



Energy research Centre of the Netherlands

# **Geochemische modellering van het uitlooggedrag van afvalmengsels**

**A. van Zomeren**

**P.A. Bonouvrie**

**H.A. van der Sloot**

## Verantwoording

Dit project is uitgevoerd in opdracht van N.V. Afvalzorg onder projectnummer 7.2725.

## Abstract

This report describes leaching tests with a mixture of waste materials and the subsequent geochemical modeling to explain the observed leaching behavior. Results indicate that the leaching behavior of a mixture of waste materials can be adequately described based on key parameters from the individual waste materials.

# Inhoud

|  |  |
|--|--|
| Lijst van tabellen   | 4  |
| Lijst van figuren  | <b>Fout! Bladwijzer niet gedefinieerd.</b> |
| Samenvatting   | 5  |
| 1. Inleiding   | 7  |
| 2. Materialen en methode   | 8  |
| 2.1 Beschrijving monsters  | 8  |
| 2.2 Uitlooggedrag als functie van pH   | 8  |
| 2.3 Kolomproeven   | 9  |
| 2.4 Bepaling maximale uitloging van materialen (beschikbaarheid)   | 9  |
| 2.5 Extracties van Fe- en Al-(hydr-)oxiden   | 9  |
| 2.6 Bepaling reactieve fracties van (opgeloste) organische stof  | 10   |
| 2.7 Geochemische modellering voor bepaling oplosbaarheidscontroleerende processen  | 10   |
| 2.8 Modelscenario's  | 11   |
| 3. Resultaten en discussie   | 13   |
| 3.1 Beschikbaarheid voor uitloging als input voor modellering  | 13   |
| 3.2 Modelparameters voor adsorptiemodellen   | 15   |
| 3.3 Identificatie mogelijke oplosbaarheidscontroleerende mineralen   | 16   |
| 3.4 Geochemische modellering van het uitlooggedrag van verontreinigingen in het lysimetermengsel   | 16   |
| 3.5 Geochemische modellering van het uitlooggedrag van verontreinigingen in het lysimetermengsel waaraan 20% AVI-bodemass is toegevoegd    | 17   |
| 4. Conclusies  | 19   |
| Referenties  | 20   |
| Bijlage A pH afhankelijke uitloging lysimeter afval mengsel en geochemische modellering van de uitloging (scenario 1)                      | 22   |
| Bijlage B pH afhankelijke uitloging lysimeter afval mengsel en geochemische modellering van de uitloging (Scenario 2)                      | 31   |
| Bijlage C pH afhankelijke uitloging lysimeter afval mengsel met 20% AVI-bodemass en geochemische modellering van de uitloging (Scenario 3) | 40   |

## Lijst van tabellen

|           |   |    |
|-----------|---|----|
| Tabel 2.1 | <i>Monsternamen en LeachXS identificatie. Alle monsters, behalve het lysimetermengsel +20% AVI-bodemas en het AVI-bodemas monster zijn al eerder gekarakteriseerd in duurzaam storten kader (van Zomeren and van der Sloot, 2006).</i> .....  | 8  |
| Tabel 3.1 | <i>Gemeten beschikbaarheid van verontreinigingen in het lysimetermengsel, het AVI-bodemas monster en het lysimetermengsel+20%AVI-bodemas op basis van <b>0.43 M HNO<sub>3</sub> extracties</b>. In de laatste kolom staat de rekenkundige maximale uitlozing die berekend is aan de hand van de afzonderlijke deelmonsters in de verhouding 80%/20%</i> ..... | 13 |
| Tabel 3.2 | <i>Vergelijking van de beschikbaarheid van verontreinigingen op basis van verschillende methoden.</i> .....   | 14 |
| Tabel 3.3 | <i>Parameters organische stof en reactief Fe/Al</i> .....   | 15 |
| Tabel 3.4 | <i>Selectie van gekozen mogelijk oplosbaarheidcontroleerende mineralen in geochemische modellering van het uitlooggedrag van de afvalstoffenmengsels....</i>  | 16 |

## Samenvatting

Binnen het project duurzaam storten is het van belang om het gedrag van een mengsel van afvalstoffen modelmatig te kunnen beschrijven. De voorspellingen van het uitlooggedrag geven veel inzicht in de chemische processen die de uitloging van verontreinigingen controleren. Eerder onderzoek heeft al uitgewezen dat de gehanteerde modelbenadering een adequate beschrijving van de uitloging onder veranderende omstandigheden (pH) oplevert. In dit project is de vraagstelling of we op basis van informatie over individuele reststoffen in staat zijn om het gedrag van een afvalstoffen mengsel te kunnen beschrijven.

De resultaten laten zien dat binnen een bepaalde range het effect van de keuze voor de beschikbaarheid van verontreinigingen (op basis van het lysimetermengsel of op basis van de sommatie vanuit individuele afvalstoffen) op de voorspelde uitloging beperkt lijkt te zijn voor veel elementen. Dit betekent dat beide methoden in principe gebruikt kunnen worden als input voor het model om de uitloging van het afvalstoffenmengsel te voorspellen. Uit de deelstromen kan middels het zuurneutraliserend vermogen de eind pH van het mengsel goed benaderd worden, hetgeen van belang zal zijn in geval de eind pH van de stortcel binnen bepaalde grenswaarden dient te blijven.

Op basis van beschreven modelleringresultaten wordt geconcludeerd dat het met de huidige geochemische rekenmodellen goed mogelijk is om de uitloging van een scala aan elementen uit het lysimetermengsel te voorspellen onder veranderende omstandigheden (pH veranderingen) en op basis van gegevens van individuele afvalstoffen. Bovendien kan voor de beschikbaarheid worden gekozen om de maximale uitloging uit de pH-stat proef te nemen of om de gemeten beschikbaarheid (met een 0.43 M HNO<sub>3</sub> extractie) te gebruiken.

Het uitlooggedrag van het lysimetermengsel verandert door toevoeging van 20% AVI-bodemas minder dan vooraf werd ingeschat. De modellering laat voor veel elementen een consistent beeld zien dat ook naar voren komt uit de uitloogproeven. Deze resultaten geven aan dat het relatief veel moeite kost om een afvalmengsel door toevoegingen zodanig uit evenwicht te brengen dat de chemische processen die de uitloging controleren significant veranderen. De buffercapaciteit van de sorberende fasen is kennelijk voldoende om veranderingen op te vangen. Het is echter op basis van de resultaten niet kwantitatief vast te stellen waar de grenzen voor significante afwijkingen in het uitlooggedrag liggen. Op basis van modelering kan worden nagegaan bij welke toevoeging de buffercapaciteit overschreden zal worden. Dit gegeven is belangrijk bij de verdere ontwikkeling van recepturen voor duurzaam storten. Hierbij dient wel te worden opgemerkt dat een significante verhoging van het DOC gehalte (in de vorm van opgeloste humus- en fulvozuren) zeker een negatief effect zal hebben op de kwaliteit van het percolaatwater.



## 1. Inleiding

Binnen het project duurzaam storten is het van belang om het gedrag van een mengsel van afvalstoffen modelmatig te kunnen beschrijven. De voorspellingen van het uitlooggedrag geven veel inzicht in de chemische processen die de uitloging van verontreinigingen controleren. Eerder onderzoek heeft al uitgewezen dat de gehanteerde modelbenadering een adequate beschrijving van de uitloging onder veranderende omstandigheden (pH) oplevert. In dit project is de vraagstelling of we op basis van informatie over individuele reststoffen in staat zijn om het gedrag van een afvalstoffen mengsel te kunnen beschrijven.

Het doel van dit onderzoek is:

- Nagaan in hoeverre het mogelijk is om het uitlooggedrag van een mengsel van afvalstoffen te beschrijven op basis van een gelimiteerde set aan monsterkarakteristieken van het afvalmengsel (beschikbaarheid, mogelijk oplosbaarheid-controlerende mineralen, hoeveelheid reactief Fe/Al-(hydr-)oxiden en hoeveelheid reactief organische stof -humus- en fulvozuur-).
- Nagaan in hoeverre het mogelijk is om het uitlooggedrag van een afvalstoffen mengsel te beschrijven op basis van genoemde karakteristieken die bepaald zijn voor de individuele afvalstoffen.
- Nagaan of de eind pH van het afvalstoffenmengsel afgeleid kan worden uit de ANC/BNC van deelstromen en of het uit het afvalstoffenmengsel voorspelde ANC gedrag strookt met de gemeten ANC van het mengsel

Het eerste doel vormt de wetenschappelijke basis voor geochemische modellering van uitloogprocessen in een complex mengsel van afvalstoffen. In principe kan deze kennis ook toegepast worden om in de praktijk te sturen op een duurzaam afvalmengsel. Het is echter voor de stortplaats exploitanten nog niet erg praktisch om op deze manier te werken. De duurzaam storten principes gaan o.a. uit van quota management van verontreinigingen en sturing op adsorptieprocessen aan bijvoorbeeld Fe/Al-oxiden en vaste organische stof om een duurzame stortplaats in te richten. Wanneer het gedrag van het volledige mengsel van afvalstoffen gekarakteriseerd en gemodelleerd zou moeten worden, blijkt pas achteraf of de stortplaats als duurzaam kan worden beschouwd met betrekking tot het uitlooggedrag. Bovendien kan de duurzaamheid minder optimaal gestuurd worden tijdens de operationele fase.

Het tweede doel vormt een eerste stap richting de praktische invulling van de duurzaam storten principes om een duurzame stortplaats in te richten. Wanneer het mogelijk is om op basis van een gelimiteerde set eigenschappen van individuele afvalstoffen goede uitspraken te doen over het uitlooggedrag van het volledige stortcompartiment, kan gedurende de operationele fase van een stortplaats gestuurd worden op een duurzaam afvalmengsel.

Het derde doel is van belang om het gewenste pH bereik van het afvalstoffenmengsel in een cel te kunnen beheersen om daarmee een lagere uitloging te kunnen realiseren

Om deze doelstellingen te bereiken zijn verschillende uitloog- en karakteriseringsproeven uitgevoerd op het lysimetermengsel en op de belangrijkste individuele afvalstoffen waaruit het mengsel is samengesteld. Daarnaast zijn nog proeven uitgevoerd waarbij geprobeerd is om het uitlooggedrag van het lysimetermengsel significant te veranderen door de toevoeging van 20% AVI-bodemas. Vervolgens is het uitlooggedrag van dit mengsel ook voorspeld met behulp van geochemische modellering. Het is vanzelfsprekend zeer krachtig wanneer eventuele veranderingen van chemische processen die de uitloging van een afvalmengsel controleren goed voorspeld kunnen worden.

## 2. Materialen en methode

### 2.1 Beschrijving monsters

In dit onderzoek zijn verschillende afvalmonsters gebruikt die (deels) al eerder gekarakteriseerd zijn in het duurzaam storten project (van Zomeren and van der Sloot, 2006). De monsternamen en de referentie naar de LeachXS identificatie zijn weergegeven in Tabel 2.1. Het AVI-bodemas monster is afkomstig van een Nederlandse AVI en is in 2005 bemonsterd. Het monster is gedroogd bij 40 °C, uitgezeefd (<4mm) en in een afgesloten vat bewaard tot analyse. De individuele afvalstofnummers en de percentages in de pilotproef zijn in detail beschreven in (van Zomeren and van der Sloot, 2006). Tabel 2.1 laat tevens het percentage van individuele afvalstoffen in het lysimetermengsel (lysimeter 1) zien.

Tabel 2.1 *Monsternamen en LeachXS identificatie. Alle monsters, behalve het lysimetermengsel +20% AVI-bodemas en het AVI-bodemas monster zijn al eerder gekarakteriseerd in duurzaam storten kader (van Zomeren and van der Sloot, 2006)*

| monster                     | Database naam                   | Batch Measurement |        | Samenstelling lysimeter mengsel (%) |
|-----------------------------|---------------------------------|-------------------|--------|-------------------------------------|
|                             |                                 | number            | number |                                     |
| Lysimeter 1                 | Lysimeter PIW                   | 1                 | 3      | -                                   |
| Lysimeter 2                 | Lysimeter PIW+organic waste     | 1                 | 3      | -                                   |
| Bouw en sloop afval         | C&D waste DS NL                 | 1                 | 2      | 15.4                                |
| Boorgruis                   | Drilling mud DS NL              | 1                 | 2      | 5.6                                 |
| HWZ Slib                    | HWZ sludge DS NL                | 1                 | 2      | 14.1                                |
| Pouw slib                   | Soil remediation sludge 2 DS NL | 1                 | 2      | 32.2                                |
| Slib GRC                    | Soil remediation sludge 1 DS NL | 1                 | 2      | 32.7                                |
| Lysimeter + 20% AVI-bodemas | Lysimeter_PIW_Bottom_ash_NL     | 1                 | 1      | -                                   |
| AVI-bodemas                 | Bottom_ash_***_fresh            | 1                 | 1      | -                                   |

### 2.2 Uitloggedrag als functie van pH

De zuurgraad (pH) is de belangrijkste factor in de uitloging van verreweg de meeste hoofd- en spoorelementen. Om de pH nauwkeurig te kunnen sturen is gebruik gemaakt van een geautomatiseerd pH-stat systeem dat in meerdere reactievaten tegelijkertijd de pH meet en bijregelt tot een vooraf ingesteld “setpoint”; voor dit onderzoek 8 waarden tussen ca. pH 2 en 12. Door uit te logen over deze brede pH range, waarbinnen concentraties als functie van pH grote verschillen vertonen, wordt als het ware een geochemische “vingerafdruk” verkregen van de processen die de uitloging bepalen, zoals oplossing/precipitatie van mineralen/zouten, complexatieprocessen in de uitloogoplossing en sorptieprocessen in de bodemas matrix. Door de gemeten concentraties in de uitloogoplossingen als functie van pH te vergelijken met voorspellingen op basis van geochemische modellering wordt getracht individuele bindings/uitloogprocessen te identificeren. De pH-stat proeven zijn uitgevoerd op de twee lysimeter mengsels (1 en 2), het AVI-bodemas monster en op het lysimetermengsel +20% AVI-bodemas.

