltratie de redoxstatus veranderde van anoxisch naar oxisch. Om te onderzoeken of er verschil was in virusverwijdering op de verschillende locaties, is de gemeten logverwijdering van bacteriofaag MS2 bij de verschillende locaties uitgezet tegen de verblijftijd (Figuur 8.1A) en afstand (Figuur 8.1B). Uitgezet tegen de verblijftijd is de gevonden verwijdering van MS2 in het kwetsbare anoxische watervoerende pakket (deze studie) lager dan de MS2-verwijdering op de andere locaties. Uitgezet tegen de afstand is de MS2-verwijdering in het watervoerende pakket van Someren (DIZON) en Castricum ook hoger dan de verwijdering gemeten in onze studie. Over de eerste 20 meters is de verwijdering van MS2 in het watervoerende pakket van Roosteren vergelijkbaar met de verwijdering in onze studie; daarna is de verwijdering in het watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein lager dan bij Roosteren. Dit verschil tussen verblijftijd en afstand bij Roosteren wordt veroorzaakt door de grote korreldiameter van het zand/grind in het watervoerende pakket van Roosteren. Een grote korreldiameter resulteert in grotere poriën en een hogere stroomsnelheid van het water, waardoor de verblijftijden in het watervoerende pakket van Roosteren relatief kort zijn ten opzichte van de afstand.

Het watervoerende pakket van Someren (DIZON-studie) was evenals in onze studie anoxisch. In de DIZON-studie steeg de redoxstatus van het gebied rond de infiltratieput door infiltratie van oppervlaktewater. De vier waarnemingsputten waar monsters zijn genomen om de verwijdering te bepalen lagen aan beide kanten van de infiltratieput waar de micro-organismen werden gedoseerd [34]. De gemeten virusverwijdering in de vier waarnemingsputten is echter uitgezet alsof de waarnemingsputten in één lijn tussen infiltratieput en pompput lagen. Door de heterogeniteit in het watervoerende pakket tijdens diepinfiltratie [34] is het onduidelijk of de verwijdering waargenomen aan de ene kant van de infiltratieput gespiegeld mag worden naar de andere kant van de infiltratieput. Het traject van de infiltratieput tot de eerste waarnemingsput bevatte door de infiltratie zuurstofhoudend water, terwijl in de overige transporttrajecten het grondwater niet zuurstofhoudend was. Het is daarom verleidelijk om de verwijdering die is waargenomen van de eerste waarnemingsput tot de laatste waarnemingsput te vergelijken met de verwijdering die is waargenomen in onze studie. De verwijdering over dit traject van ~ 36 dagen in de DIZON-studie is lager (2,6 log) dan waargenomen in het eerste traject (36 dagen) van onze studie (3,1 log). Toch kunnen beide studies niet direct met elkaar vergeleken worden omdat in de DIZON-studie de waarnemingsputten niet in één lijn tussen infiltratieput en pompput lagen en omdat meer dan 99,999% van de gedoseerde MS2 fagen ($6,1 \times 10^7 \text{ N l}^{-1}$) al in het eerste oxische deel van het watervoerende pakket werd verwijderd. Het is niet duidelijk of de kleine fractie van de MS2-bacteriofagen die niet zijn verwijderd in dit traject dezelfde gemiddelde eigenschappen vertonen als de MS2-bacteriofagen in de oorspronkelijke populatie. Alleen wanneer de experimenten in Someren onder strikt anoxische condities worden uitgevoerd kan de verwijdering worden vergeleken met de verwijdering waargenomen in onze studie.



Figuur 8.2 De waargenomen logverwijdering van MS2 als functie van de verblijftijd (A) en als functie van de afstand (B) in acht verschillende internationale studies.

De waargenomen verwijdering van MS2 in het kwetsbare watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein is niet alleen vergeleken met Nederlandse studies, maar ook met studies die zijn uitgevoerd in het buitenland (Figuur 8.2). De buitenlandse studies zijn uitgevoerd op drie verschillende locaties in de Verenigde Staten, die duidelijk verschillen met de locatie op het Kiwa Water Research-terrein (Tabel 8.1). De drie locaties in de Verenigde Staten waren alle locaties waar het watervoerende pakket geen scheidende lagen bevatten, waardoor het grondwater oxisch was. Uitgezet tegen de verblijftijd is de verwijdering van bacteriofaag MS2 in het kwetsbare watervoerend pakket op het Kiwa Water Research-terrein beduidend lager dan de verwijdering van bacteriofaag MS2 of PRD1 op de buitenlandse locaties. Opvallend is dat in de buitenlandse studies de verwijdering van bacteriofagen tijdens een relatief korte verblijftijd is onderzocht (0,23 tot 18 dagen). De studies van Bales et al. [4], Pieper et al. [27], Ryan et al. [28] en Blanford et al. [6] zijn uitgevoerd met bacteriofaag PRD1 op dezelfde locatie (Cape Cod, U.S.). PRD1 is een andere bacteriofaag dan MS2, maar uit de veldstudies van Schijven et al. [33,34] is gebleken dat de verwijdering van beide bacteriofagen vergelijkbaar is.

Uitgezet tegen de afstand is de verwijdering van bacteriofaag MS2 op het Kiwa Water Research-terrein vergelijkbaar met de verwijdering van MS2 die is waargenomen in een watervoerend pakket bij Missoula in de Verenigde Staten [8,47]. De bacteriofaagverwijdering waargenomen in de overige studies is echter weer beduidend lager. Het watervoerende pakket bij Missoula werd gekenmerkt door een hoge stroomsnelheid (27 m dag^{-1}) van het grondwater, waardoor de transportsnelheid van de bacteriofagen in de veldstudie hoog was. Dit heeft tot gevolg dat het traject van 36 meter in één dag werd afgelegd, terwijl in onze studie bacteriofaag MS2 62 dagen nodig had om 37,7 meter af te leggen. Opvallend is verder dat de PRD1-resultaten verschillen tussen de verschillende studies terwijl ze in dezelfde aquifer zijn uitgevoerd [4,6,27,28]. De PRD1-verwijdering varieerde in de verschillende studies van 2,3 logeenheden tot 8,8 logeenheden tijdens 12 dagen verblijftijd. Geen van de studies heeft de gevonden resultaten vergeleken met eerdere studies, waardoor niet is aan te geven waar dit verschil door wordt veroorzaakt.

Concluderend stellen we dat de verwijdering van MS2-fagen die is waargenomen in het anoxische watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein, aanzienlijk lager is in vergelijking met andere locaties. Dit bevestigt onze hypothese dat de virusverwijdering laag is in een anoxisch watervoerend pakket met een relatieve hoge pH en dat een dergelijk watervoerend pakket beschouwd kan worden als een worstcasescenario voor virusverwijdering.

9 Vertaling van de resultaten naar lengte microbiologische beschermingszone

Het belangrijkste doel van deze studie is om uitsluitsel te geven of de huidige richtlijn van 60 dagen de winmiddelen van grondwaterwinningen voldoende beschermt tegen virusbesmetting. De resultaten van de veldstudie lieten zien dat tijdens 60 dagen verblijftijd in het anoxische watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein de verwijdering van bacteriofaag MS2 3,5 logeenheden was en van Φ X174 4,9 logeenheden. Om in te schatten of deze verwijdering voldoende is om virusbesmetting van de winmiddelen te voorkomen is het noodzakelijk om te achterhalen (i) wat de belangrijkste bronnen van virusbesmetting zijn, (ii) wat voor humaanpathogene virussen erin voorkomen en hoe hoog de concentratie is en (iii) in welke mate deze bronnen verdund raken met onbesmet grondwater.

9.1 Bronnen voor virusbesmetting

In het rapport van de commissie Bescherming Waterwingebieden worden fecale bronnen genoemd die de bodem en/of grondwater kunnen verontreinigen met bacteriën en virussen. Hierbij worden drie fecale bronnen in het bijzonder genoemd: lekkende riolering, fecaal verontreinigd oppervlaktewater en lekkende voorzieningen voor de opslag van dierlijk mest [1]. Ondanks dat het rapport van de commissie een groot aantal jaren geleden is opgesteld lijken deze drie fecale bronnen nog steeds de belangrijkste bedreigingen te zijn voor microbiële verontreiniging van het grondwater.

9.2 Humaanpathogene virussen in fecale bronnen

Van de drie genoemde fecale bronnen bevat dierlijke mest de laagste concentratie aan humaanpathogene virussen. Veel van de enteropathogene virussen die in menselijke en dierlijke fecaliën voorkomen zijn gastheerspecifiek. Dierspecifieke enteropathogene virussen zijn dus over het algemeen niet in staat zijn om ook mensen te infecteren. De besmetting van grondwater met dierlijke fecale bronnen lijkt dus een minder grote bedreiging te zijn voor de volksgezondheid dan besmetting met humane fecale bronnen. Rioolwater en oppervlaktewater kunnen een groot scala aan huamspecifieke enteropathogene virussen bevatten. Over Reovirussen, Enterovirussen, Norovirussen en Rotavirussen zijn gegevens beschikbaar [21]. In 1998 en 1999 zijn door het RIVM watermonsters genomen van de Maas en Waal en bij een rioolwaterzuiveringsinstallatie in Apeldoorn[21]. Deze watermonsters zijn vervolgens onderzocht op aantallen Reovirussen, Enterovirussen, Norovirussen en Rotavirussen. De hoogste aantallen van deze virussen die werden gevonden in Maas, Waal en rioolzuivering zijn weergegeven in Tabel 9.1. De aantallen Noro- en Rotavirussen waren beduidend hoger in de watermonsters dan de aantallen Entero- en Reovirussen, maar Noro- en Rotavirussen werden gekwantificeerd met een PCR-methode, terwijl Entero- en Reovirussen werden gekwantificeerd met cellijnen. Een beperking van de PCR-methode is dat het geen kwantitatieve

maat is voor het aantal infectieuze Norovirussen en Rotavirussen, maar het geeft slechts de hoeveelheid RNA van de virussen in het watermonsters aan. Met de cellijnmethode wordt wel het aantal infectieuze virusdeeltjes bepaald.

Tabel 9.1 Aantallen Entero-, Reo-, Noro- en Rotavirussen in oppervlaktewater en rioolwater (data genomen uit Lodder & de Roda Husman[21])

Watertype	Enterovirussen (pve ^a liter ⁻¹)	Reovirussen (pve liter ⁻¹)	Norovirussen (pde ^b liter ⁻¹)	Rotavirussen (pde liter ⁻¹)
Oppervlaktewater ^c	2	10	4900	5386
Rioolwater ^d	833	2143	$8,5 \times 10^5$	$5,5 \times 10^4$

^a pve = plaquevormende eenheden

^b pde = PCR detecteerbare eenheden

^c Oppervlaktewatermonsters zijn genomen van december 1998 tot en met maart 1999 in de Waal of de Maas

^d Rioolwatermonsters zijn genomen november 1998 tot en met februari 1999 bij de rioolwaterzuivering van Apeldoorn

9.3 Berekening microbiologische veiligheidszone rond grondwaterwinningen

De microbiologische veiligheidszone rond grondwaterwinningen zou een dusdanige lengte moeten hebben dat het infectierisico uit het waterleidingbesluit (1 op 10.000 mensen per jaar [37]) niet wordt overschreden. Dit infectierisico wordt niet overschreden wanneer de virusconcentratie in het drinkwater onder de $1,2 \times 10^{-6}$ ligt [7]. Als wordt aangenomen dat er geen virusverwijdering meer plaatsvindt in de grondwaterzuivering dan mag, om onder het 10^{-4} infectierisico te blijven, de virusconcentratie in het gewonnen grondwater ook maximaal $1,2 \times 10^{-6}$ per liter zijn. Met het scenario van een lekkend riool betekent dit dat de in Tabel 9.1 genoemde virusconcentraties voor rioolwater door verdunning en verwijdering tijdens bodempassage gedaald moeten zijn tot $1,2 \times 10^{-6}$ virussen per liter.