De monsters zijn gedurende 48 uur batch-gewijs uitgelooft in gedemineraliseerd water bij een vloeistof/vaste stof verhouding van 10 L/kg, in Teflon reactievaten van ca. 300 ml, omhuld met een dubbelwandige glazen mantel waardoor gethermostatiseerd water (20 °C) werd gepompt. De suspensies zijn continu geroerd op magneet roerders m.b.v. een Teflon-gecoate roermagneet. Voor de pH-regeling is 0.1-1 M HNO<sub>3</sub> en 0.1-1 M NaOH gebruikt.



Na 48 uur zijn de suspensies gefiltreerd over 0.45 µm membraanfilters, waarna de uitloeg-oplossing is geanalyseerd op de hoofd- en spoorelementen Al, As, B, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Li, Mg, Mn, Mo, Na, Ni, P, Pb, S, Sb, Se, Si, Sn, Sr, Ti, V, W, Zn (axiaal plasma ICP-AES), Cl<sup>-</sup> en SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> (ionchromatografie), en DOC en DIC (“Dissolved Organic Carbon”/“Dissolved Inorganic Carbon”; Shimadzu 5000 Carbon Analyser).

## 2.3 Kolomproeven

Het lysimetermengsel en het lysimetermengsel met 20% AVI-bodemas zijn uitgeloogd met een kolomproef volgens NEN 7373. Hierbij wordt een kolom (5 cm diameter en 20 cm hoogte) met monster gevuld en wordt gedemineraliseerd water gepercoleerd. De eluaten worden in verschillende fracties opgevangen tot een cumulatieve L/S van 10 bereikt is. De eluaten worden zo snel mogelijk gefiltreerd en geconserveerd voor analyse (zie paragraaf 2.2 voor de analyse parameters).

## 2.4 Bepaling maximale uitloging van materialen (beschikbaarheid)

De maximaal beschikbare concentratie voor uitloging (beschikbaarheid) is een belangrijke input parameter in het geochemisch rekenmodel (zie paragraaf 2.7). Het geochemisch model neemt de beschikbare concentratie van een element en berekend vervolgens het geochemisch evenwicht onder de opgelegde omstandigheden. Hierdoor wordt het betreffende element verdeeld over verschillende verbindingen en worden de hoeveelheden berekend die geadsorbeerd zijn aan de reactieve oppervlakken (zie paragraaf 2.5 en 2.6). Om de maximale concentratie te bepalen die beschikbaar is voor uitloging van elementen (beschikbaarheid) zijn in deze studie twee benaderingen gevolgd. In de eerste benadering wordt de beschikbaarheid van het afvalmengsel bepaald door de maximaal uitgelooide waarde in de pH-stat te kiezen (tussen pH 2 en 12). Er zijn ook extracties met 0.43 M HNO<sub>3</sub> uitgevoerd om de beschikbaarheid te bepalen. De motivatie voor de methode keuze van de beschikbaarheid wordt verder uitgelegd in paragraaf 2.8.

De bepaling van de beschikbaarheid met een 0.43 M HNO<sub>3</sub> extractie (pH=0.5) gaat als volgt. Het monster (<4 mm) is geextraheerd bij een L/S ratio van 10 door 15 g monster in te wegen (vochtgehalte apart bepaald om te corrigeren voor droge stof basis) in een PE-fles (200 mL). Vervolgens is 150 mL 0.43M HNO<sub>3</sub> toegevoegd en is de suspensie 48 uur geequibreerd op een rollerbank. Na 48 uur is de suspensie gefiltreerd (0.45 µm) en is het filtraat geanalyseerd met ICP-AES (alle elementen).

Er wordt opgemerkt dat de beschikbaarheid (0.43M HNO<sub>3</sub> extractie) onderdeel kan zijn van de pH-stat uitloogtest. Wanneer een van de pH waarden bij de pH-stat test op pH 0.5 wordt gekozen dan kan dit meetpunt direct als de beschikbaarheid voor uitloging dienen bij de latere modellering.

## 2.5 Extracties van Fe- en Al-(hydr-)oxiden

Voor de geochemische modellering van adsorptie processen in de afvalstoffen matrix zijn onder meer gegevens nodig omtrent de aanwezige hoeveelheid Fe- en Al-(hydr)oxide en organische stof (de belangrijkste reactieve oppervlakken). Deze zijn d.m.v. specifieke extractieprocedures bepaald. Voor de bepaling van (amorfe) Fe- en Al-(hydr)oxide zijn respectievelijk een ascorbinezuur en een oxalaat extractie gebruikt. Hoewel doorgaans amorfe Fe- en Al-hydroxiden door hun grote specifieke oppervlak het meest reactief zijn, is ook het gehalte aan kristallijn Fe bepaald, op basis van een dithioniet extractie. Voor de verantwoording en verdere details van deze procedures wordt verwezen naar (Dijkstra et al., 2004 en referenties hierin; Meima and Comans, 1998). De extracties zijn uitgevoerd op alle monsters.

## 2.6 Bepaling reactieve fracties van (opgeloste) organische stof

Het is inmiddels algemeen geaccepteerd dat de verhoogde uitloging van koper (en andere zware metalen) uit verschillende reststoffen wordt veroorzaakt door de aanwezigheid van opgeloste organische stof in de uitloogoplossingen (Dijkstra et al., 2004; Dijkstra et al., 2006c; Meima et al., 1999; Milne et al., 2003; Stevenson, 1982; van der Sloot et al., 2003b; van Zomeren and van der Sloot, 2006). Vooral de de humus- en fulvozuur fractie van de opgeloste organische stof (DOC) is verantwoordelijk voor de verhoogde uitloging van verontreinigingen. De hydrofiele zuren, die veelal het grootste aandeel vormen van de DOC, spelen een ondergeschikte rol in de verhoogde uitloging van verontreinigingen.

Bij ECN is recent een snelle batch procedure ontwikkeld (van Zomeren and Comans, 2006) om het gehalte humus- en fulvozuur alsmede de meer hydrofiele rest fractie van organisch koolstof te bepalen. Deze procedure is afgeleid van de procedure van de International Humic Substances Society (IHSS) om humus- en fulvozuur uit bodem (Swift, 1996) en water (Thurman and Malcolm, 1981) te extraheren en te zuiveren en is gebaseerd op het oplosgedrag van humuszuur (vlokt uit bij  $\text{pH} < 1$ ) en de adsorptie van fulvozuren aan een polymere hars (DAX-8). Voor de bepaling van reactief organisch koolstof in de afvalstoffen is vooraf een sequentiële extractie gebruikt van 0.1 M HCl gevolgd door 0.1 M NaOH, conform de voorgeschreven procedure van de International Humic Substances Society (IHSS, zie (Swift, 1996)). In de HCl en NaOH oplossingen zijn vervolgens met de bovengenoemde procedure de hoeveelheden humuszuur, fulvozuur en hydrofiele zuren bepaald.

## 2.7 Geochemische modellering voor bepaling oplosbaarheidscontrole-rende processen

De belangrijkste geochemische processen, die de vastlegging en uitloging van zware metalen en oxyanionen in bodem- en reststoffenmilieus controleren, zijn als volgt samen te vatten:

1. Oplosbaarheidscontrole (het oplossen/neerslaan van mineralen, bijvoorbeeld calciet ( $\text{CaCO}_3$ ) of zinkiet ( $\text{ZnO}$ )).
2. Adsorptie aan opgeloste en vaste organische stof (DOC);
3. Adsorptie aan ijzer- en aluminium(hydr)oxide oppervlakken.
4. Adsorptie aan kleideeltjes

De bovengenoemde processen zijn opgenomen in het geochemische rekenmodel ORCHESTRA (Meeussen, 2003). ORCHESTRA (Objects Representing CHEmical Speciation and TRANsport models) is een modelomgeving waarin chemische speciatie modellen kunnen worden geïmplementeerd en kunnen worden gecombineerd met elkaar en met kinetische en/of transportprocessen. De aansturing van ORCHESTRA en het verzorgen van de inputgegevens vanuit de uitloogdatabase is gedaan met het database/expert systeem LeachXS (van der Sloot et al., 2003a). De voor dit werk belangrijke (sub)modellen worden hieronder kort toegelicht aan de hand van de bovengenoemde drie typen processen. Voor een uitgebreide verantwoording en beschrijving van de aanpak wordt verwezen naar (Dijkstra et al., 2006a). Deze modelaanpak is nieuw in de zin dat de uitgeloopte concentraties van zowel hoofd- als sporenelementen over een breed pH traject voorspeld worden op basis van informatie over de maximaal uitloogbare concentraties (beschikbaarheid), een set van mogelijk oplosbaarheidscontrole-rende mineralen en hoeveelheden reactief oppervlak (Fe/Al-(hydr)-oxiden en humus- en fulvozuur).

1. Voor het oplossen en neerslaan van mineralen wordt in ORCHESTRA gebruik gemaakt van de zeer uitgebreide MINTEQA2 thermodynamische database (Allison et al., 1991). De werkwijze is dat met een eerste modelrun wordt nagegaan welke mineralen mogelijk de oplosbaarheid van een element mogelijk kunnen controleren. De benodigde modelinput hiervoor bestaat uit de gemeten concentraties van vrijwel alle (ongeveer 25) gemeten componenten, alsmede de pH van de uitloogoplossingen. Nadat de speciatie van de elementen is uitgere-

kend, wordt nagegaan of de oplossing in evenwicht lijkt met een oplossend mineraal (“verzadigingsindex”). Vervolgens kan in een volgende berekening een voorspelling worden gedaan van de concentratie van een component die ontstaat als gevolg van het oplossen/neerslaan van een (mogelijk) aanwezig mineraal.

2. De aanwezigheid van vaste en (met name) opgeloste organische stof (DOC) heeft een zeer grote invloed op het uitlooggedrag. Organische stof heeft een zeer grote bindingscapaciteit voor zware metalen, waardoor zelfs zeer lage concentraties van organische stof in oplossing kunnen zorgen voor een concentratietoename van het metaal van enkele orden van grootte. Specifieke en non-specifieke binding van protonen en metaalkationen aan organische stof is gemodelleerd met het NICA-Donnan model (Kinniburgh et al., 1999) gebruik makend van de set van “generic” parameters van Milne voor protonbinding (Milne et al., 2001) en metaalbinding (Milne et al., 2003). De hoeveelheid reactieve organische stof in de monsters is bepaald met de in paragraaf 2.6) genoemde procedure.
3. Het Generalized two-layer model (Dzombak and Morel, 1990) wordt gebruikt voor specifieke binding van metalen en oxyanionen aan amorfe Fe- (hydr)oxiden (“Hydrous Ferric Oxide”, HFO), gebruik makend van de door Dzombak en Morel aanbevolen adsorptieparameters (Dzombak and Morel, 1990). De hoeveelheid HFO in de monsters wordt bepaald met selectieve chemische extracties zoals beschreven in paragraaf 2.5. Vanwege het ontbreken van een systematische database voor adsorptie aan Al-(hydr)oxiden kan HFO als “surrogaat” oppervlak worden aangenomen voor Al-(hydr)oxiden, waarbij oxalaat-extraheerbaar Al als input is gebruikt. Deze benadering is verder uitgelegd en gemotiveerd in (Meima and Comans, 1998). Voor kristallijne Fe-(hydr)oxiden wordt het Generalized two-layer model gebruikt met de standaard adsorptieparameters, echter het specifiek oppervlak is naar beneden aangepast (100 m<sup>2</sup>/g in plaats van 600 m<sup>2</sup>/g voor HFO). Bij extreem hoge beladingen van de reactieve oppervlakken (verhouding tussen de uitloogbare hoeveelheden van de adsorberende metalen/oxyanionen en de hoeveelheid reactieve Fe/Al-hydroxiden in de monsters) kunnen de geadsorbeerde metalen een precipitaat gaan vormen op het oxideoppervlak (voor meer detail zie (Dzombak and Morel, 1990)). Dit proces wordt in de literatuur aangeduid met “surface precipitation”. Dzombak en Morel (Dzombak and Morel, 1990) geven een methodiek waarmee met surface precipitatie kan worden gerekend. Dit model is eerder succesvol toegepast bij het modelleren van de uitloging van o.a. zink uit verouderde AVI-bodemassen (Dijkstra et al., 2002; Meima and Comans, 1998).
4. De adsorptie van verontreinigingen aan kleideeltjes wordt berekend met een zogenaamd Donnan model. In dit model wordt de adsorptie van verontreinigingen berekend op basis van de electrostatische eigenschappen van de verontreinigingen en de kleideeltjes.

## 2.8 Modelscenario's

In dit project zijn 3 verschillende modelscenarios berekend, de basis van deze scenario's zijn:

### 1. Klassiek scenario

Voorspelling uitlooggedrag lysimetermengsel op basis van de gegevens van het **lysimetermengsel**. Bij deze berekening wordt de *gemeten uitloging (met een 0.43 M HNO<sub>3</sub> extractie)* aangenomen voor de beschikbaarheid van verontreinigingen. Daarnaast worden de apart gemeten reactieve oppervlakken (HFO, HA en klei) in het model meegenomen.

### 2. Duurzaam storten scenario

Voorspelling uitlooggedrag lysimetermengsel op basis van de gegevens van de **individuele afvalstromen**. Bij deze berekening wordt bij de input van het model rekening gehouden met de gewogen percentages van de individuele afvalstromen (Tabel 2.1) waaruit het lysimetermengsel is opgebouwd. De beschikbaarheid van het lysimetermengsel wordt dus berekend op basis van de procentuele bijdrage van elk van de beschikbaarheden zoals gemeten in de individuele afval-

stoffen (gemeten met een  $0.43\text{ M HNO}_3$  extractie). De reactieve oppervlakken (HFO en klei) worden ook berekend op basis van de procentuele bijdrage van elk van de individuele afvalstoffen in het lysimetermengsel. In deze berekeningen wordt dezelfde bijdrage aan organische stof (HA) gebruikt als in scenario 1.