Wanneer virussen vanuit het riool in een watervoerend pakket terecht komen waar grondwater voor de drinkwaterbereiding wordt gewonnen, zal het rioolwater bij de pompput verdund raken met het grondwater dat wordt onttrokken. De mate van verdunning van het lekkende rioolwater met grondwater is afhankelijk van het lekdebiet bij het riool en het onttrekkingsdebiet van de winning. In een studie waar de beschermingszone theoretisch werd berekend met een model, werd er vanuit gegaan dat het lekdebiet van een riool $1 \text{ m}^3 \text{ dag}^{-1}$ is [32]. Dit lekdebiet komt overeen met een afvalwaterproductie van ongeveer 8 personen en een dergelijke lekkage zal door het relatieve lage debiet niet snel worden opgemerkt. Bij een winning met een relatief laag onttrekkingsdebiet van $1000 \text{ m}^3 \text{ dag}^{-1}$ betekent dit een verdunning van ongeveer 3 logeenheden. Het lekdebiet van een lekkend riool kan echter ook groter zijn, maar evenzo is het onttrekkingsdebiet van 92% van de freatische winningen groter dan $1000 \text{ m}^3 \text{ dag}^{-1}$. Een 3 log verdunning van het aantal virussen bij de pompput is dus een relatief conservatieve aanname.

De verwijdering van bacteriofaag MS2 tijdens bodempassage in het anoxische watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein was

conservatiever dan van Φ X174. De logverwijdering van bacteriofaag MS2 uitgezet tegen de verblijftijd verliep lineair (Figuur 5.4) volgens de formule: $[\log\text{verwijdering}] = 0,0576 \times [\text{verblijftijd}]$. Met behulp van de virusconcentratie in rioolwater, de mate van verdunning en de formule tussen verblijftijd in het watervoerende pakket en virusverwijdering kan een inschatting worden gemaakt van de benodigde reistijd waarmee het infectierisico van 1 op 10.000 mensen niet wordt overschreden. De op deze manier berekende reistijd is weergegeven in Tabel 9.2 voor een aantal virussen die voorkomen in rioolwater. Tevens is de lengte berekend voor een aantal verschillende scenario's met betrekking tot de mate van verdunning bij de pompput van het lekkende rioolwater met het grondwater.

Tabel 9.2 De benodigde reistijd rond grondwaterwinningen om onder het infectierisico van 10^{-4} te blijven, uitgaande van een lekkend riool. De reistijd is berekend voor verschillende virussen en voor verschillende verdunningen bij de pompput van het rioolwater met grondwater.

Verdunning (log N l ⁻¹)	Enterovirussen		Reovirussen	
	Verwijdering (log N l ⁻¹)	Benodigde reistijd (dagen)	Verwijdering (log N l ⁻¹)	Benodigde reistijd (dagen)
1,0	7,8	135	8,3	144
1,5	7,3	127	7,8	135
2,0	6,8	118	7,3	127
2,5	6,3	109	6,8	118
3,0	5,8	101	6,3	109
3,5	5,3	92	5,8	101
4,0	4,8	83	5,3	92
4,5	4,3	75	4,8	83
5,0	3,8	66	4,3	75

Verdunning (log N l ⁻¹)	Norovirussen		Rotavirussen	
	Verwijdering (log N l ⁻¹)	Benodigde reistijd (dagen)	Verwijdering (log N l ⁻¹)	Benodigde reistijd (dagen)
1,0	10,9	189	9,6	167
1,5	10,4	181	9,1	158
2,0	9,9	172	8,6	149
2,5	9,4	163	8,1	141
3,0	8,9	155	7,6	132
3,5	8,4	146	7,1	123
4,0	7,9	137	6,6	115
4,5	7,4	128	6,1	106
5,0	6,9	120	5,6	97

Een verdunning van 3 logeenheden van het rioolwater door het oppompen van omringend niet besmet grondwater bij de pompput is een realistische conservatieve aanname. Uit Tabel 9.2 volgt dat bij een 3 log verdunning een reistijd van 100 tot 110 dagen nodig is om een concentratie van $1,2 \times 10^{-6}$ Entero- en Reovirussen per liter bij de pompput te krijgen. Wanneer het lekdebiet van het riool echter 10 keer groter zou zijn ($10 \text{ m}^3 \text{ dag}^{-1}$) en daarmee de verdunning met grondwater bij de pompput een factor 10 lager, dan zou

de reistijd ongeveer 17 dagen langer moeten zijn. Voor Noro- en Rotavirussen zou de reistijd 132 tot 155 dagen moeten zijn om de concentratie van $1,2 \times 10^{-6}$ per liter te halen, uitgaande van een 3 log verdunning. De concentratie Noro- en Rotavirussen in rioolwater werden echter bepaald met een PCR-methode op decimale verdunningen van het rioolwater [21]. Niet alle PCR-detecteerbare viruseenheden zijn infectieus, maar het is onbekend welk percentage van de PCR-detecteerbare viruseenheden infectieus is. De concentratie infectieuze Noro- en Rotavirussen in rioolwater kan daardoor niet worden bepaald, wat resulteert in een onbetrouwbare schatting van de benodigde reistijd.

9.4 Kwetsbare freatische grondwaterwinningen in Nederland

Eerder onderzoek in de duinen bij Castricum heeft aangetoond dat een 8 logverwijdering van bacteriofaag MS2 optrad in een oxisch watervoerend pakket bij een reistijd van 26 dagen [33]. Wanneer we deze resultaten vertalen naar freatische grondwaterwinningen met een oxisch watervoerend pakket dan concluderen we dat een microbiologische veiligheidszone van 60 dagen voldoende veiligheid biedt rond freatische oxische grondwaterwinningen.

Een aantal winningen heeft grondwater met een redoxstatus tussen oxisch en anoxisch in. Met de huidige kennis is wel de verwachting dat de benodigde reistijd bij deze winningen korter is dan 110 dagen, maar is niet aan te geven of 60 dagen reistijd bij deze suboxische winningen voldoende veiligheid biedt tegen virusdoorbraak naar de pomput.

Uit het onderzoek beschreven in dit rapport blijkt dat onder het scenario van een lekkend riool en een anoxisch watervoerend pakket met een relatieve hoge pH een verblijftijd van 60 dagen niet voldoet aan het infectierisico van 1 op 10.000 mensen per jaar. Een verblijftijd van 110 dagen voldoet in dat geval wel aan het 10^{-4} infectierisico.

Een recente studie van Kiwa Water Research, DZH en Waternet bij Solleveld heeft aangetoond dat over 0,5 meter onverzadigd transport bacteriofaag MS2 wordt verwijderd met 0,7 logeenheden [25]. Wanneer we ervan uitgaan dat deze verwijdering lineair is met afstand en surrogaat voor humaanpathogene virussen dan worden virussen over 2,5 meter onverzadigde zone met 3,5 logeenheden verwijderd. Bij een 3,5 log virusverwijdering in de onverzadigde zone is een verblijftijd van 60 dagen in een kwetsbaar watervoerend pakket voldoende om onder het infectierisico van 1 op 10.000 mensen per jaar te blijven (Tabel 9.2). Rioleringen liggen in Nederland over het algemeen tot 2,5 meter diep in de grond, wat betekent dat de 60-dagenzone voldoende bescherming biedt rond winningen met een onverzadigde zone van 5 meter of meer.

In Nederland worden 204 grondwaterwinningen gebruikt voor de productie van drinkwater. 121 van deze 204 grondwaterwinningen winnen het grondwater onder beschermende kleilagen, waardoor ze niet kwetsbaar zijn. 83 grondwaterwinningen winnen het grondwater in een freatisch zandig watervoerend pakket. 55 van deze 83 freatische grondwaterwinningen

hebben een oxisch watervoerend pakket of een onverzadigde zone van meer dan 5 meter en zijn daardoor ook niet kwetsbaar. Voor 176 grondwaterwinningen geldt dus dat ze grondwater winnen in watervoerende pakketten die niet kwetsbaar zijn. De huidige 60-dagenzone beschermt deze 176 winningen voldoende tegen doorbraak met virussen.

17 grondwaterwinningen winnen suboxisch grondwater en hebben een verzadigde zone van minder dan 5 meter. Doordat zowel de veld- en de labexperimenten altijd met oxisch of anoxisch grondwater zijn uitgevoerd, is het niet bekend wat de verwijdering van virussen in een suboxisch watervoerend pakket is. Daarom kan geen inschatting worden gemaakt of het huidige waterwingebied deze 17 grondwaterwinningen voldoende beschermt tegen virusdoorbraak.

11 grondwaterwinningen winnen het grondwater in een anoxisch watervoerend pakket met een onverzadigde zone van minder dan 5 meter (Tabel 9.3)[45] en zijn dus vergelijkbaar met de worstcaselocatie op het Kiwa Water Research-terrein. Zestig dagen reistijd is rond deze winningen niet toereikend tegen een lekkend riool; daarvoor is rond deze 11 winningen een reistijd nodig van 110 dagen.

Tabel 9.3 Eigenschappen van kwetsbare anoxische freatische grondwaterwinningen in Nederland. Data genomen uit van der Wielen et al.[45].

Winning	pH	Lengte onverz. zone (m)	Lengte 60-dagenzone (m)	Afstand filter tot wvp (m) ^a
A	6,7	2,5	24,9	47,5
B	6,8	2,0	48,6	32,5
C	6,9	1,5	97,4	6,9
D	6,6	0,6	76,7	31,4
E	7,3	3,0	88,2	32,0
F	6,8	2,2	86,9	12,8
G	7,8	1,5	9,5	18,5
H	7,8	< 1,0	9,3	17,1
I	7,4	2,0	32,2	28,0
J	7,1	4,0	142,2	10,0
K	7,3	0,8	42,7	27,0

^a Dit is de afstand van het bovenkant van het filter tot de bovenkant van het watervoerende pakket (wvp)

De lengte in meters van de huidige 60-dagenzone is berekend op basis van horizontaal transport in de verzadigde zone. De uitkomst dat bij 11 grondwaterwinningen de reistijd naar 110 dagen verlengd moet worden is echter gebaseerd op een lekkend riool, een situatie die op dit moment waarschijnlijk niet voorkomt bij de 11 winningen. Tevens bevat virustransport van een lekkend riool naar de winput zowel horizontaal als verticaal transport. Dit moet worden meegenomen bij de berekening van de 110-dagenzone rond de 11 kwetsbare grondwaterwinningen in Nederland. Wel moet daarbij worden gerealiseerd dat de horizontale transporttijd van toekomstige boringen in de omgeving tot de winput minder dan 110 dagen kan zijn, wanneer de 110-dagenzone gebaseerd is op verticaal en horizontaal transport vanaf maaiveld tot pompput.