### **3. Duurzaam storten scenario + bodemas**

Voorspelling uitlooggedrag lysimetermengsel waaraan 20% AVI-bodemas is toegevoegd op basis van de gegevens van individuele afvalstromen. Bij deze berekening wordt bij de input van het model rekening gehouden met de gewogen percentages van de individuele afvalstromen (Tabel 2.1, inclusief AVI-bodemas) waaruit het lysimetermengsel is opgebouwd. De beschikbaarheid van het resulterende mengsel wordt dus berekend op basis van de procentuele bijdrage van elk van de beschikbaarheden zoals gemeten in de individuele afvalstoffen (gemeten met een  $0.43\text{ M HNO}_3$  extractie). De reactieve oppervlakken (HFO, HA en klei) worden ook berekend op basis van de procentuele bijdrage van elk van de individuele afvalstoffen in het lysimetermengsel.

### 3. Resultaten en discussie

#### 3.1 Beschikbaarheid voor uitloging als input voor modellering

De beschikbaarheden voor uitloging die als input in de modelleringen zijn gebruikt, staan weergegeven in Tabel 3.1 en Tabel 3.2. De beschikbaarheid van Mo is laag in zuur milieu. Om deze reden is voor Mo de hoogst waargenomen uitloging genomen die in de pH-stat vastgesteld is. Voor de overige elementen is de beschikbaarheid gebruikt die met de 0.43 M HNO<sub>3</sub> extractie is gemeten.

Tabel 3.1 *Gemeten beschikbaarheid van verontreinigingen in het lysimetermengsel, het AVI-bodemas monster en het lysimetermengsel+20%AVI-bodemas op basis van 0.43 M HNO<sub>3</sub> extracties. In de laatste kolom staat de rekenkundige maximale uitloging die berekend is aan de hand van de afzonderlijke deelmonsters in de verhouding 80%/20%*

|         | Lysimetermengsel,<br>gemeten<br>(scenario 1) | AVI-bodemas,<br>gemeten | Lysimetermengsel<br>+ 20% AVI-<br>bodemas, gemeten | Lysimetermengsel<br>+ 20% AVI-<br>bodemas, berekend<br>(scenario 3) |
|---------|--|-------------------------|--|---|
| Element | mg/kg  | mg/kg                   | mg/kg  | mg/kg   |
| Al      | 4.08E+03                                     | 1.08E+04                | 6.53E+03   | 5.43E+03  |
| As      | 4.25E+00                                     | 2.20E+00                | <b>1.34E+00</b>                                    | 3.84E+00  |
| B       | 2.31E+01                                     | 7.95E+01                | 3.52E+01   | 3.44E+01  |
| Ba      | 1.58E+00                                     | 8.45E+00                | 1.88E+00   | 2.95E+00  |
| Ca      | 5.01E+04                                     | 7.19E+04                | 4.91E+04   | 5.44E+04  |
| Cd      | 1.90E+00                                     | 1.18E+01                | 4.30E+00   | 3.87E+00  |
| Cl      | 3.27E+03                                     | 7.71E+03                | 4.19E+03   | 4.19E+03  |
| Co      | 6.12E+00                                     | -                       | 5.38E+00   | 5.38E+00  |
| CO3     | 6.00E+04                                     | -                       | -  | 6.50E+04  |
| Cr      | 3.94E+01                                     | 2.50E+01                | 2.77E+01   | 3.65E+01  |
| Cu      | 1.65E+02                                     | 1.69E+03                | <b>2.04E+03</b>                                    | 4.70E+02  |
| Fe      | 1.93E+04                                     | 1.42E+04                | 1.26E+04   | 1.83E+04  |
| K       | 9.59E+02                                     | 2.50E+03                | 1.25E+03   | 1.27E+03  |
| Li      | 2.80E+00                                     | 4.66E+00                | 3.29E+00   | 3.17E+00  |
| Mg      | 2.97E+03                                     | 4.50E+03                | 3.04E+03   | 3.28E+03  |
| Mn      | 5.69E+02                                     | 4.65E+02                | 5.32E+02   | 5.48E+02  |
| Mo      | 2.87E+00                                     | 1.47E+00                | 7.39E-03   | 1.20E+00  |
| Na      | 1.85E+03                                     | 6.00E+03                | 2.57E+03   | 2.68E+03  |
| Ni      | 2.43E+01                                     | 1.15E+02                | 5.10E+01   | 4.24E+01  |
| Pb      | 4.55E+02                                     | 3.66E+02                | 3.44E+02   | 4.37E+02  |
| PO4     | 8.16E+01*                                    | 8.16E+01*               | 8.16E+01*  | 5.26E+01  |
| Sb      | 1.30E+00                                     | 1.20E+01                | 2.72E+00   | 3.44E+00  |
| Se      | 5.54E-01                                     | 7.98E-01                | 7.58E-01   | 6.03E-01  |
| Si      | 3.55E+03                                     | 2.18E+04                | 7.31E+03   | 7.19E+03  |
| SO4     | 1.27E+04                                     | 6.51E+03                | 2.05E+04   | 2.05E+04**  |
| Sr      | 1.81E+02                                     | 1.68E+02                | 1.54E+02   | 1.78E+02  |
| V       | 2.97E+01                                     | 8.97E+00                | 1.72E+01   | 2.55E+01  |
| Zn      | 2.29E+03                                     | 3.31E+03                | 2.18E+03   | 2.49E+03  |

\* Geschatte waarde.

\*\* Beschikbaarheid aangepast in model om sulfaat uitloging goed te voorspellen.

De gemeten beschikbaarheid van het lysimetermengsel + 20% AVI-bodemas komt over het algemeen goed overeen met de berekende beschikbaarheid op basis van de individuele afvalstoffen. Er is een verschil van meer dan een factor 2 voor As en Cu. De gemeten beschikbaarheid van As is lager dan berekend en de gemeten beschikbaarheid van Cu is juist hoger dan berekend. Deze verschillen zullen tot uitdrukking komen in de absolute waarde van de voorspelde emissies van As en Cu. Er wordt niet verwacht dat een dergelijk verschil het complete uitlooggedrag (lees: de chemie) van van As en Cu zal verstoren. Met andere woorden, de chemische processen die de uitloging bepalen zullen niet veranderen door een verschil in de beschikbaarheid van een factor 2.

In Tabel 3.2 staan de gemeten en berekende beschikbaarheden van het lysimetermengsel weergegeven. In de eerste kolom staat de gemeten beschikbaarheid van het lysimetermengsel. De resultaten in de tweede kolom zijn gebaseerd op de gemeten beschikbaarheden van de individuele afvalstromen (Tabel 2.1) waaruit het lysimetermengsel is opgebouwd. De beschikbaarheden van de individuele afvalstoffen worden met gewogen percentages berekend om de beschikbaarheid van het totale mengsel vast te stellen. Tenslotte is de maximale emissie van het lysimetermengsel die is vastgesteld in de pH-stat proef weergegeven in de derde kolom.

Wanneer de resultaten van deze drie methoden worden vergeleken valt op dat er verschillen zijn (>factor 2) voor de elementen Al, As, Ba, Cr, Cu, Pb, Sb, Se, Sn, V en Zn.

Wanneer de gemeten en berekende beschikbaarheid (0.43M HNO<sub>3</sub> extractie) vergeleken wordt dan valt op dat er verschillen (>factor 2) zijn voor Ba, Cr, Cu, Sb, Sn en Zn. Zoals hierboven beschreven wordt niet verwacht dat deze verschillen zullen leiden tot grote veranderingen in het voorspelde uitlooggedrag van het mengsel.

Ook zijn er verschillen (>factor 2) waar te nemen tussen de resultaten van de 0.43M HNO<sub>3</sub> extractie en de maximale uitloging gemeten met pH-stat. Deze verschillen zijn geheel te verklaren door de verschillen in pH bij deze experimenten (pH 0.5 voor de 0.43 M HNO<sub>3</sub> extractie, pH 2-12 voor de pH-stat). Het wordt aanbevolen om bij modellering de beschikbaarheid te nemen die gemeten is met een 0.43 M HNO<sub>3</sub> extractie. Deze methodiek is eerder al succesvol toegepast op een aantal verontreinigde bodems (Dijkstra et al., 2004).

De resultaten in Tabel 3.1 en Tabel 3.2 geven aan dat het mogelijk is om de beschikbaarheid van een afvalstoffenmengsel te bepalen door metingen aan individuele afvalstoffen. Dit is een belangrijk gegeven voor het duurzaam storten concept omdat op basis hiervan vooraf metingen gedaan kunnen worden aan de afvalstoffen om een duurzaam mengsel te creëren.

Tabel 3.2 *Vergelijking van de beschikbaarheid van verontreinigingen op basis van verschillende methoden*

| Element | 0.43 M HNO <sub>3</sub> op lysimetermengsel (Scenario 1)<br>mg/kg | 0.43 M HNO <sub>3</sub> op individuele afvalstoffen (Scenario 2)<br>mg/kg | Maximale uitloging pH-stat (tussen pH3 en 13)<br>mg/kg |
|---------|---|---|--|
| Al      | 4.08E+03  | 4.82E+03  | <b>2.28E+03</b>  |
| As      | 4.25E+00  | 5.50E+00  | <b>2.57E+00</b>  |
| B       | 2.31E+01  | 2.61E+01  | 1.86E+01   |
| Ba      | 1.58E+00  | <b>7.69E+01</b>   | 1.54E+00   |
| Ca      | 5.01E+04  | 4.53E+04  | 5.02E+04   |
| Cd      | 1.90E+00  | 2.98E+00  | 2.76E+00   |
| Cl      | 3.27E+03  | 5.27E+03  | 5.27E+03   |
| Co      | 6.12E+00  | 5.15E+00  | 5.26E+00   |
| CO3     | 5.6E+04   | 5.6E+04   | 6.50E+04   |
| Cr      | <b>3.94E+01</b>   | 1.36E+01  | 1.92E+01   |

|     |                 |                 |                 |
|-----|-----------------|-----------------|-----------------|
| Cu  | <b>1.65E+02</b> | 6.68E+01        | 3.98E+01        |
| Fe  | 1.93E+04        | 8.81E+03        | 1.64E+04        |
| K   | 9.59E+02        | 1.10E+03        | 1.16E+03        |
| Li  | 2.80E+00        | 3.25E+00        | 3.02E+00        |
| Mg  | 2.97E+03        | 3.33E+03        | 3.00E+03        |
| Mn  | 5.69E+02        | 4.96E+02        | 5.74E+02        |
| Mo  | 1.70E+00        | 1.70E+00*       | 2.87E+00        |
| Na  | 1.85E+03        | 1.83E+03        | 1.24E+05        |
| Ni  | 2.43E+01        | 2.18E+01        | 2.32E+01        |
| Pb  | 4.55E+02        | 3.05E+02        | <b>1.29E+02</b> |
| PO4 | 8.16E+01        | 8.16E+01        | 8.16E+01        |
| Sb  | <b>1.30E+00</b> | 4.99E-01        | 3.86E-01        |
| Se  | 5.54E-01        | 6.32E-01        | <b>3.19E-01</b> |
| Si  | 3.55E+03        | 3.62E+03        | 3.01E+03        |
| Sn  | 5.69E-01        | <b>2.11E-01</b> | 5.04E-01        |
| SO4 | 1.272e+04       | 3.36E+04        | 3.36E+04        |
| Sr  | 1.81E+02        | 1.38E+02        | 1.76E+02        |
| V   | 2.97E+01        | 1.84E+01        | <b>5.22E+00</b> |
| Zn  | 2.29E+03        | <b>7.73E+02</b> | 2.40E+03        |

\* Mo is slecht oplosbaar bij lage pH. In deze modelberekening is een geschatte waarde aangenomen.

### 3.2 Modelparameters voor adsorptiemodellen

In Tabel 3.3 zijn de gegevens van het drogestofgehalte en de gemeten hoeveelheden totaal reactief organische stof (SHA, solid humic acid), reactief Fe/Al(hydr-)oxiden (HFO, hydrous ferric oxide) en klei weergegeven. Het is te zien dat SHA ongeveer een factor 60 varieert tussen de verschillende monsters en HFO varieert ongeveer een factor 5. De verschillen tussen de kleigehalten zijn minder groot, ongeveer een factor 2.

De modelparameters worden gebruikt in LeachXS/ORCHESTRA bij de voorspelling van het uitlooggedrag van de afvalmengsels. In de modellering is gebruik gemaakt van de parameters bepaald aan de mengsels. Ter verificatie zijn (op dezelfde wijze als voor de beschikbaarheid) deze parameters ook aan de individuele afvalstoffen bepaald (Tabel 3.3). De berekende hoeveelheid SHA, HFO en Clay op basis van individuele afvalstoffen komt goed overeen met de resultaten van het mengsel. De verschillen tussen beide benaderingen is minder dan een factor 2. Ook voor de parameters SHA, HFO en Clay geldt dat de gegevens van individuele afvalstoffen gebruikt kunnen worden voor de voorspelling van een mengsel van afvalstoffen.

Tabel 3.3 *Parameters organische stof en reactief Fe/Al*

| monster                     | % D.S. | SHA (kg/kg)* | HFO (kg HFO/kg) | Clay (kg/kg) |
|-----------------------------|--------|--------------|-----------------|--------------|
| Lysimeter 1                 | 59.5   | 0.021        | 0.035           | 0.11         |
| Lysimeter 2                 | 66.3   | 0.028        | 0.041           | 0.11         |
| Bouw en sloop afval         | 89.0   | 0.005        | 0.008           | 0.053        |
| Boorgruis                   | 85.4   | 0.005        | 0.012           | 0.11         |
| HWZ Slib                    | 47.6   | 0.058        | 0.030           | 0.19         |
| Pouw slib                   | 51.6   | 0.038        | 0.021           | 0.23         |
| Slib GRC                    | 35.6   | 0.088        | 0.032           | 0.22         |
| Lysimeter + 20% AVI-bodemas | 65.7   | 0.016        | 0.038           | 0.12         |
| AVI-bodemas                 | 100.0  | 0.001        | 0.017           | 0            |

\* SHA is de som van de gemeten hoeveelheden humus- en fulvozuur. In de modellering wordt de som van humus- als fulvozuur gemodelleerd als humuszuur.