10 Modelling verwijdering bacteriofagen

Schijven et al. [32,35,36] hebben een model ontwikkeld waarmee de afstand en reistijd van de microbiologische beschermingszone rond grondwaterwinningen kan worden berekend. Dit model combineert een virustransportmodel met een infectierisicomodel. Het virustransportmodel geeft de relatie weer van de hoeveelheid virussen die na bodempassage overblijft als functie van de afstand. Het infectierisicomodel is een dosisresponsmodel voor infectie van Rotavirussen [40] en toont de relatie tussen het infectierisico en de hoeveelheid virussen in het drinkwater. Door de hoeveelheid virussen in het drinkwater gelijk te stellen aan de hoeveelheid virussen die overblijft in de winput, kunnen beide modellen aan elkaar worden gekoppeld. Door de koppeling wordt de infectiekans uiteindelijk geschat als functie van de afstand tussen besmettingsbron en winput: $P(\text{inf}) = f(R)$. Modeluitkomsten van Schijven et al. [35,36] lieten zien dat verblijftijden van 1 tot 2 jaar nodig zijn rond freatische grondwaterwinningen in Nederland om onder het infectierisico van 1 op 10.000 mensen per jaar te blijven. In een latere studie zijn de beschermingszones opnieuw berekend, waarbij een verschil werd gemaakt tussen oxische en anoxische winningen[43,44]. De uitkomsten van deze studie nuanceerden het beeld, omdat bleek dat een beschermingszone van ongeveer 60 dagen voldoende bescherming tegen virussen biedt rond freatische oxische winningen. Rond anoxische freatische winningen waren de modeluitkomsten echter vergelijkbaar met de studie van Schijven et al. Eén van de problemen met het model is echter dat het virustransportmodel nog niet is gevalideerd met resultaten die niet zijn gebruikt voor het kalibreren van het model, waardoor de betrouwbaarheid van de modeluitkomsten onbekend is. Daarom werd het virustransportmodel gevalideerd met de uitkomsten van de veldstudie op het Kiwa Water Research-terrein.

10.1 Modelbeschrijving

In het model van Schijven et al. [32] wordt aangenomen dat op een afstand R van de pompput water uit een lekkend riool direct in het grondwater terecht komt. Het transport van virussen in het watervoerende pakket wordt onder steady state condities beschreven door [32]:

$$\frac{dC}{dr} - \alpha_L \frac{d^2C}{dr^2} + \frac{\lambda}{v} C = 0 \quad (12)$$

C = virusconcentratie ($N m^{-3}$)

r = afstand tot de pompput (m)

α_L = longitudinale dispersiviteit (m)

v = poriewatersnelheid ($m \text{ dag}^{-1}$)

λ = verwijderingscoëfficiënt (dag^{-1}) en wordt gedefinieerd als:

$$\lambda = k_{\text{att}} + \mu_1 \quad (13)$$

k_{att} = hechtingsnelheidscoëfficiënt

μ_1 = inactivatiesnelheidscoëfficiënt

Onder homogene condities wordt de poriewatersnelheid richting de pompput beschreven door:

$$v = -\frac{Q}{2\pi\varepsilon D r} \quad (14)$$

waarbij Q onttrekkingsdebiet van de pompput is, ε de effectieve porositeit en D de dikte van het watervoerende pakket.

Volgens de colloïd-filtratietheorie van Yao [49] kan de hechtingsnelheidscoëfficiënt (k_{att}) worden beschreven door:

$$k_{att} = \frac{3}{2} \frac{(1-\varepsilon)}{d_c} \alpha 4 A_S^{1/3} \left(\frac{D_{BM}}{d_c \varepsilon v} \right)^{2/3} \quad (15)$$

waarbij d_c de korreldiameter is, α de botsingsefficiëntie, A_S Happel's porosity dependent parameter en D_{BM} de diffusiecoëfficiënt.

Happel's porosity dependent parameter (A_S) wordt beschreven door:

$$A_S = 2 \frac{(1-\gamma)^5}{(2-3\gamma+3\gamma^5-2\gamma^6)} \quad (16)$$

waarbij $\gamma = (1-\varepsilon)^{1/3}$

De diffusieconstante D_{BM} wordt beschreven door:

$$D_{BM} = \frac{K_B (T + 273)}{3\pi d_p \mu} \quad (17)$$

Waarbij K_B de Boltzmann constante ($1,38 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$) is, T de watertemperatuur ($^{\circ}\text{C}$), d_p de virusgrootte en μ de dynamische viscositeit. Vervanging van vergelijkingen (14) en (15) in (12) resulteert in de volgende vergelijking:

$$\frac{dC}{dr} - \alpha_L \frac{d^2C}{dr^2} - (k_1 r^{2/3} + k_2 r) C = 0 \quad (18)$$

$$\text{waarbij } k_1 = \frac{3}{2} \frac{(1-\varepsilon)}{d_c} \alpha 4 A_S^{1/3} \left(\frac{D_{BM} 2\pi D}{d_c Q} \right)^{2/3} \quad (19)$$

$$\text{en } k_2 = \frac{2\pi\varepsilon D}{Q} \mu_1 \quad (20)$$

Een andere aanname die Schijven et al. [32] maken is dat dispersie verwaarloosbaar is en daardoor niet wordt meegenomen in het model. Vergelijking (18) krijgt dan de volgende oplossing [32]:

$$\ln(C) = \frac{3}{5}k_1r^{5/3} + \frac{1}{2}k_2r^2 + C^* \quad (21)$$

waarbij C^* een integratieconstante is met grenscondities:

$C_R = C_0 \frac{q}{Q_R}$ bij $r = R$ en waarbij C_0 de initiële virusconcentratie in de

rioolbuis is, C_r de virusconcentratie in het watervoerende pakket op R , q de leksnelheid van het rioolwater en Q_R de stroomsnelheid in het watervoerende pakket op R . Er wordt aangenomen dat hechting van virussen niet afhankelijk is van de grootte van het lek in de rioolbuis. Daardoor kan de virusconcentratie op locatie R beschreven worden met:

$$\ln(C) = \frac{3}{5}k_1R^{5/3} + \frac{1}{2}k_2R^2 + C^* \quad (22)$$

met grenscondities $C_A = C_W \frac{Q_R}{Q_A}$ bij $r = W$ en waarbij C_A de virusconcentratie

in het onttrokken water is, C_W is de virusconcentratie op W , W is de radius van de pompput en Q_A is het onttrekkingsdebiet. De virusconcentratie op W wordt beschreven door:

$$\ln(C_W) = \frac{3}{5}k_1W^{5/3} + \frac{1}{2}k_2W^2 + C^* \quad (23)$$

Door vervanging van de grenscondities, formule (22) aftrekken van formule (23) en verwaarlozen van W omdat $W \ll R$ wordt de formule verkregen die de virusverwijdering berekent.

$$\log_{10}\left(\frac{C_A}{C_0}\right) = -\frac{1}{2,3}\left(\frac{3}{5}k_1R^{5/3} + \frac{1}{2}k_2R^2\right) + \log_{10}\left(\frac{q}{Q_A}\right) \quad (24)$$

waarbij verwijdering van virussen wordt beschreven door hechting aan bodemdeeltjes (eerste term aan de rechterkant), inactivatie (tweede term aan de rechterkant) en verdunning (derde term aan de rechterkant).

Tabel 10.1 Waarden voor de verschillende parameters gebruikt om de beschermingszone te berekenen met model van Schijven et al [32].

Parameter		Waarde
Lekdebiet	q	0,48 m ³ dag ⁻¹
Onttrekkingsdebiet	Q	271,92 m ³ dag ⁻¹
Afstand tussen de putten	R	doseerput – pompput: 37,7 m wp 1 – pompput: 29,9 m wp 2 – pompput: 20,5 m
Reistijd tussen de putten	t	doseerput – pompput: 63 dagen wp 1 – pompput: 45 dagen wp 2 – pompput: 26 dagen
Korrel diameter	d _c	405 μm
Porositeit	ε	0,32
Dikte watervoerend pakket	D	50 m
Inactivatieconstante	μ _i	MS2: 0,08297 ln dag ⁻¹ (=0,0359 log dag ⁻¹) ΦX174: 0,0297 ln dag ⁻¹ (=0,0129 log dag ⁻¹)
Boltzmanconstante	K _B	1,38 × 10 ⁻²³ J K ⁻¹
Temperatuur	T	11,3 °C
Virusgrootte	d _p	MS2: 25 nm ΦX174: 26 nm
Dynamische viscositeit	μ	1,26 × 10 ⁻³ kg m ⁻¹ s ⁻¹
Botsingsefficiëntie	α	MS2: 3,03 × 10 ⁻⁵ ΦX174: 1,27 × 10 ⁻⁴

10.2 Modelberekeningen

De formule voor verwijdering van virussen door bodemtransport bevat parameters voor het watervoerende pakket en voor de virussen die locatiespecifiek zijn. De waarden voor deze locatiespecifieke parameters zijn in onze studie bepaald en zijn samen met de niet-locatiespecifieke parameters weergegeven in Tabel 10.1. De verwijdering van bacteriofagen MS2 en ΦX174 werd vervolgens berekend door de locatiespecifieke parameterwaarden in het model toe te passen. Deze berekende logverwijdering en de gemeten logverwijdering voor MS2 en ΦX174 zijn weergegeven in Tabel 10.2. Naast de totale verwijdering van beide bacteriofagen is de verwijdering ook gesplitst in verwijdering door hechting en verwijdering door inactivatie. De gemodelleerde verwijdering door hechting werd bepaald voor MS2 en ΦX174 met de eerste term aan de linkerkant van formule (24) en de gemodelleerde verwijdering door inactivatie werd bepaald voor MS2 en ΦX174 met de tweede term aan de rechterkant van formule (24). De gemeten verwijdering door inactivatie werd bepaald door de gemiddelde inactivatieconstante van MS2 en ΦX174 te vermenigvuldigen met de reistijd. De gemeten verwijdering door hechting werd bepaald door de gemeten verwijdering door inactivatie en de verwijdering door verdunning (bepaald met behulp van doorbraakcurven van bromide) af te trekken van de totale verwijdering.

Tabel 10.2 Gemodelleerde en gemeten verwijdering van bacteriofagen MS2 en Φ X174 in traject van doseerput of waarnemingsputten tot pompput.