### 3.3 Identificatie mogelijke oplosbaarheidcontroleerende mineralen

In de modelberekeningen is gekozen om te werken met slechts 1 set van mogelijk oplosbaarheidcontroleerende mineralen. De lijst met mineralen in Tabel 3.4 is voortgekomen uit verschillende proefberekeningen waarbij eerst getracht werd om het uitlooggedrag van alle contaminanten te voorspellen op basis van sorptie aan organische stof en HFO. Voor een aantal elementen werd toen duidelijk dat deze chemische processen niet voldoende waren om het uitlooggedrag (over een breed pH gebied) te beschrijven. Vervolgens zijn iteratief een aantal mineralen geselecteerd die het uitlooggedrag het best konden beschrijven en zijn mineralen toegevoegd die op basis van eerdere ervaringen een rol zouden kunnen spelen. De totale selectie van mineralen is weergegeven in Tabel 3.4.

Tabel 3.4 *Selectie van gekozen mogelijk oplosbaarheidcontroleerende mineralen in geochemische modellering van het uitlooggedrag van de afvalstoffenmengsels*

| Mineraal          | Mineraal       |
|-------------------|----------------|
| Al[OH]3[a]        | Gypsum         |
| Albite[low]       | Hydromagnesite |
| AlOHSO4           | Laumontite     |
| alpha-TCP         | Leucite        |
| Anhydrite         | Magnesite      |
| Ba[SCr]O4[77%SO4] | Manganite      |
| Ba[SCr]O4[96%SO4] | MgKPO4:6H2O[c] |
| BaSrSO4[50%Ba]    | MnHPO4[C]      |
| Boehmite          | Ni[OH]2[s]     |
| Brucite           | OCP            |
| Bunsenite         | Otavite        |
| Ca_Vanadate       | Pb[OH]2[C]     |
| Ca2Cd[PO4]2       | Pb2V2O7        |
| Ca2Pb[PO4]2       | Pb3[VO4]2      |
| Ca2V2O7           | PbCrO4         |
| Ca3[AsO4]2:6H2O   | PbMoO4[c]      |
| Ca3[VO4]2         | Pigummite[1]   |
| Ca4Cd[PO4]3OH     | Pigummite[2]   |
| Calcite           | Portlandite    |
| CaZincate         | Rhodochrosite  |
| Cd[OH]2[C]        | Sb[OH]3[s]     |
| Cr[OH]3[A]        | Strengite      |
| Cr[OH]3[C]        | Strontianite   |
| CSH_ECN           | Struvite       |
| Cu[OH]2[s]        | Tenorite       |
| FCO3Apatite       | Wairakite      |
| Ferrihydrite      | Willemite      |
| Fluorite          | Zincite        |

### 3.4 Geochemische modellering van het uitlooggedrag van verontreinigingen in het lysimetermengsel

De volledige resultaten van de pH-stat experimenten en de voorspelling van het uitlooggedrag met geochemische modellering (scenario 1 en 2) zijn weergegeven in Bijlage A en Bijlage B. In deze paragraaf wordt het uitlooggedrag van een aantal elementen in detail besproken.

De figuren in Bijlage A en Bijlage B zijn per element in vier onderdelen opgesplitst. De meest linker figuur laat de pH afhankelijke uitloging zien (rode datapunten). Daarnaast zijn de kolomtest resultaten ook in deze figuur weergegeven (blauwe datapunten). De lijnen geven de voor-



spelde concentraties in oplossing weer. De blauwe lijn geeft de voorspelling van de pH-stat uitloogproef bij L/S=10. De oranje lijn is de voorspelde concentratie in oplossing onder poriewater condities (in deze experimenten L/S=0.27). De resultaten laten zien dat een aantal elementen gevoelig is voor de L/S ratio, dit wordt doorgaans ook goed ondersteund door de kolomtest resultaten (deze resultaten zijn namelijk een doorsnede van L/S=0.1-10).

De tweede en figuur in de bijlagen tonen respectievelijk de speciatie van verontreinigingen in de vaste fase en de vloeistof. De derde en vierde figuur tonen tenslotte de procentuele verdeling van een element in verschillende bindingsvormen (speciatie) in respectievelijk de vloeistof en de vaste fase. De speciatie in oplossing kan tot op heden alleen worden uitgedrukt als gecompliceerd aan organische stof ofwel als de som van het vrije ion plus de anorganische complexen. In de vaste fase kan onderscheid gemaakt worden tussen complexatie met vaste organische stof, adsorptie aan HFO en oplosbaarheidscontrole door minerale fasen (zie Tabel 3.4).

Het effect van de keuze voor de beschikbaarheid van verontreinigingen (op basis van het lysimetermengsel of op basis van de sommatie vanuit individuele afvalstoffen) op de voorspelde uitloging lijkt beperkt te zijn voor veel elementen (zie de vergelijking van de resultaten uit Bijlage A en Bijlage B). Dit betekent dat beide methoden in principe gebruikt kunnen worden om de uitloging van het afvalstoffenmengsel te voorspellen. Ook de overeenkomst tussen de gemeten uitloging en de voorspelling is voor de meeste elementen goed over een breed pH gebied. De trend en het absolute niveau in de pH afhankelijke uitloging wordt goed voorspeld door het model. De absolute concentraties en de trend zijn nog niet perfect over het gehele pH traject voor de elementen:  $\text{PO}_4^{3-}$ , Ni, As, V, Sb en Li.

Er wordt bij de resultaten nog opgemerkt dat eventuele kinetische processen die langer duren dan de 48 uur van de uitloogproef, niet in het model zijn opgenomen. Het model gaat uit van chemisch evenwicht. Dijkstra et al. (2006b) hebben aangetoond dat kinetiek een belangrijke rol kan spelen in een uitloogproef. Hierdoor wordt het absolute niveau van de concentraties in een aantal gevallen niet precies voorspeld. Echter, de trend van de uitloogcurve is een belangrijke aanwijzing dat het chemische mechanisme bekend is en dat het model geschikt is om de concentraties uit het afvalmengsel adequaat te kunnen voorspellen.

Op basis van beschreven resultaten wordt geconcludeerd dat het met de huidige geochemische rekenmodellen goed mogelijk is om de uitloging van een scala aan elementen uit het lysimetermengsel te voorspellen onder veranderende omstandigheden (pH veranderingen). Bovendien kan voor de beschikbaarheid worden gekozen om de maximale uitloging uit de pH-stat proef te nemen of om de gemeten beschikbaarheid (met een 0.43 M  $\text{HNO}_3$  extractie) te gebruiken. De beschikbaarheid van As en Cu verschilt echter significant en het is op dit moment nog onduidelijk waardoor de verschillen kunnen worden verklaard.

### 3.5 Geochemische modellering van het uitloggedrag van verontreinigingen in het lysimetermengsel waaraan 20% AVI-bodemas is toegevoegd

Het doel van de experimenten met het lysimetermengsel en de toevoeging van 20% AVI-bodemas was om het uitloggedrag van het lysimetermengsel fors te veranderen. Ter validatie zou de geochemische modellering deze verandering dan ook zichtbaar moeten maken. De resultaten van de uitloogproeven en de geochemische modellering staan in Bijlage C. Wanneer de resultaten uit Bijlage A en Bijlage C worden vergeleken is duidelijk te zien dat het uitloggedrag van de meeste elementen nauwelijks veranderd door de toevoeging van 20% AVI-bodemas. De beschikbaarheid (bij lage pH) veranderd wel door toevoeging van AVI-bodemas en de modelberekeningen laten deze verandering ook zien. De oplosbaarheidscontroleerende processen in het monster blijken nauwelijks veranderd te zijn. In een aantal gevallen wordt het aandeel van vastlegging in mineralen, adsorptieprocessen (aan HFO) en/of complexatie aan organi-

sche stof wel anders, zoals blijkt uit Bijlage A en Bijlage C. De modellering geeft aan dat de verschuivingen in bindingsvormen in dit geval slechts een beperkte invloed hebben op de uitloging van verontreinigingen. Deze waarneming wordt ook ondersteund door de uitloogproeven.

De overeenkomst tussen de gemeten uitloging en de voorspelling is voor de meeste elementen goed over een breed pH gebied (Bijlage C). De trend en het absolute niveau in de pH afhankelijke uitloging wordt goed voorspeld door het model. De absolute concentraties en de trend zijn nog niet perfect over het gehele pH traject voor de elementen:  $\text{PO}_4^{3-}$  (wel verbetering t.ov. de resultaten uit Bijlage A), Ni, As, V, Sb en Li.

Samenvattend wordt gesteld dat het uitlooggedrag van het lysimetermengsel minder veranderd door toevoeging van 20% AVI-bodemas dan vooraf werd ingeschat. De modelvoorspellingen geven echter ook aan dat het uitlooggedrag relatief weinig verandert. De modellering laat voor veel elementen een consistent beeld zien dat ook naar voren komt uit de uitloogproeven.

Een andere opvallende conclusie uit deze resultaten is dat het relatief veel moeite kost om een afvalmengsel door toevoegingen zodanig uit evenwicht te brengen dat de chemische processen die de uitloging controleren significant veranderen. Dit gegeven is belangrijk bij de verdere ontwikkeling van recepturen voor duurzaam storten. Hierbij dient wel te worden opgemerkt dat een significante verhoging van het DOC gehalte (in de vorm van opgeloste humus- en fulvozuren) zeker een negatief effect zal hebben op de kwaliteit van het percolaatwater (zie hiervoor ook de eerdere duurzaam storten rapportage (van Zomeren and van der Sloot, 2006)).

## 4. Conclusies

De vraagstelling van dit project was of we op basis van informatie over individuele reststoffen in staat zijn om het gedrag van een afvalstoffenmengsel te kunnen beschrijven. De resultaten laten zien dat de berekende uitloging voor de meeste elementen niet erg gevoelig is voor de geschatte beschikbare hoeveelheid. Hierdoor is het effect van de keuze voor de beschikbaarheid van verontreinigingen (op basis van het lysimetermengsel of op basis van de sommatie vanuit individuele afvalstoffen) op de voorspelde uitloging beperkt voor veel elementen. Dit betekent dat beide methoden in principe gebruikt kunnen worden als input voor het model om de uitloging van het afvalstoffenmengsel te voorspellen.

Op basis van de modelleringresultaten wordt geconcludeerd dat het met de huidige geochemische rekenmodellen goed mogelijk is om de uitloging van een scala aan elementen uit het lysimetermengsel te voorspellen onder veranderende omstandigheden (pH veranderingen) en op basis van gegevens van individuele afvalstoffen. Bovendien kan voor de beschikbaarheid worden gekozen om de maximale uitloging uit de pH-stat proef te nemen of om de gemeten beschikbaarheid (met een 0.43 M HNO<sub>3</sub> extractie) te gebruiken. De beschikbaarheid van As en Cu verschilt echter significant en het is op dit moment nog onduidelijk waardoor de verschillen kunnen worden verklaard.

De mogelijkheid om de pH van een afvalmengsel te voorspellen biedt perspectief voor de sturing van de eind-pH van een afvalstoffenpakket en inzicht in de mate van buffering, dat een dergelijk systeem vertegenwoordigt. Dit resultaat is van groot belang voor de ontwikkeling van Duurzaam storten.

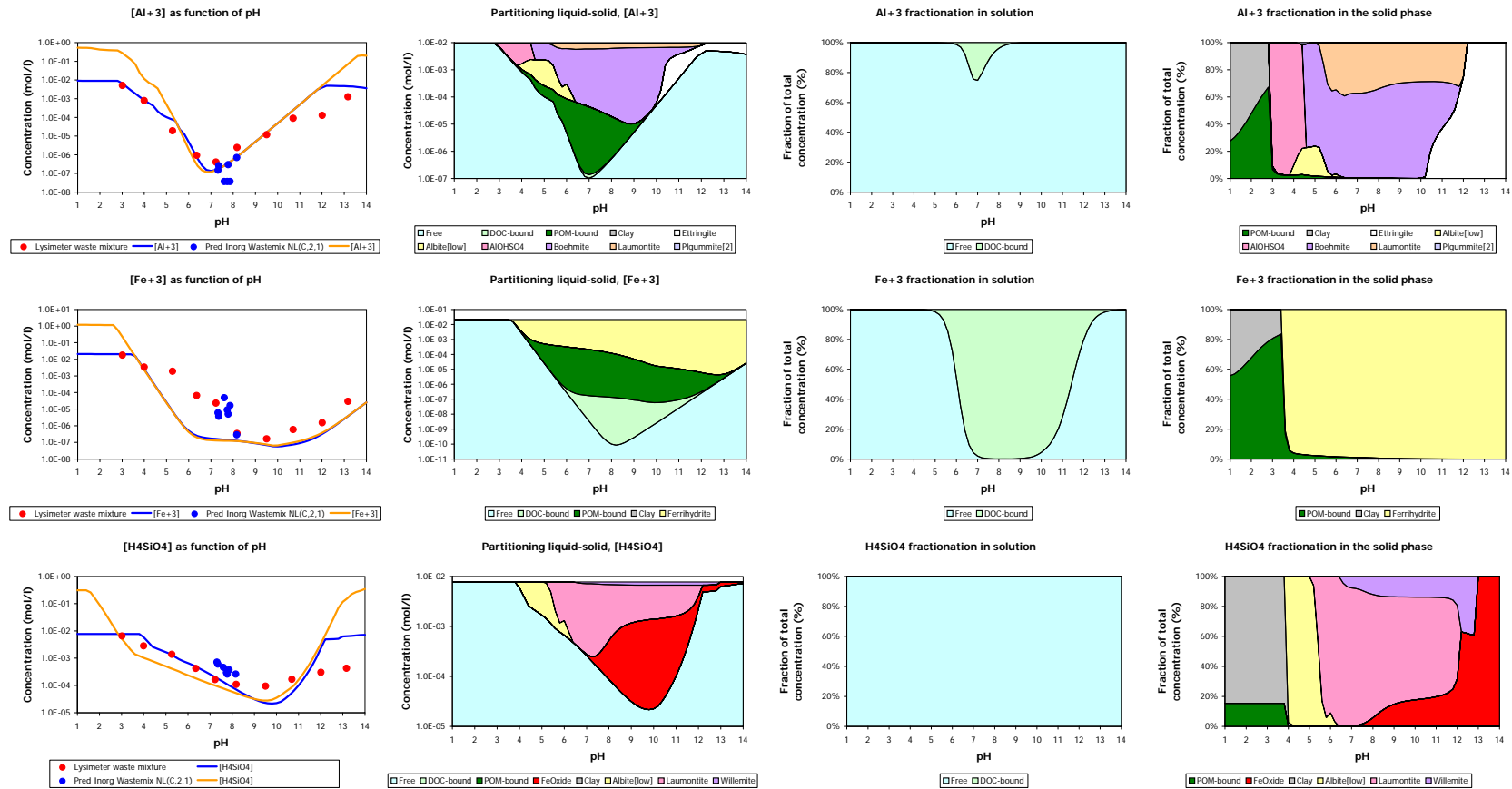
Het uitlooggedrag van het lysimetermengsel verandert door toevoeging van 20% AVI-bodemas minder dan vooraf werd ingeschat. De modelvoorspellingen van het pH-afhankelijke uitlooggedrag zijn behoorlijk goed en geven ook aan dat het uitlooggedrag relatief weinig verandert. Deze resultaten geven aan dat het relatief veel moeite kost om een afvalmengsel door toevoegingen zodanig uit evenwicht te brengen dat de chemische processen die de uitloging controleren significant veranderen. Het is echter op basis van de resultaten niet kwantitatief vast te stellen waar de grenzen voor significante afwijkingen in het uitlooggedrag liggen. Op basis van modelering kan worden nagegaan bij welke toevoeging de buffercapaciteit overschreden zal worden. Dit gegeven is belangrijk bij de verdere ontwikkeling van recepturen voor duurzaam storten. Hierbij dient wel te worden opgemerkt dat een significante verhoging van het DOC gehalte (in de vorm van opgeloste humus- en fulvazuren) zeker een negatief effect zal hebben op de kwaliteit van het percolaatwater (zie hiervoor ook de eerdere duurzaam storten rapportage (van Zomeren and van der Sloot, 2006)).