MS2						
Afstand (m)	Gemodelleerde verwijdering			Gemeten verwijdering		
	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)
37,7	15,2	3,0	9,5	7,2	1,2	2,3
29,9	10,7	2,0	6,0	5,5	0,7	1,6
20,5	6,6	1,1	2,8	4,1	0,3	0,9

ΦX174						
Afstand (m)	Gemodelleerde verwijdering			Gemeten verwijdering		
	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)
37,7	18,3	12,2	3,4	8,6	4,1	0,8
29,9	13,2	8,3	2,1	5,9	2,6	0,6
20,5	8,2	4,4	1,0	4,6	1,9	0,3

Wat opvalt aan de gemodelleerde en de gemeten logverwijdering, is dat de totale verwijdering die het model voorspelde voor de bacteriofagen MS2 en Φ X174 veel hoger was dan de totale verwijdering die werd gemeten. Over het traject van doseerput tot pompput (afstand 37,7 m) was de gemodelleerde verwijdering van MS2 15,2 logeenheden terwijl de gemeten verwijdering 7,2 logeenheden was. Voor bacteriofaag Φ X174 was de gemodelleerde verwijdering over dit traject 18,3 logeenheden, terwijl de gemeten verwijdering 8,6 logeenheden was. Het model schat de verwijdering dus 8 tot 10 logeenheden te hoog.

Zowel de verwijdering door hechting als door inactivatie werd door het model voor beide bacteriofagen te hoog geschat. Voor bacteriofaag MS2 geldt dat de verwijdering door hechting 0,8 tot 1,8 logeenheden te hoog werd geschat, terwijl de verwijdering door inactivatie met het model 1,9 tot 7,2 logeenheden hoger was dan werkelijk gemeten. De verwijdering door inactivatie werd voor bacteriofaag Φ X174 iets beter door het model voorspeld, maar was nog steeds 0,7 tot 2,6 logeenheden hoger dan de gemeten verwijdering door inactivatie. De verwijdering door hechting voor bacteriofaag Φ X174 werd door het model 2,5 tot 8,1 logeenheden te hoog geschat. Deze getallen laten zien dat het model een uiterst onbetrouwbare schatting van de verwijdering van de bacteriofagen MS2 en Φ X174 geeft.

De verwijdering door inactivatie van bacteriofagen MS2 en Φ X174 werd door het model in alle gevallen veel hoger geschat dan wat in werkelijkheid werd gemeten. Het verschil tussen de gemeten verwijdering en de gemodelleerde verwijdering was voor bacteriofaag MS2 echter het grootst (7,2 logeenheden voor het traject doseerput - pompput). Inactivatie van virussen is een tijdsafhankelijk fenomeen en wordt beschreven door $\mu_1 \times t$, waarbij μ_1 de inactivatieconstante is en t de verblijftijd. Omdat het model bedoeld is om de lengte van de beschermingszone in meters uit te rekenen wordt de verwijdering door inactivatie ook met behulp van de afstand uitgerekend.

Hierbij wordt aangenomen dat het watervoerende pakket homogeen is, waardoor de reistijd in het geval van een radiale pompput beschreven kan worden met:

$$t = \frac{\pi \epsilon D R^2}{Q} \quad (25)$$

Hierdoor wordt de term voor inactivatie in formule (24): $\mu_i \times \frac{\pi \epsilon D R^2}{Q}$. Zoals

hierboven al gemeld geldt deze formule alleen in het geval van een radiale put in een homogeen watervoerend pakket. Het grote verschil in de gemodelleerde verwijdering en de gemeten verwijdering voor inactivatie toont aan dat de aanname van een homogeen pakket niet geldt op de gebruikte veldlocatie en dat virustransport in een niet-homogeen pakket niet met het model kan worden voorspeld.

Omdat in de uitgevoerde veldproef naast de afstand van de doseerput/ waarnemingsputten tot de pompput ook de reistijd bekend is, werd de virusverwijdering door inactivatie in het model ook berekend met behulp van de reistijd ($\mu_i \times t$) in plaats van de afstand. Hierdoor verandert de totale virusverwijdering die het model voorspelt (Tabel 10.3). De totale gemodelleerde verwijdering van MS2 over 37,7 meter (doseerput-pompput) was 0,8 logeenheden hoger dan de gemeten verwijdering, terwijl de totale gemodelleerde verwijdering van $\Phi X174$ over 37,7 meter 7,1 logeenheden hoger was dan de gemeten verwijdering. De verwijdering van MS2 werd door het gebruik van de reistijd, om de verwijdering door inactivatie te berekenen, dus redelijk goed voorspeld. De verwijdering van $\Phi X174$ werd echter nog steeds slecht voorspeld door het model. Dit komt omdat de verwijdering door hechting voor $\Phi X174$ in werkelijkheid veel lager was dan het model voorspelde, terwijl de voorspelde verwijdering door hechting voor MS2 beter klopte.

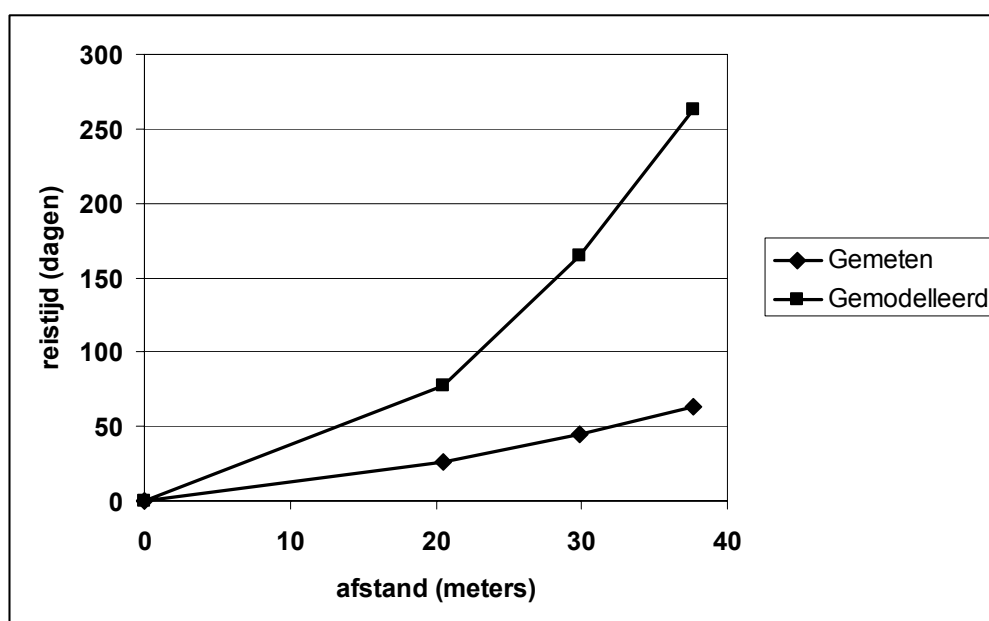
Tabel 10.3 Gemodelleerde en gemeten verwijdering van bacteriofagen MS2 en $\Phi X174$ in traject van doseerput of waarnemingsputten tot pompput berekend. De gemodelleerde verwijdering door inactivatie werd bepaald met behulp van de reistijd tussen de putten.

MS2						
Afstand (m)	Gemodelleerde verwijdering			Gemeten verwijdering		
	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)
37,7	8,0	3,0	2,3	7,2	1,2	2,3
29,9	6,4	2,0	1,6	5,5	0,7	1,6
20,5	4,8	1,1	0,9	4,1	0,3	0,9

$\Phi X174$						
Afstand (m)	Gemodelleerde verwijdering			Gemeten verwijdering		
	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)
37,7	15,7	12,2	0,8	8,6	4,1	0,8
29,9	11,6	8,3	0,6	5,9	2,6	0,6
20,5	7,5	4,4	0,3	4,6	1,9	0,3

Uit deze modelresultaten wordt duidelijk dat voor bacteriofaag MS2 de voorspellende waarde van het model duidelijk verbetert wanneer de verwijdering door inactivatie met de reistijd in plaats van de afstand werd berekend. De omrekening van reistijd naar afstand met formule (25) leidt dus tot foutieve modelvoorspellingen. Aangezien zowel de reistijd als de afstand bekend zijn kunnen we de gemeten reistijd en de gemodelleerde reistijd (met formule (25)) uitzetten tegen de afstand (Figuur 10.1). Uit deze figuur volgt dat de gemodelleerde reistijd veel hoger ligt dan de gemeten reistijd met bromide. Bij 37,7 meter was het verschil tussen de gemodelleerde reistijd en de gemeten reistijd 203 dagen. Het gevolg is dat wanneer de verwijdering door inactivatie met de afstand wordt uitgerekend, het model niet de 60 dagen reistijd maar 263 dagen reistijd gebruikt, waardoor de verwijdering door inactivatie in grote mate te hoog wordt geschat. Het is dan ook beter om in het model de verwijdering door hechting met de afstand uit te rekenen, maar de verwijdering door inactivatie met de reistijd.

Het aangepaste model voorspelde voor bacteriofaag MS2 de verwijdering tijdens bodemtransport redelijk goed. Bacteriofaag MS2 gedraagt zich in een watervoerend pakket conservatief en wanneer een conservatief gedragend micro-organisme voldoende wordt verwijderd dan zal een (minder) conservatief gedragend humaanpathogeen virus ook in voldoende mate worden verwijderd. Daarom wordt bacteriofaag MS2 in veldstudies vaak gebruikt als surrogaat voor humaanpathogene virussen [8,9,22,26,31,47]. Omdat het model de verwijdering van bacteriofaag MS2 tijdens bodemtransport redelijk goed voorspelde (mits de verwijdering door hechting werd bepaald met afstand en de verwijdering door inactivatie met reistijd) zou het model ook toegepast kunnen worden bij grondwaterwinningen. Voorwaarde is wel dat de afstand en reistijd van fecale bron tot pompput bekend zijn.



Figuur 10.1 De gemeten en de gemodelleerde reistijd (formule (25)) uitgezet tegen de afstand.

10.3 Discussie

Het model dat de verwijdering van virussen voorspelt door bodemtransport is gevalideerd met resultaten uit onze veldstudie. Uit deze validatie bleek dat de verwijdering van bacteriofagen MS2 en Φ X174 te hoog werd geschat wanneer de verwijdering door hechting en inactivatie werd berekend met afstand. Het model werd door Schijven et al. [32,35,36] en van der Wielen et al. [43,44] op deze manier toegepast om de beschermingszone rond grondwaterwinningen uit te rekenen die nodig is om onder het infectierisico van 10^{-4} personen per jaar te blijven. Uit deze modelstudie bleek dat de beschermingszone rond anoxische freatische winningen vergroot zou moeten worden naar 1 tot 2 jaar (206 tot 418 meter). Doordat het model de verwijdering van virussen te hoog schat, lijkt het erop dat de beschermingszone langer zou moeten zijn dan de voorspelde lengte van 1 tot 2 jaar. In de modelstudies werden echter andere parameterwaarden voor de inactivatieconstante ($0,0104 \log \text{dag}^{-1}$), botsingsefficiëntie ($1,5 \times 10^{-5}$ bij pH 6,8) en korreldiameter (0,5 mm) gebruikt, dan gevonden in onze studie. Wanneer deze parameterwaarden werden toegepast in het model was de voorspelde verwijdering lager dan gevonden in onze studie (Tabel 10.4). Op een afstand van 37,7 meter was de voorspelde verwijdering 1 logeenheid lager dan de gemeten verwijdering.