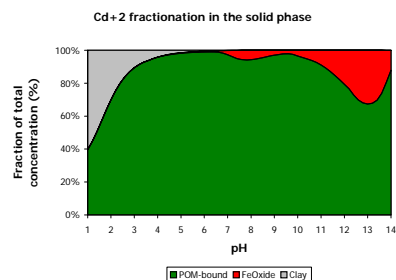
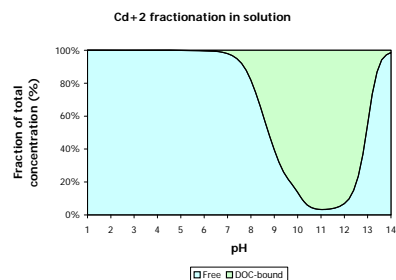
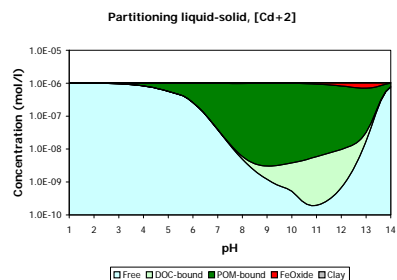
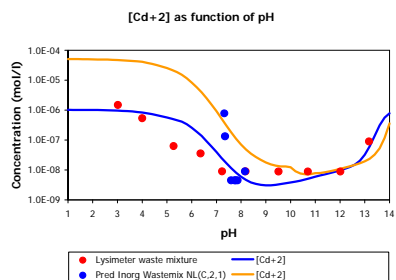
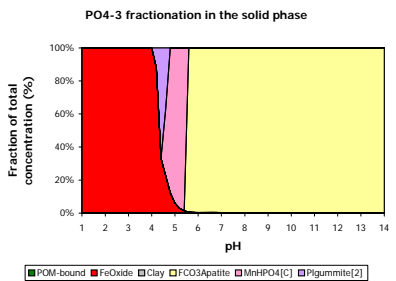
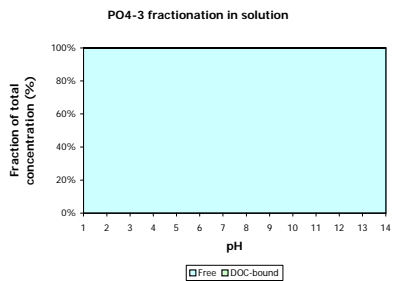
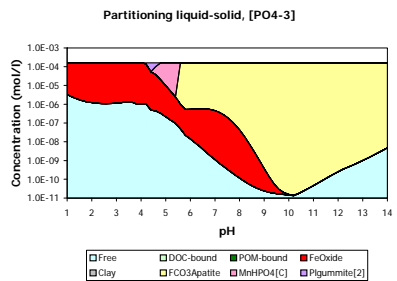
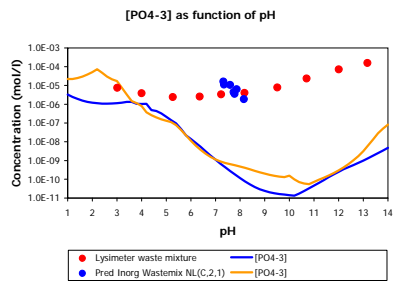
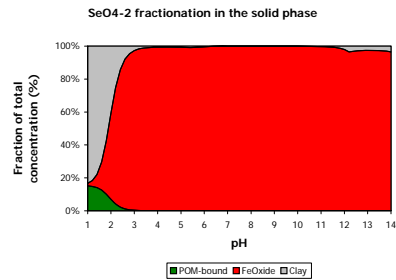
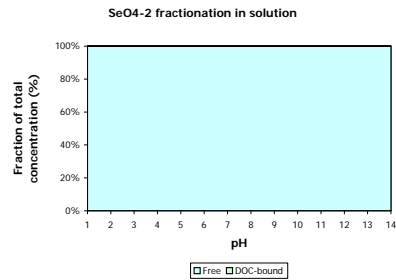
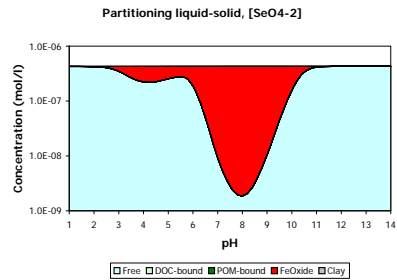
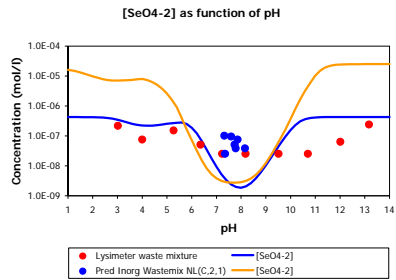
## Referenties

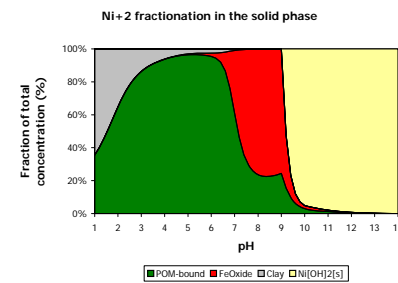
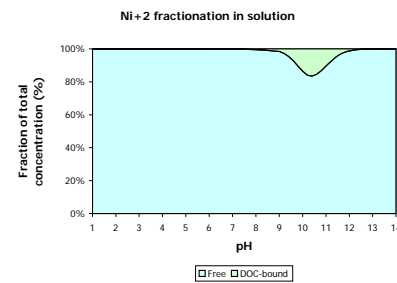
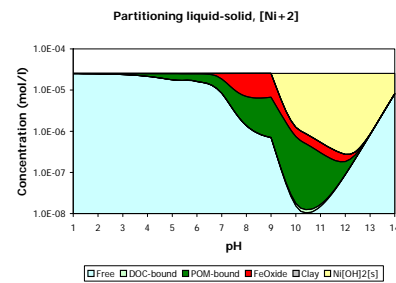
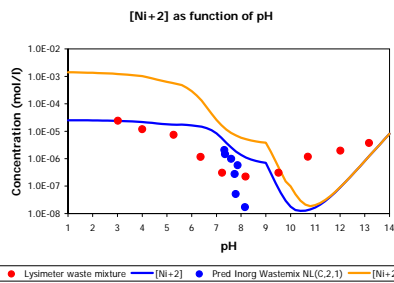
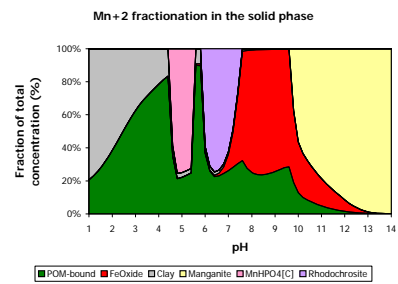
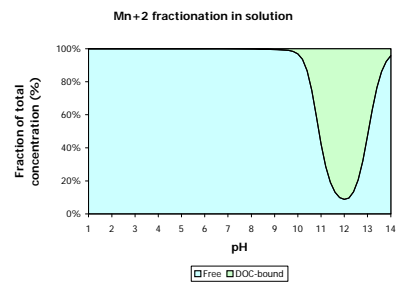
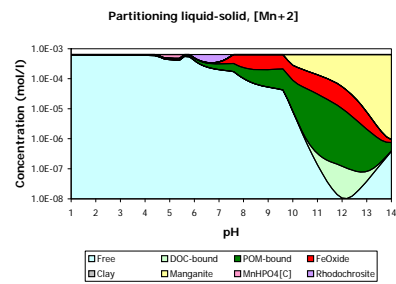
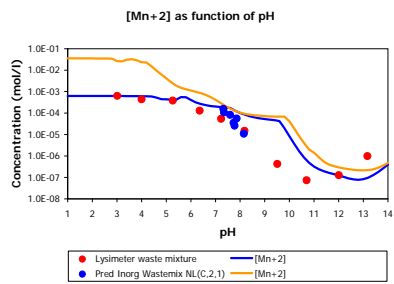
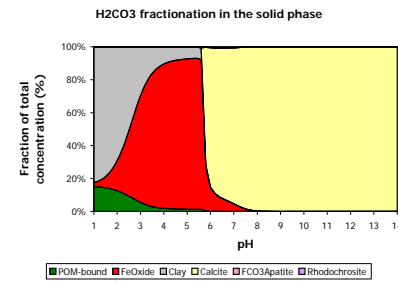
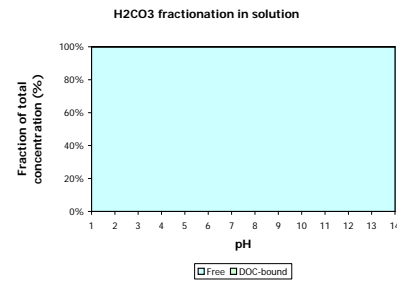
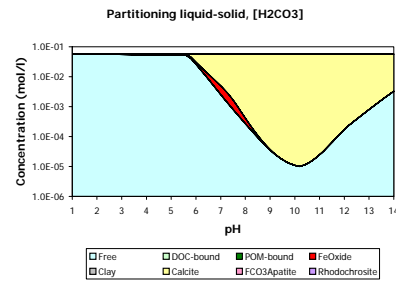
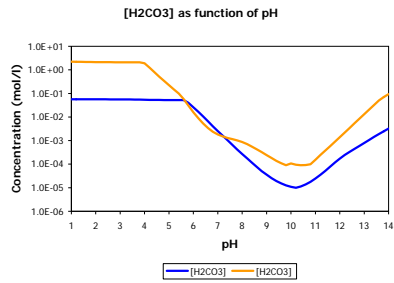
- Allison, J. D., Brown, D. S., and Novo-Gradac, K. J. MINTEQA2/PRODEFA2, A geochemical assessment model for environmental systems: version 3.11 user's manual. EPA/600/3-91/021, 1-119. 1991.
- Dijkstra, J. J., Meeussen, J. C. L., Comans, R. N. J., 2004. Leaching of heavy metals from contaminated soils; an experimental and modelling study. *Environmental Science and Technology* 38, 4390-4395.
- Dijkstra, J. J., Meeussen, J. C. L., van der Sloot, H. A., Comans, R. N. J., 2006a. A consistent geochemical modelling approach for the leaching and reactive transport of major and trace elements in MSWI bottom ash. submitted.
- Dijkstra, J. J., van der Sloot, H. A., Comans, R. N. J., 2002. Process identification and model development of contaminant transport in MSWI bottom ash. *waste management* 22, 531-541.
- Dijkstra, J. J., van der Sloot, H. A., Comans, R. N. J., 2006b. The leaching of major and trace elements from MSWI bottom ash as a function of pH and time. *Applied geochemistry* 21, 335-351.
- Dijkstra, J. J., van Zomeren, A., Meeussen, J. C. L., Comans, R. N. J., 2006c. Effect of Accelerated Aging of MSWI Bottom Ash on the Leaching Mechanisms of Copper and Molybdenum. *Environmental Science and Technology* 40, 4481-4487.
- Dzombak, D. A., Morel, F. M. M., 1990. *Surface complexation modeling: hydrous ferric oxide*, John Wiley & Sons, Inc., New York.
- Kinniburgh, D. G., van Riemsdijk, W. H., Koopal, L. K., Borkovec, M., Benedetti, M. F., Avena, M. J., 1999. Ion binding to natural organic matter: competition, heterogeneity, stoichiometry and thermodynamic consistency. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 151, 147-166.
- Meeussen, J. C. L., 2003. ORCHESTRA: An object-oriented framework for implementing chemical equilibrium models. *Environmental Science and Technology* 37, 1175-1182.
- Meima, J. A., Comans, R. N. J., 1998. Application of surface complexation/precipitation modeling to contaminant leaching from weathered municipal solid waste incinerator bottom ash. *Environmental Science and Technology* 32, 688-693.
- Meima, J. A., van Zomeren, A., Comans, R. N. J., 1999. Complexation of Cu with dissolved organic carbon in municipal solid waste incinerator bottom ash leachates. *Environmental Science and Technology* 33, 1424-1429.
- Milne, C. J., Kinniburgh, D. G., Tipping, E., 2001. Generic NICA-Donnan model parameters for proton binding by humic substances. *Environmental Science and Technology* 35, 2049-2059.
- Milne, C. J., Kinniburgh, D. G., van Riemsdijk, W. H., Tipping, E., 2003. Generic NICA-Donnan model parameters for metal-ion binding by humic substances. *Environmental Science and Technology* 37, 958-971.

- Stevenson, F. J., 1982. Humus chemistry. Genesis, composition, reactions, John Wiley & Sons, Inc., New York.
- Swift, R. S. 1996. Organic matter characterization, Methods of soil analysis. Part 3. Chemical methods, Soil Science Society of America, Madison, WI.
- Thurman, E. M., Malcolm, R. L., 1981. Preparative isolation of aquatic humic substances. Environmental Science and Technology 15, 463-466.
- van der Sloot, H. A., Seignette, P., Comans, R. N. J., van Zomeren, A., Dijkstra, J. J., Meeussen, J. C. L., Kosson, D. S., Hjelmar, O., 2003a. Evaluation of environmental aspects of alternative materials using an integrated approach assisted by a database/expert system. In: University of Dundee, Dundee, Scotland, pp. 769-790.
- van der Sloot, H. A., van Zomeren, A., Dijkstra, J. J., Hoede, D., Jacobs, J., Scharff, H., 2003b. Prediction of long term leachate quality and chemical speciation for a predominantly inorganic waste landfill. In: CISA - Environmental Sanitary Engineering Centre, Cagliari, Italy, S. Margherita di Pula, Cagliari, Italy, pp.
- van Zomeren, A., Comans, R. N. J., 2006. Measurement of humic and fulvic acid concentrations and dissolution properties by a rapid batch procedure. submitted.
- van Zomeren, A. and van der Sloot, H. A. Equistort, stortplaats voor overwegend anorganisch afval. ISBN-10: 90-73573-33-5, 1-99. 2006. Dutch sustainable landfill foundation.

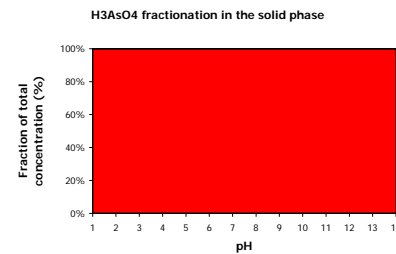
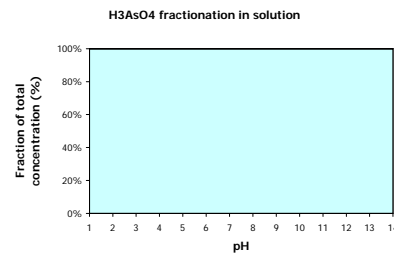
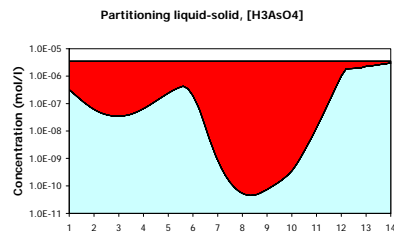
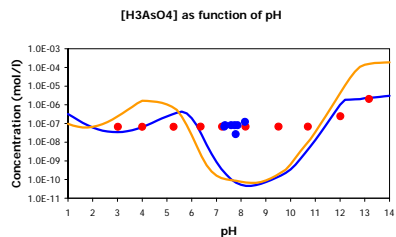
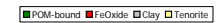
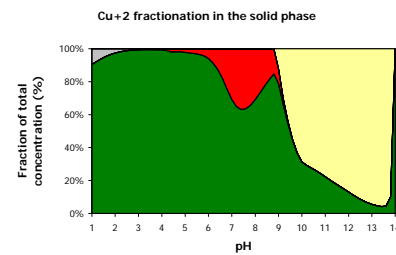
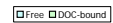
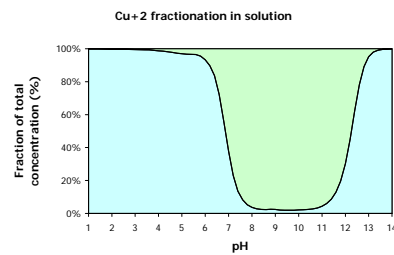
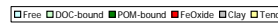
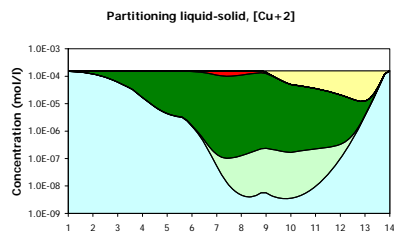
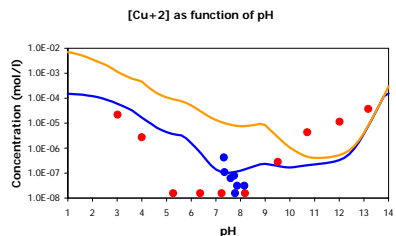
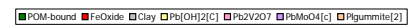
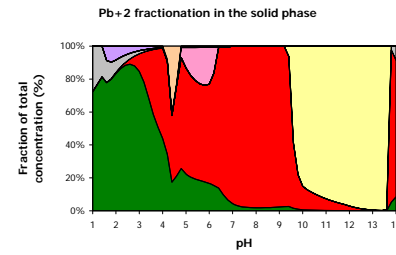
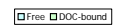
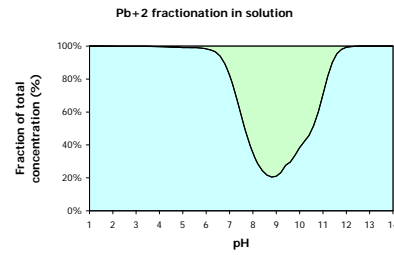
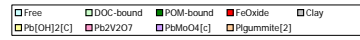
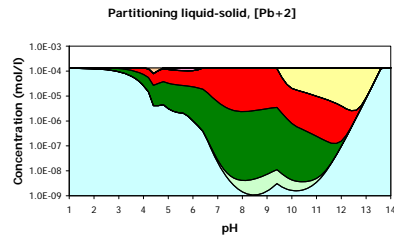
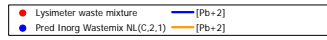
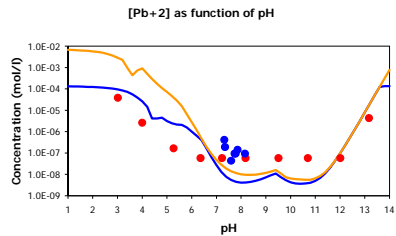
# Bijlage A pH afhankelijke uitloging lysimeter afval mengsel en geochemische modellering van de uitloging (scenario 1)

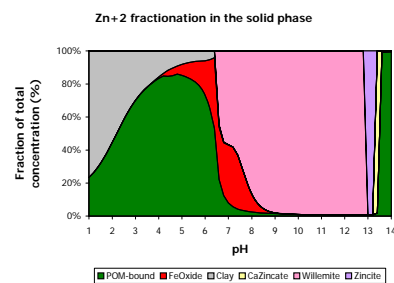
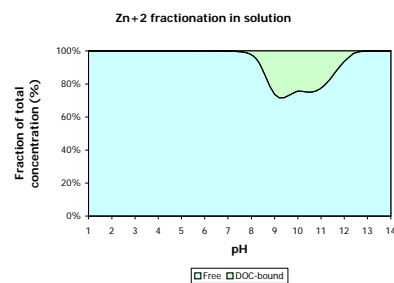
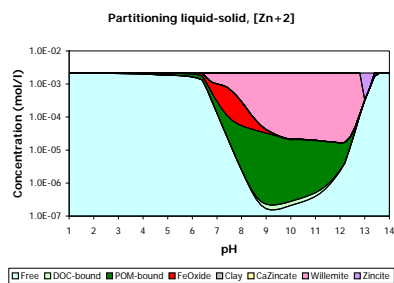
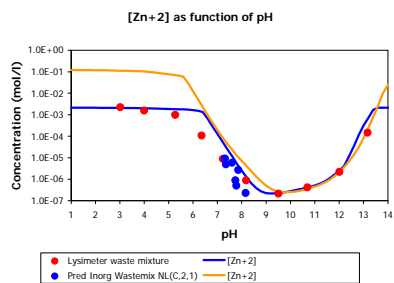
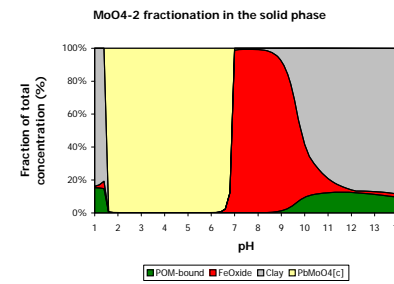
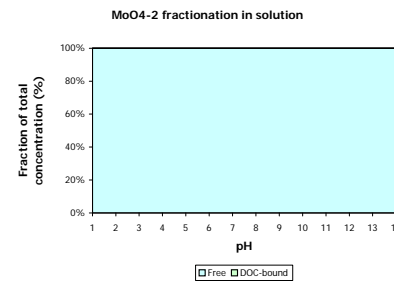
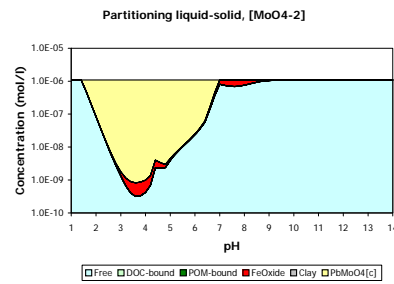
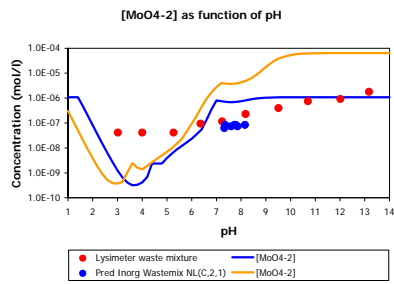
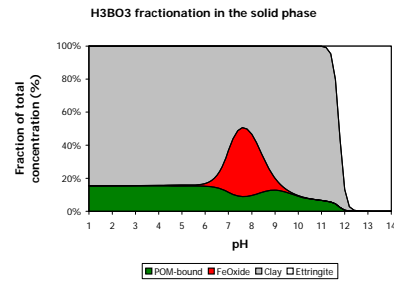
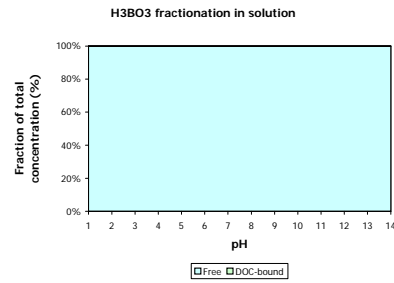
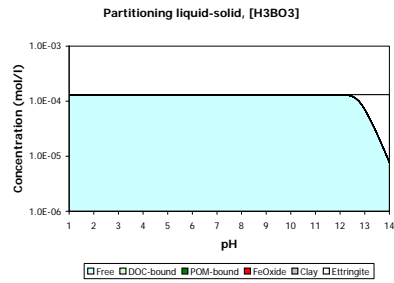
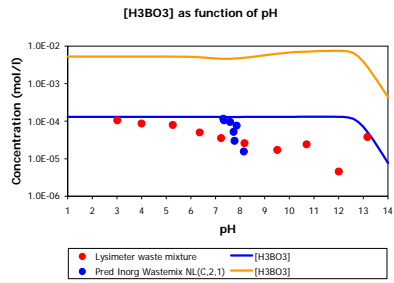


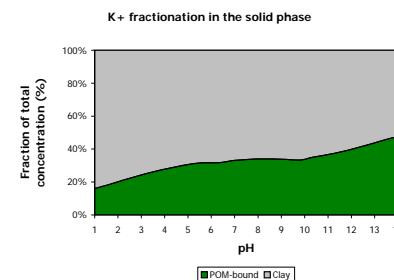
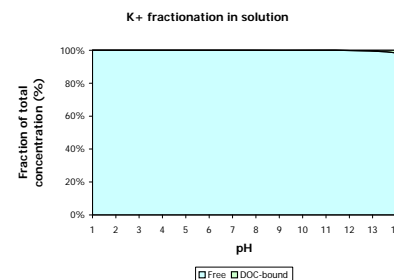
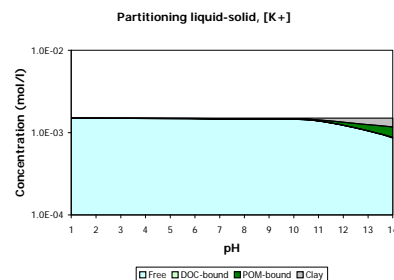
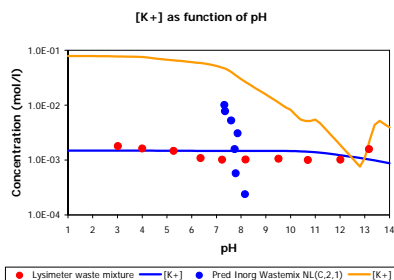
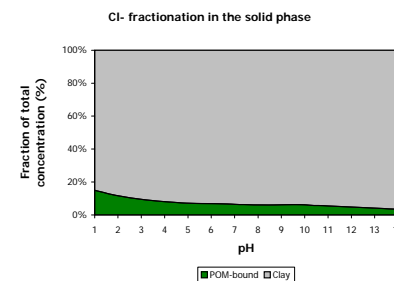
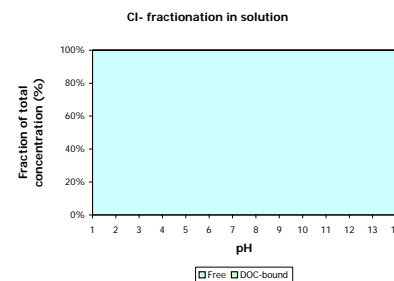
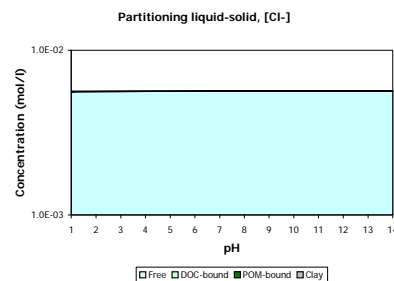
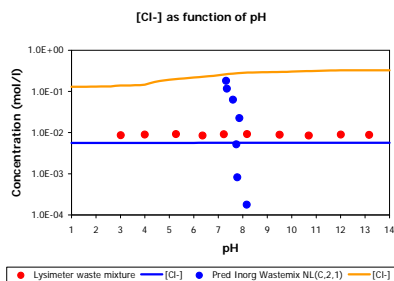
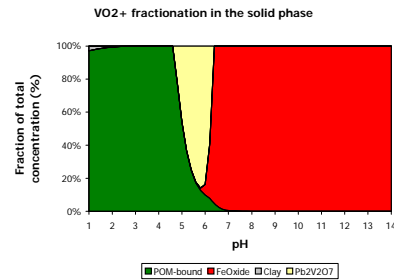
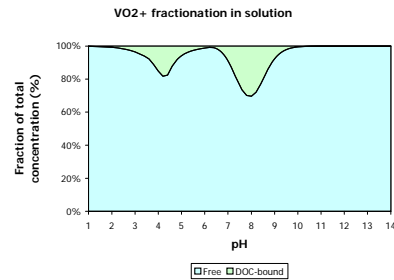
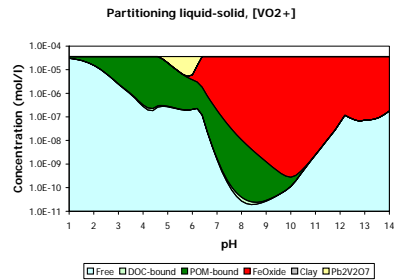
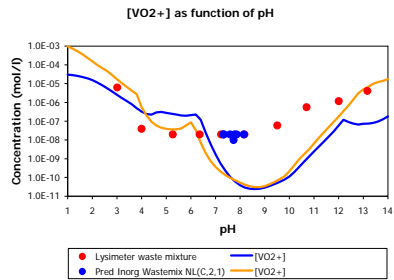