10.3.1 Hechting

Voor de verwijdering door hechting werd door het model lager geschat wanneer de parameterwaarden zoals gebruikt door Schijven et al. en van der Wielen et al. werden toegepast. De parameterwaarde die in de modelstudies werden gebruikt voor de botsingsefficiëntie was $1,5 \times 10^{-5}$ bij een pH van 6,8 [32,35,36,43,44]. Omdat de botsingsefficiëntie afhankelijk is van de pH, hebben Schijven en Hassanizadeh [32] aan de hand van kolomexperimenten een empirische relatie tussen de botsingsefficiëntie en de pH afgeleid:

$$\alpha = \alpha_0 0,9^{\left(\frac{\text{pH} - \text{pH}_0}{0,1}\right)}$$

De pH van het grondwater op het Kiwa Water Research-terrein was 7,54. Met een α_0 van $1,5 \times 10^{-5}$ en een pH_0 van 6,8 werd de botsingsefficiëntie waar het model mee rekende $6,9 \times 10^{-6}$. Deze waarde ligt een factor 4 tot 5 lager dan de botsingsefficiëntie voor MS2 gevonden in onze studie ($\sim 3,0 \times 10^{-5}$). Het model dat de verwijdering van virussen tijdens bodemtransport voorspelt is erg gevoelig voor de waarde van de botsingsefficiëntie, waardoor een 4 tot 5 keer lagere botsingsefficiëntie leidt tot een afwijkende lage modeluitkomst. De waarde van $6,9 \times 10^{-6}$ voor de botsingsefficiëntie is ook geen realistische waarde om in het model te gebruiken, aangezien een dergelijk lage botsingsefficiëntie in geen enkele gepubliceerde veldstudie is gevonden. Het is beter om de botsingsefficiëntiewaarde die gevonden is in onze studie ($3,0 \times 10^{-5}$ bij een pH van 7,5) te gebruiken. Die waarde is één van de meest conservatieve botsingsefficiëntiewaarden die gepubliceerd zijn en daarmee het meest realistisch voor een virus dat zich conservatief gedraagt tijdens virustransport in een kwetsbaar watervoerend pakket.

Tabel 10.4 Gemodelleerde verwijdering van virussen met parameterwaarden zoals gebruikt in de modelstudies [32,35,36,43,44] en de gemeten verwijdering van bacteriofaag MS2 in onze studie.

Inactivatie gemodelleerd met afstand						
	Gemodelleerde verwijdering			Gemeten verwijdering		
	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)
37,7	6,2	0,4	3,0	7,2	1,2	2,3
29,9	4,9	0,3	1,9	5,5	0,7	1,6
20,5	3,8	0,2	0,9	4,1	0,3	0,9

Inactivatie gemodelleerd met reistijd						
	Gemodelleerde verwijdering			Gemeten verwijdering		
	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)	Totaal (log N)	Hechting (log N)	Inactivatie (log N)
37,7	3,8	0,4	0,7	7,2	1,2	2,3
29,9	3,7	0,3	0,5	5,5	0,7	1,6
20,5	3,2	0,2	0,3	4,1	0,3	0,9

10.3.2 Inactivatie

Uit de modelvalidatie met de locatiespecifieke waarden gevonden in onze studie, bleek dat de modelvoorspelling beter wordt wanneer de verwijdering door hechting met afstand en verwijdering door inactivatie met reistijd werd berekend. Wanneer de virusverwijdering werd berekend met afstand en reistijd én de conservatieve parameterwaarden voor hechting ($\alpha=6,9 \times 10^{-6}$) en inactivatie ($0,0104 \text{ log dag}^{-1}$), dan schat het model een veel lagere verwijdering (Tabel 10.4). Na 37,7 meter (63 dagen reistijd) voorspelde het model een verwijdering van 3,8 logeenheden, terwijl de gemeten verwijdering van bacteriofaag MS2 7,2 logeenheden was. Dit verschil wordt nog steeds gedeeltelijk verklaard doordat de hechting lager werd geschat, maar daarnaast werd ook de inactivatie door het model lager geschat omdat de inactivatieconstante die in de modelstudies werden gebruikt een stuk lager lag dan de inactivatieconstante gemeten voor MS2 in onze studie. In de modelstudies werd een lage inactivatieconstante gebruikt omdat in een gepubliceerde studie van Dizer et al. [10] lage inactivatieconstante voor humaanpathogene virussen (Poliovirus 1, Coxsackievirus A9, Coxsackievirus B1 en Echovirus 7) werden gevonden. De inactivatieconstante gevonden in de studie van Dizer et al. [10] lagen echter veel lager dan inactivatieconstante gevonden in andere studies [5,18,23,50,51], en daarmee is de betrouwbaarheid van de resultaten uit de studie van Dizer et al. [10] twijfelachtig. De studie van Dizer et al. [10] toonde aan dat de inactivatie van humaanpathogene virussen in twee fasen verliep: een snelle afsterving in het eerste traject en een langzamere afsterving in het tweede traject. De inactivatieconstante over het hele traject varieerde tussen $0,00437$ en $0,0139 \text{ log dag}^{-1}$, maar de inactivatieconstante over de eerste 50 dagen lag tussen de $0,0234$ en $0,0542 \text{ log dag}^{-1}$. De waarden voor de inactivatieconstante over het traject van de eerste 50 dagen liggen in hetzelfde bereik als de inactivatieconstante gevonden voor MS2 in onze studie ($0,0359 \text{ log dag}^{-1}$), waardoor het gebruik van de door ons gevonden inactivatieconstante voor MS2 in het model niet onredelijk lijkt.

Mochten in de toekomst lagere inactivatieconstanten voor humaanpathogene virussen worden gevonden, dan kan worden overwogen om een lagere inactivatieconstante in het model te gebruiken.

In het model dat Schijven et al. [32,35,36] en van der Wielen et al. [43,44] gebruikte, werd de beschermingszone gekoppeld aan een infectierisico van 10^{-4} personen per jaar. Met behulp van een dosisresponsrelatie en het volume dat een persoon per jaar drinkt, werd het infectierisico omgerekend naar een maximale virusconcentratie die nog in het water aanwezig mag zijn. Vervolgens werd met formule (24), het virus-bodemtransportmodel, de afstand in meters uitgerekend. Uit onze modelvalidatie is gebleken dat in een niet-homogeen watervoerend pakket het gebruik van afstand om de verwijdering door inactivatie uit te rekenen onbetrouwbare modelvoorspellingen geeft voor de totale virusverwijdering. Modelvoorspellingen worden betrouwbaarder als de reistijd wordt gebruikt om de verwijdering door inactivatie uit te rekenen. In dat geval wordt formule (24):

$$\log_{10}\left(\frac{C_A}{C_0}\right) = -\frac{1}{2,3}\left(\frac{3}{5}k_1R^{5/3} + \mu_1t\right) + \log_{10}\left(\frac{q}{Q_A}\right) \quad (26)$$

waarbij μ_1 de inactivatieconstante is en t de reistijd. Wanneer de beschermingszone uit de vereiste logverwijdering ($\log(C_A/C_0)$) wordt bepaald met formule (26) dan blijven twee onbekende variabelen over (afstand R en reistijd t), waardoor het niet mogelijk is om de beschermingszone te schatten. We concluderen daarom dat het model dat door Schijven et al. [32,35,36] en van der Wielen et al. [43,44] werd gebruikt om de beschermingszone rond grondwaterwinningen uit te rekenen daarvoor niet geschikt is, tenzij het om grondwaterwinningen met een homogeen watervoerend pakket gaat of om grondwaterwinningen waarin de relatie tussen afstand en reistijd bekend is.

Wanneer de reistijd en afstand van een fecale bron tot pompput bekend zijn, zou het model gebruikt kunnen worden om de logverwijdering van virussen over dat traject uit te rekenen. Doordat de waarden van een aantal gevoelige parameters in het model (botsingefficiëntie, inactivatieconstante, korreldiameter) locatiespecifiek zijn, is het belangrijk om deze waarden voor verschillende lokale condities te weten. De korreldiameter is voor de meeste winningen wel bekend, maar de botsingefficiëntie en de inactivatieconstante zijn dat niet. De waarden voor deze twee parameters kunnen echter worden geschat uit gepubliceerde veldstudies, waarbij een splitsing kan worden gemaakt naar oxische en anoxische condities. Voor freatische oxische grondwaterwinningen kunnen parameterwaarden worden gebruikt die zijn gevonden in het oxische watervoerende pakket van Castricum ($\alpha = 7,8 \times 10^{-4}$; $\mu = 0,147 \log \text{ dag}^{-1}$)[33], terwijl voor freatische anoxische grondwaterwinningen de waarden voor de botsingefficiëntie en inactivatieconstante kunnen worden gehaald uit de veldstudie op het Kiwa Water Research-terrein ($\alpha = 3,0 \times 10^{-5}$; $\mu = 0,0830 \log \text{ dag}^{-1}$). Eventueel kan de

inactivatieconstante van MS2 worden bepaald in het grondwater van een specifiek pompstation, zodat deze waarde niet hoeft te worden geschat in het model. Het bepalen van de inactivatieconstante is relatief eenvoudig en goedkoop.

Een aantal freatische grondwaterwinningen hebben een redoxstatus tussen oxisch en anoxisch in. De waarden voor de botsingsefficiëntie en inactivatieconstante zijn onder deze condities niet bekend en liggen waarschijnlijk tussen de oxische en anoxische waarden in. Onderzoek op een veldlocatie waar suboxische condities aanwezig zijn, is nodig om ook onder die condities de waarden voor de botsingsefficiëntie en inactivatieconstante te bepalen.

11 Conclusies

11.1 Veldstudie

- In een kwetsbaar watervoerend pakket (anoxisch, relatief hoge pH, geen onverzadigde zone) wordt bacteriofaag MS2 met 3,5 logeenheden verwijderd tijdens 62 tot 63 dagen bodempassage, terwijl bacteriofaag ΦX174 met 4,9 logeenheden wordt verwijderd.
- De waargenomen verwijdering van bacteriofaag MS2 in het kwetsbare watervoerende pakket, gebruikt in deze studie, is beduidend lager dan verwijdering die is waargenomen op andere locaties. Het kwetsbare watervoerende pakket op het Kiwa Water Research-terrein is dus een worstcaselocatie voor virusverwijdering.
- De afsterving van bacteriofaag ΦX174 is conservatiever dan van bacteriofaag MS2 in anoxisch grondwater, terwijl de hechting van bacteriofaag MS2 in een anoxisch watervoerend pakket conservatiever is dan de hechting van ΦX174.