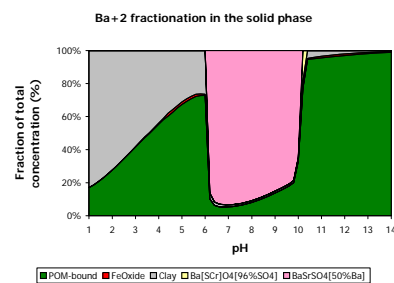
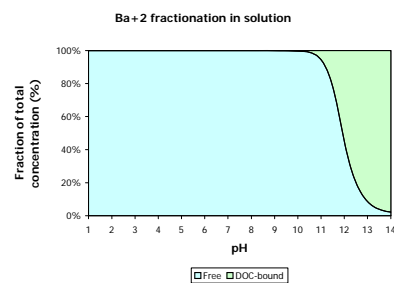
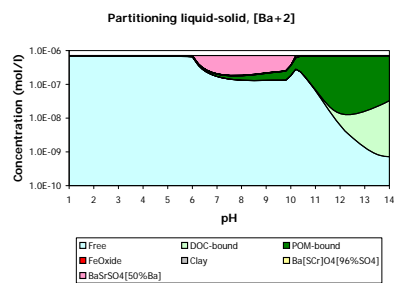
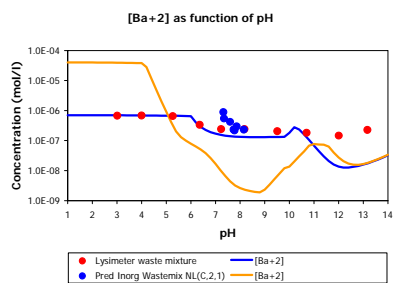
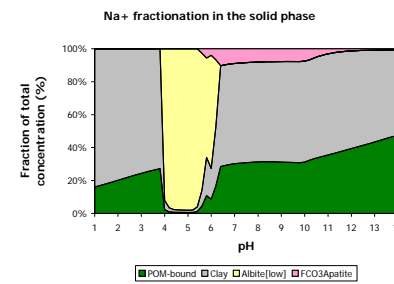
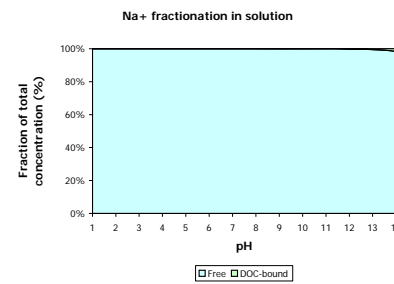
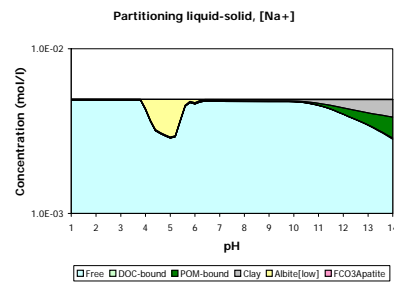
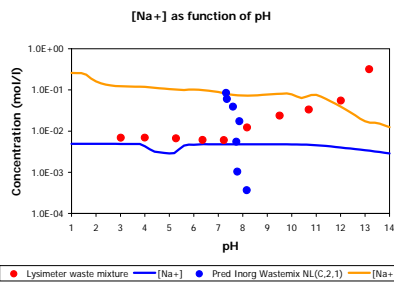
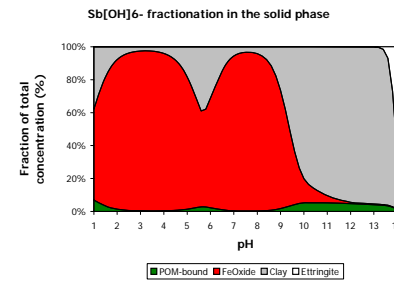
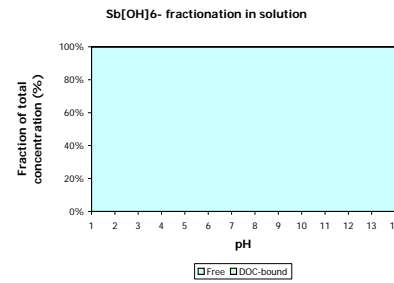
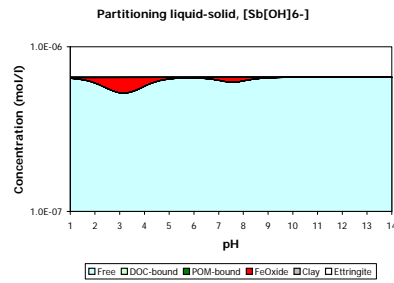
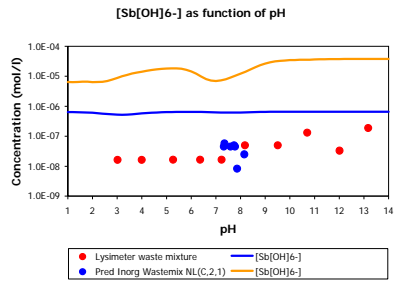


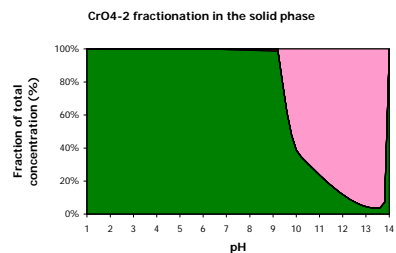
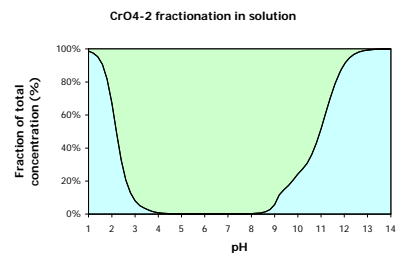
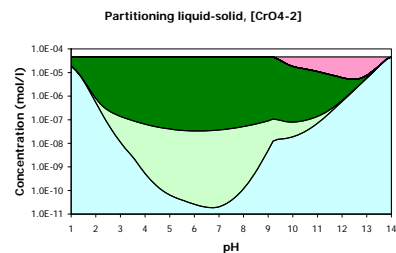
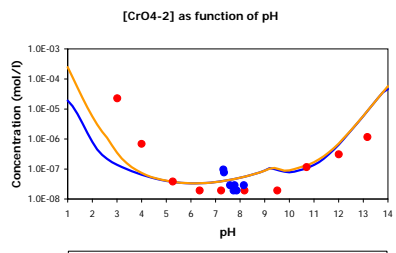
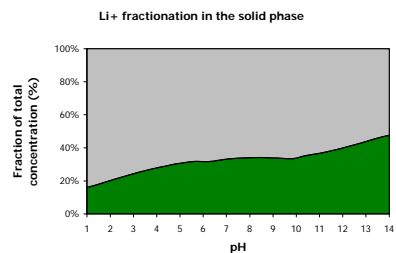
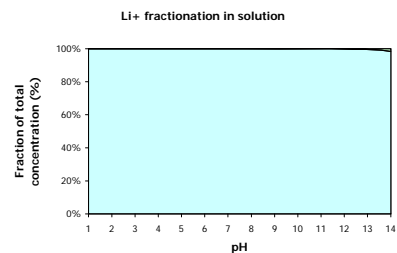
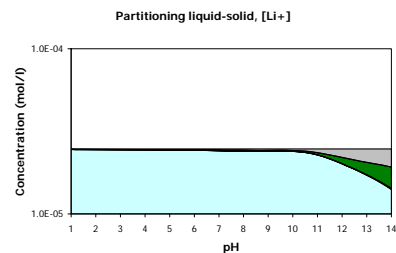
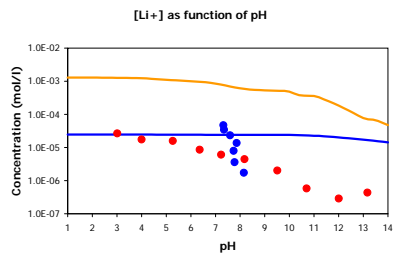
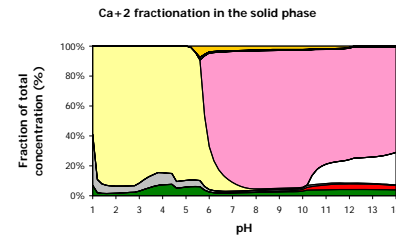
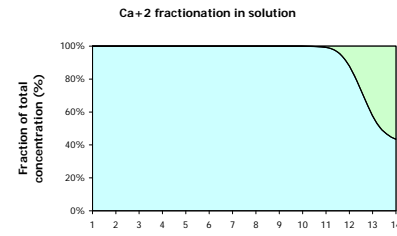
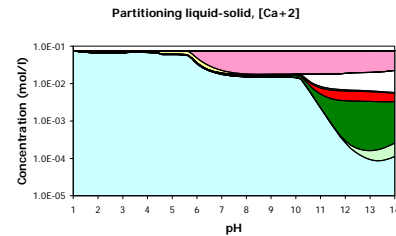
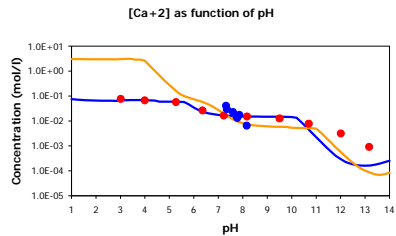


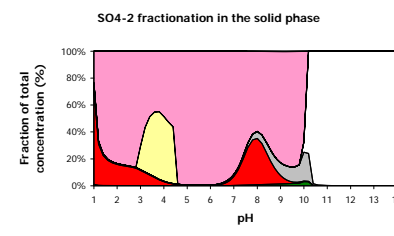
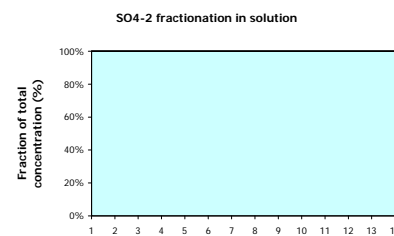
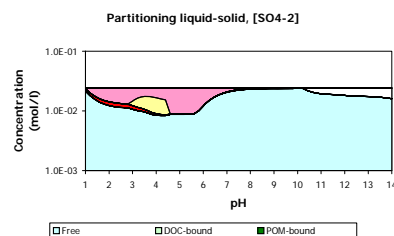
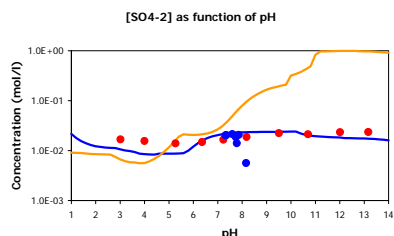
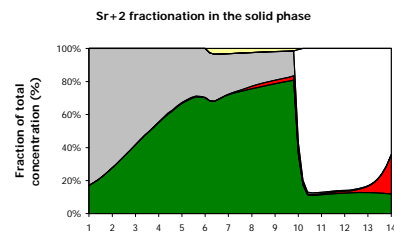
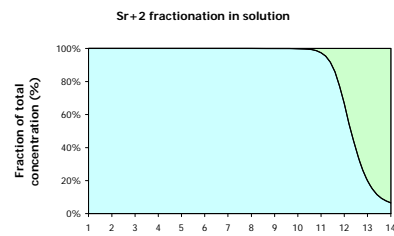
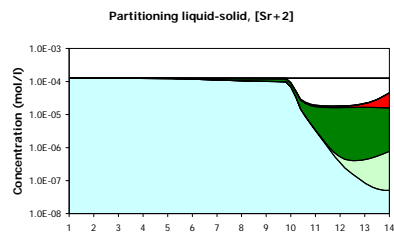
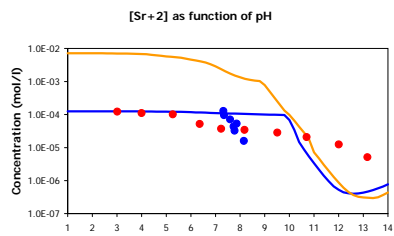
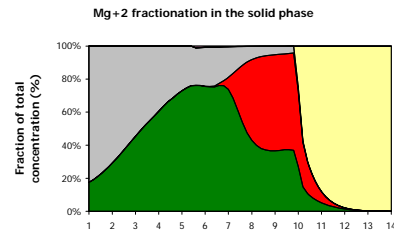
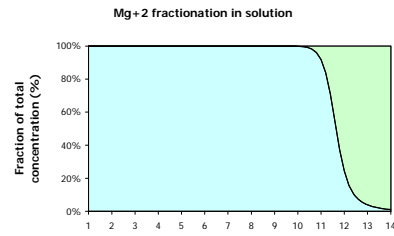
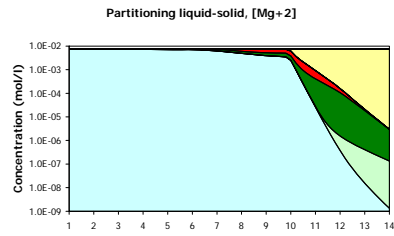
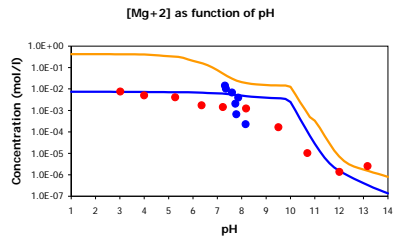