11.2 Lengte microbiologische veiligheidszone

- De huidige richtlijn van 60 dagen bodemtransport rond grondwaterwinningen beschermt freatische winningen met een kwetsbaar watervoerend pakket (anoxisch grondwater, korte onverzadigde zone) onvoldoende tegen virussen uit een lekkend riool.
- 176 van de in totaal 204 zandige grondwaterwinningen in Nederland winnen het water in een watervoerend pakket dat niet kwetsbaar is. De huidige 60-dagenzone beschermt deze winningen afdoende tegen doorbraak met virussen
- 11 van de in totaal 204 zandige grondwaterwinningen in Nederland winnen het water in een kwetsbaar watervoerend pakket. Bij deze winningen is 110 dagen reistijd nodig om de winning nu en in de toekomst te beschermen tegen virusdoorbraak. Bij de omrekening van deze 110 dagen naar het aantal meters van de beschermingszone moet echter wel verticaal en horizontaal transport worden meegenomen.
- 17 van de in totaal 204 zandige grondwaterwinningen in Nederland winnen het water in een suboxisch watervoerend pakket. Verwacht wordt dat de virusverwijdering bij deze winningen ligt tussen de gemeten verwijdering in een anoxisch (deze studie) en oxisch watervoerend pakket [33]. Voor deze 17 winningen is de reistijd dus minder dan 110 dagen, maar of ze ook minder dan 60 dagen is, is met de nu bestaande kennis niet te zeggen.

11.3 Virustransportmodel

- Het virustransportmodel voorspelde de verwijdering van bacteriofagen MS2 en Φ X174 tijdens bodemtransport slecht, wanneer de verwijdering door inactivatie met de afstand werd uitgerekend.
- Het virustransportmodel voorspelde de verwijdering van bacteriofaag MS2 tijdens bodemtransport redelijk goed, wanneer de verwijdering door hechting met de afstand en de verwijdering door inactivatie met reistijd wordt uitgerekend. De voorspelde verwijdering van bacteriofaag Φ X174 blijft echter slecht.
- Het model dat is gebruikt door Schijven et al. [32,35,36] en van der Wielen et al. [43,44] om de beschermingszone rond grondwaterwinningen uit te rekenen is daar niet geschikt voor, tenzij de grondwaterwinningen een homogeen watervoerend pakket hebben.
- Het virustransportmodel kan gebruikt worden om de logverwijdering van virussen tussen een fecale bron en de pompput uit te rekenen voor oxische en anoxische grondwaterwinningen.

12 Aanbevelingen

12.1 Lengte beschermingszone

In Nederland zijn er 176 zandige grondwaterwinningen die niet in een kwetsbaar watervoerend pakket liggen. We doen de aanbeveling om bij deze winningen de huidige 60-dagenzone te handhaven.

In Nederland zijn er 11 winningen die gelegen zijn in een kwetsbaar watervoerend pakket (anoxisch grondwater; korte onverzadigde zone). We doen de aanbeveling om voor deze elf winningen de lengte in meters van de 110-dagenzone uit te rekenen, waarbij zowel horizontaal en verticaal transport wordt meegenomen. Wanneer de 110-dagenzone berekend met horizontaal en verticaal transport gelijk is of kleiner dan de huidige 60-dagenzone, dan bevelen we aan om de huidige 60-dagenzone te handhaven. Wanneer de 110-dagenzone berekend met horizontaal en verticaal transport groter is dan de huidige 60-dagenzone dan bevelen we aan om de beschermingszone te vergroten, zodat de kwetsbare winningen nu en in de toekomst beschermd blijven tegen doorbraak van virussen.

17 Nederlandse grondwaterwinningen hebben een watervoerend pakket met een redoxstatus die tussen oxisch en anoxisch in ligt. Tot nu toe zijn er geen veldstudies uitgevoerd naar verwijdering van virussen in een dergelijk watervoerend pakket en bij deze freatische grondwaterwinningen is het niet duidelijk of 60 dagen reistijd voldoende bescherming biedt tegen virusdoorbraak. Daarom wordt aanbevolen om een veldstudie uit te voeren naar virusverwijdering in een watervoerend pakket met suboxisch grondwater, tenzij bij deze 17 winningen de combinatie van verticaal en horizontaal transport van de lengte van de 60-dagenzone tot pompput, 110 dagen of meer is.

12.2 Bronnen en monstername

Rond de elf Nederlandse freatische grondwaterwinningen met een kwetsbaar watervoerend pakket dient een inventarisatie te worden uitgevoerd naar fecale bronnen in de 110-dagenzone. Wanneer blijkt dat er fecale bronnen binnen de 110-dagenzone liggen, dan moet er voor gezorgd worden dat deze bronnen de winmiddelen zo min mogelijk bedreigen. In het geval van riolering moet getracht worden om rioleringen te verleggen. Wanneer dit niet mogelijk is wordt aanbevolen om de integriteit van de rioolbuizen regelmatig te controleren en het aanbrengen van dubbelwandige rioolbuizen zodat de kans op lekkage zo klein mogelijk wordt.

Tevens wordt aanbevolen om groot-volumemonsters van het ruwwater bij de elf kwetsbare freatische grondwaterwinningen op risicovolle momenten te nemen en te onderzoeken op fecale indicatororganismen (*E. coli*, Enterococci, somatische en F-specifieke RNA-fagen) en humaanpathogene virussen.

12.3 Model

Het model dat de beschermingszone uitrekent op basis van een dosisresponsmodel en een virustransportmodel is niet bruikbaar als voorspellend instrument en kan derhalve niet worden toegepast om de beschermingszone rond de Nederlandse grondwaterwinningen uit te rekenen.

Het virustransportmodel kan wel worden toegepast om de virusverwijdering tussen fecale bron en pompput te voorspellen bij oxische en anoxische freatische grondwaterwinningen, mits de afstand en reistijd van fecale bron naar pompput bekend is. De afstand wordt gebruikt om de verwijdering door hechting en reistijd om de verwijdering door inactivatie te berekenen. Voor oxische winningen kunnen parameterwaarden die gevonden zijn bij de veldstudie van Castricum worden gebruikt in het model. Voor anoxische winningen kunnen de parameterwaarden zoals gevonden op het Kiwa Water Research-terrein worden toegepast. Voor suboxische winningen zijn geen parameterwaarden bekend en daarom wordt aanbevolen om de virusverwijdering ook te bestuderen op een veldlocatie waar het watervoerende pakket sub-oxisch grondwater heeft.

13 Referenties

1. **Anonymous.** 1980. Richtlijnen en aanbevelingen voor de bescherming van waterwingebieden. Commissie bescherming waterwingebieden, Rijswijk.
2. **Bales, R. C., C. P. Gerba, G. H. Grondin, and S. L. Jensen.** 1989. Bacteriophage transport in sandy soil and fractured tuff. *Appl. Environ. Microbiol.* **55**:2061-2067.
3. **Bales, R. C., S. R. Hinkle, T. W. Kroeger, K. Stocking, and C. P. Gerba.** 1991. Bacteriophage absorption during transport through porous media: chemical perturbations and reversibility. *Environ. Sci. Technol.* **25**:2088-2095.
4. **Bales, R. C., S. Li, K. M. Maguire, M. T. Yahya, C. P. Gerba, and R. W. Harvey.** 1995. Virus and bacteria transport in a sandy aquifer, Cape Cod, MA. *Ground Water* **33**:653-661.
5. **Blanc, R. and A. Nasser.** 1996. Effect of effluent quality and temperature on the persistence of viruses in soil. *Wat. Sci. Tech.* **33**:237-242.
6. **Blanford, W. J., M. L. Brusseau, T. C. Jim Yeh, C. P. Gerba, and R. Harvey.** 2005. Influence of water chemistry and travel distance on bacteriophage PRD-1 transport in a sandy aquifer. *Water Res.* **39**:2345-2357.
7. **de Roda Husman, A. M., G. J. Medema, P. F. M. Teunis, and J. F. Schijven.** 2004. Inspectierichtlijn analyse microbiologische veiligheid drinkwater. Definitief concept. VROM-inspectie.
8. **DeBorde, D. C., W. W. Woessner, Q. T. Kiley, and P. Ball.** 1999. Rapid transport of viruses in a floodplain aquifer. *Water Res.* **33**:2229-2238.
9. **DeBorde, D. C., W. W. Woessner, B. Lauerma, and P. N. Ball.** 1998. Virus occurrence and transport in a school septic system and unconfined aquifer. *Ground Water* **36**:825-834.
10. **Dizer, H., Z. Filip, J. M. Lopez, G. Milde, A. Nasser, and K. Seidel.** 1985. Laborversuche zur persistenz und zum transportverhalten von viren. Umweltbundesamt Materialien **2/85**:20-26.
12. **Ernst, L. F.** 1950. A new formula for the calculation of the permeability factor with the auger hole method. TNO, Groningen.
13. **Fahmy, M. I.** 1961. The influence of clay particles on the hydraulic conductivity of sandy soils. PhD thesis. Wageningen University.

14. **Fujito, B. T. and C. D. Lytle.** 1996. Elution of viruses by ionic and nonionic surfactants. *Appl. Environ. Microbiol.* **62**:3470-3473.
15. **Gordon, C. and S. Toze.** 2003. Influence of groundwater characteristics on the survival of enteric viruses. *J. Appl. Microbiol.* **95**:536-544.
16. **Harvey, R. W., George L.H., R. L. Smith, and LeBlanc D.R.** 1989. Transport of microspheres and indigenous bacteria through a sandy aquifer: Results of natural- and forced-gradient tracer experiments. *Environ. Sci. Technol.* **23**:51-56.
17. **Jin, Y., M. V. Yates, S. S. Thompson, and W. A. Jury.** 1997. Sorption of viruses during flow through saturated sand columns. *Environ. Sci. Technol.* **31**:548-555.
18. **Keswick, B. H., C. P. Gerba, S. L. Secor, and I. Cech.** 1982. Survival of enteric viruses and indicator bacteria in groundwater. *J. Environ. Sci. Health A* **17**:903-912.
19. **Knorr, M.** 1937. Die Schutzzonenfrage in der Trinkwasserhygiene. *Das Gas- und Wasserfach* **80**:350-355.
20. **Knorr, M.** 1937. Die Schutzzonenfrage in der trinkwasser-hygiene. *Das Gas- und Wasserfach* **80**:330-335.
21. **Lodder, W. J. and A. M. de Roda Husman.** 2005. Presence of Noroviruses and Other Enteric Viruses in Sewage and Surface Waters in The Netherlands. *Appl. Environ. Microbiol.* **71**:1453-1461.
22. **Medema, G. J. and P. J. Stuyfzand.** 2002. Removal of micro-organisms upon basin recharge, deep well injection and river bank filtration in the Netherlands, *In Management of aquifer recharge for sustainability*; Dillon, P. J. (ed); Proceedings of the 4th international symposium on artificial recharge, Adelaide, Australia, Sep 22 - 26 , 2002.
23. **Nasser, A. M. and S. D. Oman.** 1999. Quantitative assessment of the inactivation of pathogenic and indicator viruses in natural water sources. *Water Res.* **33**:1748-1752.
24. **Nasser, A. M., Y. Tchorch, and B. Fattal.** 1993. Comparative survival of E. coli, F+bacteriophages, HAV and Poliovirus 1 in wastewater and groundwater. *Water Sci. Technol.* **27**:401-407.
25. **Nobel, P. J. and D. G. Cirkel.** 2005. Effecten van begrazing Solleveld op de microbiologische waterkwaliteit. Rapportnr: BTO 2005.06. Kiwa Water Research, Nieuwegein.
26. **Pang, L., M. Close, M. Goltz, M. Noonan, and L. Sinton.** 2005. Filtration and transport of Bacillus subtilis spores and the F-RNA

phage MS2 in a coarse alluvial gravel aquifer: Implications in the estimation of setback distances. *J. Contam. Hydrol.* **77**:165-194.

27. **Pieper, A. P., J. N. Ryan, R. W. Harvey, G. L. Amy, T. H. Illangasekare, and D. W. Metge.** 1997. Transport and recovery of bacteriophage PRD1 in a sand and gravel aquifer: effect of sewage-derived organic matter. *Environ. Sci. Technol.* **31**:1163-1170.
28. **Ryan, J. N., M. Elimelech, R. A. Ard, R. W. Harvey, and P. R. Johnson.** 1999. Bacteriophage PRD1 and silica colloid transport and recovery in an iron oxide-coated sand aquifer. *Environ. Sci. Technol.* **33**:63-73.
29. **Ryan, J. N., R. W. Harvey, D. Metge, M. Elimelech, T. Navigato, and A. P. Pieper.** 2002. Field and laboratory investigations of inactivation of viruses (PRD1 and MS2) attached to iron oxide-coated quartz sand. *Environ. Sci. Technol.* **36**:2403-2413.
30. **Schijven, J. F.** 2001. Virus removal from groundwater by soil passage. PhD-thesis, Technical University Delft.
31. **Schijven, J. F. and S. M. Hassanizadeh.** 2000. Removal of viruses by soil passage: overview of modeling, processes and parameters. *Crit. Rev. Environ. Sci. Tech.* **31**:49-125.
32. **Schijven, J. F. and S. M. Hassanizadeh.** 2002. Virus removal by soil passage at field scale and groundwater protection of sandy aquifers. *Water Sci. Technol.* **46**:123-129.
33. **Schijven, J. F., W. Hoogenboezem, S. M. Hassanizadeh, and J. H. Peters.** 1999. Modeling removal of bacteriophage MS2 and PRD1 by dune recharge at Castricum, the Netherlands. *Water Resour. Res.* **35**:1101-1111.
34. **Schijven, J. F., G. J. Medema, A. J. Vogelaar, and S. M. Hassanizadeh.** 2000. Removal of microorganisms by deep well injection. *J. Contam. Hydrol.* **44**:301-327.
35. **Schijven, J. F., J. H. Mulischlegel, S. M. Hassanizadeh, P. F. Teunis, and A. M. de Roda Husman.** 2006. Determination of protection zones for Dutch groundwater wells against virus contamination--uncertainty and sensitivity analysis. *J. Water Health* **4**:297-312.
36. **Schijven, J. F., J. H. C. Mulischlegel, S. M. Hassanizadeh, P. F. M. Teunis, and A. M. de Roda Husman.** 2005. Berekening beschermingszones van Nederlandse grondwaterwinningen voor bescherming tegen virusbesmetting. Onzekerheids- en gevoeligheidsanalyse. Rapportnr: 330000003/2004. RIVM, Bilthoven.
37. **Staatsblad.** 2001. Waterleidingbesluit 2001, *In* Staatsblad nr 31.

38. **Stuyfzand, P. J.** 1993. Hydrochemistry and hydrology of the coastal dune area of the Western Netherlands. PhD -thesis, Vrije Universiteit Amsterdam.
39. **Taylor, R., A. Cronin, S. Pedley, J. Barker, and T. Atkinson.** 2004. The implications of groundwater velocity variations on microbial transport and wellhead protection - review of field evidence. *FEMS Microbiol. Ecol.* **49**:17-26.
40. **Teunis, P. F. M., O. G. Van der Heijden, J. W. B. Van der Giessen, and A. H. Havelaar.** 1996. The dose-response relation in human volunteers for gastro-intestinal pathogens. RIVM, Bilthoven.
41. **Toride, N., F. J. Leij, and M. T. van Genuchten.** 1995. The CXTFIT code for estimating transport parameters from laboratory or field tracer experiments. Version 2.0. US Salinity Laboratory, Agricultural Research Service, US Department of Agriculture, Riverside, California, U.S.
42. **Tufenkji, N. and M. Elimelech.** 2004. Correlation Equation for Predicting Single-Collector Efficiency in Physicochemical Filtration in Saturated Porous Media. *Environ. Sci. Technol.* **38**:529-536.
43. **van der Wielen, P. W., M. Blokker, and G. J. Medema.** 2006. Modelling the length of microbiological protection zones around phreatic sandy aquifers in The Netherlands. *Water Sci. Technol.* **54**:63-69.
44. **van der Wielen, P. W. J. J., M. Blokker, and G. J. Medema.** 2005. Het modelleren van microbiologische beschermingszones rond grondwaterwinningen. Rapportnr: BTO 2005.035. Kiwa Water Research, Nieuwegein.
45. **van der Wielen, P. W. J. J., W. J. M. K. Senden, and G. J. Medema.** 2006. Presumptive classification of the Dutch phreatic sandy groundwater well systems using a microbiological vulnerability index revisited. Rapportnr: BTO 2006.015(s). Kiwa Water Research, Nieuwegein.
46. **Wick, C. H., I. Elashvili, and P. E. McCubbin.** 2004. Analysis of the physical behavior of viruses using the integrated virus detection system (IVDS). Proceedings 24th army science conference. Transformational science and technology for the current and future force.
47. **Woessner, W. W., P. N. Ball, D. C. DeBorde, and T. L. Troy.** 2001. Viral transport in a sand and gravel aquifer under field pumping conditions. *Ground Water* **39**:886-894.

48. **Yahya, M. T., L. Galsomies, C. P. Gerba, and R. C. Bales.** 1993. Survival of bacteriophages MS2 and PRD1 in ground water. *Wat. Sci. Tech.* **27**:409-412.
49. **Yao, K. M., M. T. Habibian, and C. R. O'melia.** 1971. Water and waste water filtration: concepts and applications. *Environ. Sci. Technol.* **5**:1105-1112.
50. **Yates, M. V., C. P. Gerba, and L. M. Kelley.** 1985. Virus persistence in groundwater. *Appl. Environ. Microbiol.* **49**:778-781.
51. **Yates, M., L. D. Stetzenbach, C. P. Gerba, and N. A. Sinclair.** 1990. The effect of indigenous bacteria on virus removal in ground water. *J. Environ. Sci. Health A* **25**:81-100.

I Bijlage: Theoretische berekening van α_L

Differentiaalvergelijking voor convectieve dispersie

De differentiaalvergelijking voor dispersief transport van een merkstof (de *convectie-dispersie-vergelijking*) door een niet uniforme stroombuis in een stationair stromingspatroon luidt:

$$\alpha_L v(s) \frac{\partial^2 c}{\partial s^2} - v(s) \frac{\partial c}{\partial s} = \frac{\partial c}{\partial t} \quad (1)$$

α_L - longitudinale dispersiviteit (m)

v - stroomsnelheid (m dag⁻¹)

c - concentratie van een merkstof (kg m⁻³)

s - afstand gemeten langs de stroombuis (m)

t = tijd (dag)

Dispersiviteit

Er wordt vaak gewerkt met een dispersiecoëfficiënt $D = \alpha_L v$, maar omdat in een kromme of anderszins niet-uniforme stroombuis v een functie is van de plaats, is het in ons geval beter om met α_L te werken. α_L is een eigenschap van het poreuze medium zelf. In de literatuur wordt de dispersiviteit vaak ook als een tensor beschreven, maar er zijn steeds meer aanwijzingen dat de component van de dispersiviteitstensor in de richting van de stroming zodanig overheerst dat voor ons doel vgl (1) bruikbaar geacht kan worden.

Volume-gemiddelde versus flux-gemiddelde concentratie

Er is in de literatuur ook discussie over de vraag wat precies de concentratie voorstelt, die men tijdens een merkstofproef meet. Men onderscheidt men *volume-gemiddelde* concentratie en *flux-gemiddelde* concentratie. Het onderscheid is niet helemaal futiel. Volume-gemiddelde concentratie c_v is wat men zou krijgen als men een grondmonster zou steken en van het daaruit gedraineerde porievocht de concentratie zou meten. Flux-gemiddelde concentratie c_f is wat men zou krijgen als men *in situ* uitstromend grondwater zou verzamelen in bijvoorbeeld een bekerglas. Het grondwater dat in een peilbuis stroomt, gedraagt zich ook ongeveer zo. Stroomlijnen die sneller dan gemiddeld stromen dragen onevenredig veel bij aan de inhoud van het bekerglas of de peilbuis, waardoor de concentratie in het algemeen zal afwijken van de volume-gemiddelde concentratie. Een doorbraakkromme in termen van c_f loopt een beetje achter op een doorbraakkromme in termen van c_v . Het blijkt overigens dat beide soorten concentraties aan de differentiaalvergelijking (1) gehoorzamen.

Als we ervan uitgaan in onze experimenten dat in de doseerput het bromide goed gemengd werd, dan is daar sprake van volume-gemiddelde

concentratie. In de waarnemingsputten, waarin het grondwater toestroomt, hebben we te maken met fluxgemiddelde concentratie. Om met (1) te kunnen werken moeten we dus eigenlijk het “ingangssignaal” (het bromidegehalte in de doseerput) vertalen naar fluxconcentratie. De relatie tussen de twee luidt:

$$c_f = c_v - \frac{\partial c_v}{\partial s} \quad (2)$$

De meetopstelling was echter niet ingericht op het meten van de gradiënt van c_v , en het is ook niet duidelijk hoe dat zou moeten. We kunnen daarom niet veel anders doen dan aannemen dat de tweede term in (2) verwaarloosbaar is ten opzichte van de eerste, zodat we het onderscheid tussen c_f en c_v kunnen negeren. *Van dit punt af spreken we daarom alleen nog over c .*

Impulsrespons

De doorbraakkromme die in een peilbuis gemeten wordt nadat in de doseerput in korte tijd een eenheidshoeveelheid merkstof is toegevoegd, wordt impulsrespons genoemd. Onze tactiek is om (1) eerst op te lossen voor zo’n kortstondige dosering. In werkelijkheid heeft de dosering enige tijd geduurd. De reactie op een willekeurige dosering is echter gemakkelijk te vinden als de impulsrespons bekend is. Daar komen we later op terug.

Momenten

We zoeken een oplossing van (1) in termen van *temporele momenten* van de impulsresponsfunctie. Om een idee te krijgen van wat temporele momenten zijn, moet men zich voorstellen dat een impulsresponsfunctie qua vorm veel weg heeft van een kansdichtheidsfunctie. De eigenschappen van een kansdichtheidsfunctie worden vaak samengevat in een paar kentallen: het gemiddelde μ en de standaardafwijking σ , die gedefinieerd zijn door

$$\begin{aligned} \mu &= \int_0^{\infty} t c(t) dt \\ \sigma^2 &= \int_0^{\infty} t^2 c(t) dt - \mu^2 \end{aligned} \quad (3)$$

Alternatief maakt men wel gebruik van zogenaamde momenten van een kansdichtheidsfunctie:

$$\begin{aligned} M_1 &= \int_0^{\infty} t c(t) dt \\ M_2 &= \int_0^{\infty} t^2 c(t) dt \end{aligned} \quad (4)$$

Zoals te zien is, zijn de uitdrukkingen (3) en (4) nauw aan elkaar verwant. Ze vervatten exact dezelfde informatie in een beetje verschillende verpakking. Er geldt

$$\begin{aligned} M_1 &= \mu \\ M_2 &= \sigma^2 - \mu^2 \end{aligned} \quad (5)$$

Voor onze toepassing zijn momenten het handigst. Omdat ze verkregen zijn door naar t te integreren worden ze temporele momenten genoemd.

Als de kentallen van een kansdichtheidsfunctie bekend zijn, ligt nog niet de hele kansdichtheidsfunctie vast, maar we zullen zien dat kennis van het eerste tot en met het derde moment voldoende is om de dispersiviteit te bepalen.

Convectie-dispersievergelijking in een radiaal stromingspatroon

In ons geval is het stromingspatroon vanaf het doseerpunt beschouwd vrijwel radiaal naar de put toe. Er geldt:

$$s = R - r \quad (6)$$

waarin R de afstand is vanaf het doseerpunt tot de put, terwijl de oorsprong van r in de put ligt. In een homogeen pakket dat door een put met een volkomen filter bepompt wordt zou de stroomsnelheid op afstand r gegeven worden door

$$v(r) = \frac{Q}{2\pi\epsilon D r} \quad (7)$$

waarin Q het debiet van de put is; ϵ is de effectieve porositeit en D is de dikte van het watervoerende pakket. In werkelijkheid is het watervoerende pakket gelaagd opgebouwd. De stroming op de diepte waarop het bromide gedoseerd is zal daardoor wel evenredig zijn aan (7), maar de evenredigheidsconstante is vooralsnog onbekend. We schrijven

$$v(r) = \frac{A}{r} = v(s) = \frac{A}{R - s} \quad (8)$$

zodat

$$\alpha_L \frac{\partial^2 c}{\partial s^2} - \frac{\partial c}{\partial s} = \frac{R - s}{A} \frac{\partial c}{\partial t} \quad (9)$$

Als begintoestand kiezen we

$$c(r, 0) = 0 \quad r \neq R \quad (10)$$

en als randvoorwaarde

$$c(R, t) = \delta(t) \quad (11)$$

Hierin is R de plaats waar het bromide gedoseerd is, en $\delta(t)$ is de delta van Dirac. Deze heeft de eigenschap dat de functiewaarde nul is, behalve als het argument nul is (in dit geval dus als $r = R$ op $t = 0$). Op dat moment is hij oneindig, maar op zo'n manier dat zijn oppervlakte 1 is.

Naar zijn wiskundige aard vereist een unieke oplossing van (9) nog een tweede randvoorwaarde, maar die wordt in dispersieproblemen gewoonlijk in het ongewisse gelaten. Het gaat om een voorwaarde die ergens stroomafwaarts opgelegd moet worden, en doordat de stroomopwaartse flux van merkstofdeeltjes niet veel voorstelt (zo hij al fysisch bestaat) heeft die tweede voorwaarde weinig invloed op de vorm van de merkstofwolk.

Oplossing van de eerste drie momenten; afleiding van een uitdrukking voor de dispersiviteit

Vermenigvuldiging van alle termen van (9) met t en integreren van 0 tot ∞ geeft na uitwerken:

$$\alpha_L \frac{d^2 M_1}{ds^2} - \frac{dM_1}{ds} = -\frac{R-s}{A} \int_0^{\infty} c(t) dt \quad (12)$$

Wegens behoud van massa is de integraal in het rechter lid gelijk aan 1.

De randvoorwaarde is

$$M_1(s=0) = \int_0^{\infty} t \delta(t) dt = 0 \quad (13)$$

Probeer

$$M_1 s^2 + \gamma s + \delta \quad (14)$$

dan blijkt dat

$$M_1 = \frac{1}{2A} s(2R - 2\alpha_L - s) \quad (15)$$

Dit is feitelijk slechts de zogenaamde particuliere oplossing. Er moeten nog twee oplossingen bij opgeteld worden die voldoen aan de homogene versie van (12), maar het is aantoonbaar dat die oplossingen wegvallen. Het blijkt dat - in tegenstelling tot dispersie in een laboratoriumkolom - de dispersiviteit enige invloed heeft op de gemiddelde verplaatsingssnelheid van de merkstofwolk. Het is evenwel veilig om aan te nemen dat

$$\alpha_L \ll R \quad (16)$$

zodat bij zeer goede benadering

$$M_1 = \frac{1}{2A} s(2R - s) \quad (17)$$

of desgewenst, op grond van (5)

$$\mu = \frac{1}{2A} s(2R - s) \quad (18)$$

Aanname (16) is gerechtvaardigd als de spreiding van de merkstof klein is ten opzichte van de afstand R tussen het doseerpunt en de pompput. Fysisch gesproken betekent dit dat de voor dispersie maatgevende inhomogeniteit klein moet zijn ten opzichte van R . Dit is überhaupt een voorwaarde voor het

toepasbaar zijn van de dispersietheorie. Door het verwaarlozen van de invloed van dispersie geeft (18) gewoon de gemiddelde verblijftijd weer die direct op grond van de stroomsnelheid berekend had kunnen worden, zonder tussenkomst van (12).

Dispersie heeft natuurlijk wel invloed op de spreiding, die samenhangt met het tweede moment M_2 . Vermenigvuldigen van de leden van (9) met t^2 en integreren levert de volgende differentiaalvergelijking:

$$\alpha_L \frac{d^2 M_2}{ds^2} - \frac{dM_2}{ds} = \frac{2}{A} (s - R) M_1 \quad (19)$$

met randvoorwaarde

$$M_2(0) = 0 \quad (20)$$

Deze randvoorwaarde stelt dat er nog geen spreiding van de merkstof te zien is ter plaatse van de doseerput. Op overeenkomstige wijze als bij M_1 vinden we met (5):

$$M_2 = \frac{1}{A^2} \left\{ \frac{1}{4} s^4 - R s^3 + R^2 s^2 + 2 \alpha_L R^2 s \right\} \quad (21)$$

waarbij weer gebruik gemaakt is van aanname (16). Desgewenst vinden we met behulp van (5):

$$\sigma^2 = \frac{2}{A^2} \alpha_L R^2 s \quad (22)$$

Eliminatie van de vage onbekende A uit (18) en (22) geeft tenslotte

$$\alpha_L = \frac{\sigma^2 (s^2 + 2Rs)^2}{\mu^2 8R^2 s} \quad (23)$$

μ is de gemiddelde doorbraaktijd van de merkstof in een waarnemingsfilter (d)

σ is de spreiding van de doorbraakromme (d)

R is de afstand van de doseerput tot de pompput (m)

s is de afstand van de doseerput tot de waarnemingsput (m)

Deze uitdrukking is geschikt om de dispersiviteit α_L vast te stellen. De waarden van s en R zijn bekend uit de geometrie van de proefopstelling. De waarden van μ en σ zijn vast te stellen door middel van (bijvoorbeeld) tijdreeksanalyse met het programma Menyanthes.

De meetgegevens

Tijdens de proef op het Kiwa Water Research-terrein is gedurende 4 dagen bromide gedoseerd in een peilput die op 37,7 m van de pompput staat. De

passage van de merkstof is gemeten in twee peilbuizen die op resp. 29,9 en 20,5 m van de put staan. De aankomst in de put is ook gemeten.

Analyse van de meetgegevens met Menyanthes

Het programma Menyanthes is gebaseerd op de veronderstelling dat respons van een verschijnsel op een eenheidsstress (een "impuls") goed gemodelleerd kan worden met de kansdichtheidsfunctie van Pearson, type III. Zo'n respons wordt ook wel impulsresponsfunctie genoemd. Als de impulsrespons eenmaal bekend is, kan de reactie op een willekeurig signaal gevonden worden door een wiskundige bewerking die convolutie genoemd wordt. Hoewel Pearson III niet exact voldoet aan de differentiaalvergelijking voor dispersie van een merkstof, is aannemelijk gemaakt dat deze functie toch goed bruikbaar is voor het modelleren van dispersie. We zullen daarom Menyanthes gebruiken om de dispersieproef te analyseren.

De verdeling van Pearson, type III, wordt gegeven door:

$$P_{III}(t) = \frac{a^n (t-b)^{n-1}}{\Gamma(n)} e^{-a(t-b)} \quad (t \geq b) \quad (24)$$

a en b zijn vormparameters, terwijl b een tijdverschuiving geeft. Deze functie representeert een hele familie van krommen, waarvan de leden qua vorm variëren van zeer scheef tot de normale verdeling. Het verband tussen een willekeurig ingangssignaal en het daarbij behorende uitgangssignaal wordt door Menyanthes berekend volgens:

$$c_{uit}(t) = \int_0^{\infty} P_{III}(\tau) c_{in}(t-\tau) d\tau \quad (25)$$

Het matchen van de signalen gebeurt door de parameters a , b en n zo te variëren dat de berekende concentratie $c_{uit}(t)$ volgens een bepaald criterium zo goed mogelijk correspondeert met het gemeten uitgangssignaal. Als a , b en n bekend zijn, kunnen het gemiddelde en de variantie van de impulsresponsfunctie berekend worden met:

$$\begin{aligned} \mu &= \frac{n}{a} + b \\ \sigma^2 &= \frac{n}{a^2} \end{aligned} \quad (26)$$

Op dit moment is in Menyanthes de tijdverschuivingsparameter b nul gesteld, omdat hij bij de analyse van grondwaterstandsreeksen niet onafhankelijk uit meetgegevens valt te bepalen.

In de vorige paragraaf hebben we theoretische uitdrukkingen afgeleid voor μ en σ^2 in het geval van dispersie van een merkstof in een radiaal convergerend

stromingsveld, zie (18) en (22). Als de waarden van μ en σ^2 bekend zijn kan de dispersiviteit α_L berekend worden met (23).

Door de doorbraakcurven te fitten met Menyanthes worden de volgende parameterwaarden gevonden:

$$\begin{aligned} WP1: & a = 0,773 \pm 0,064 \quad n = 18,6 \pm 1,5 \\ WP2: & a = 0,61 \pm 0,07 \quad n = 28,7 \pm 3,1 \\ WP2b: & a = 0,194 \pm 0,028 \quad n = 5,10 \pm 0,59 \end{aligned}$$

Interpretatie van de uitkomsten

De gevonden waarden voor a en n leiden via (26) (met $b = 0$) tot

$$\begin{aligned} WP1: & \mu = 24,1d \quad \sigma = 5,5d \\ WP2: & \mu = 46,8d \quad \sigma = 8,7d \\ WP2b: & \mu = 26,3d \quad \sigma = 11,6d \end{aligned}$$

Dit leidt ten slotte tot de volgende waarden voor de dispersiviteit (Tabel 7.1).