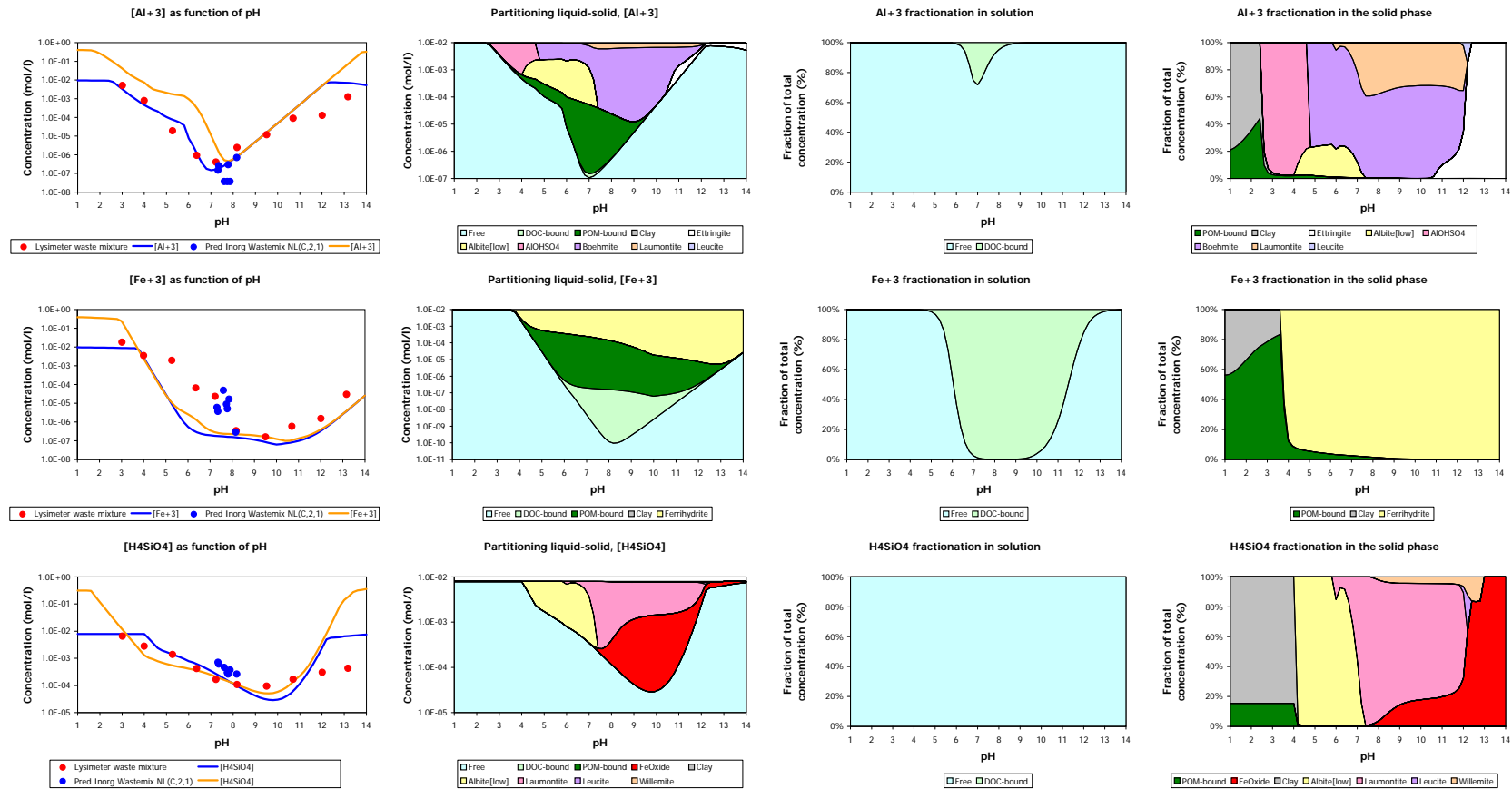


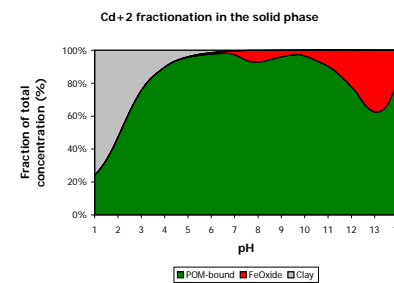
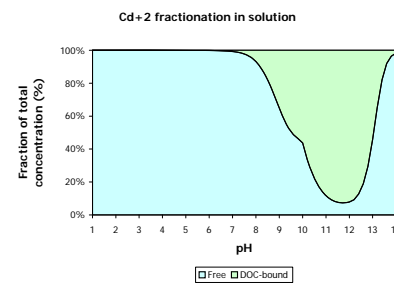
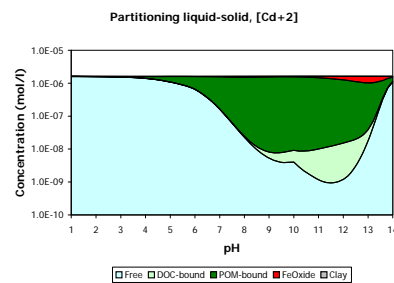
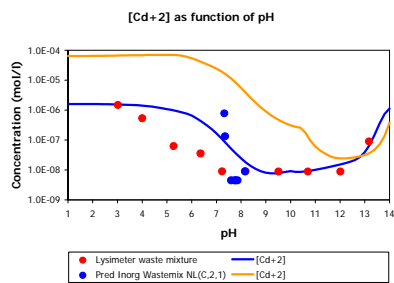
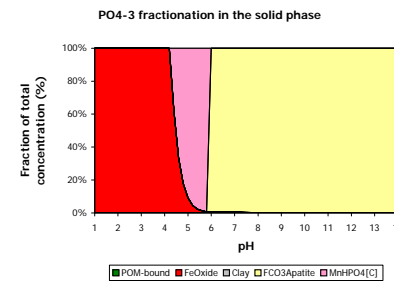
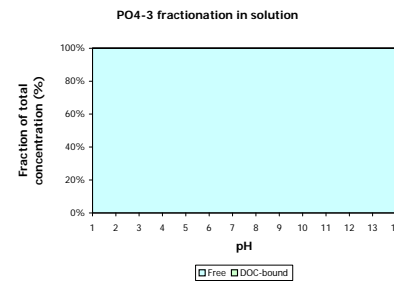
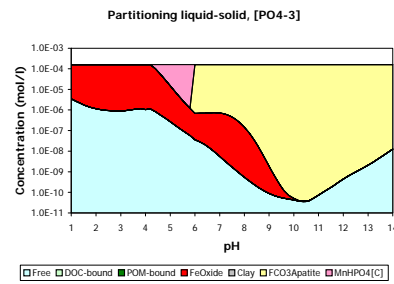
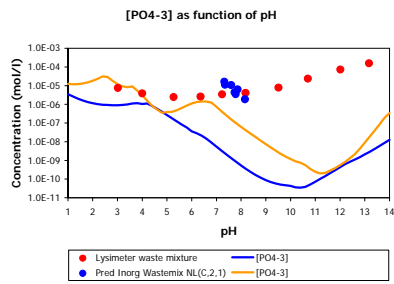
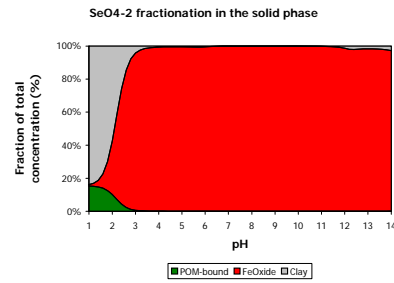
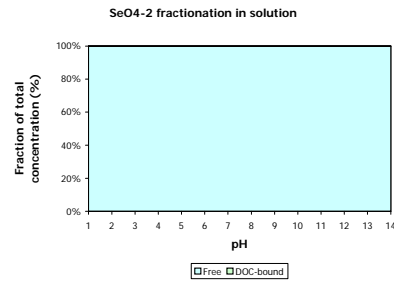
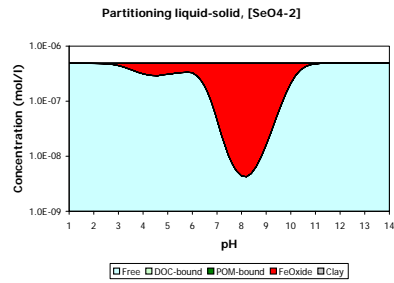
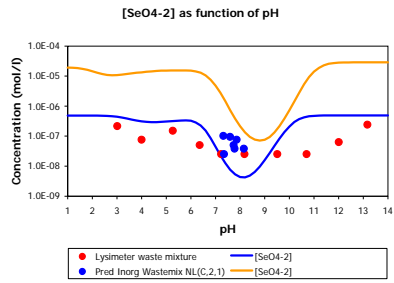




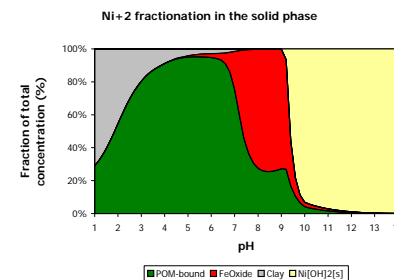
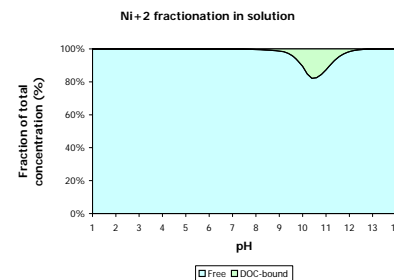
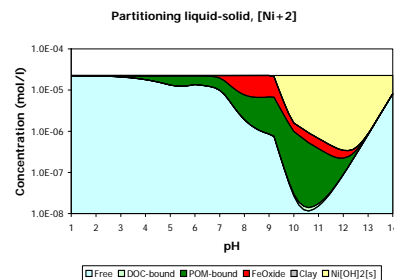
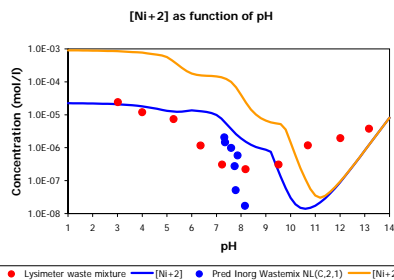
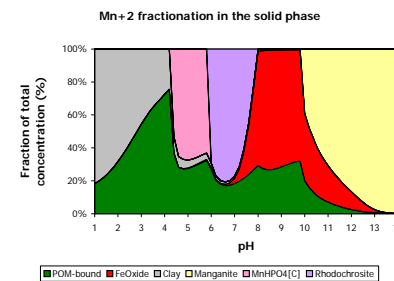
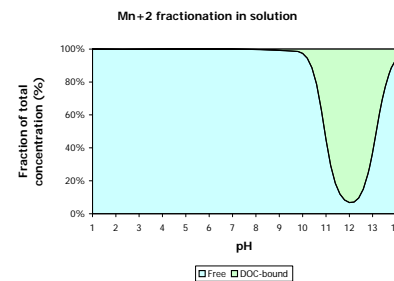
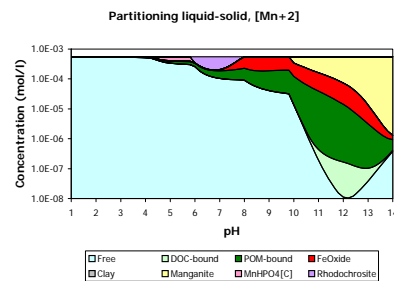
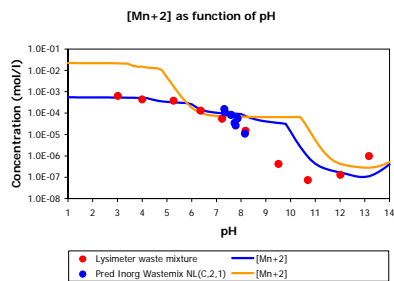
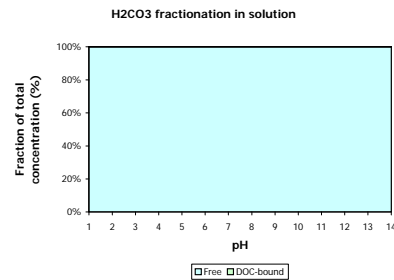
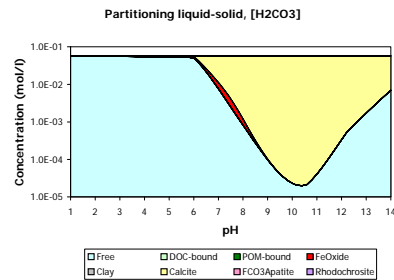
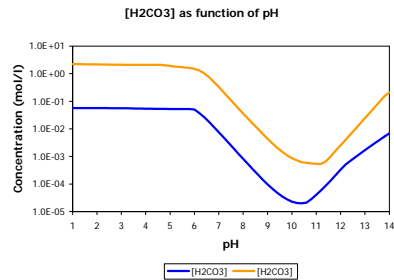
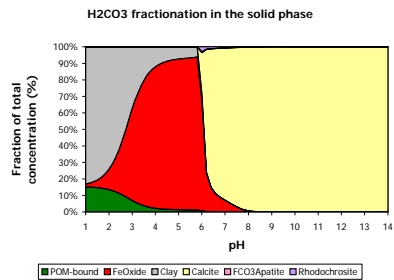


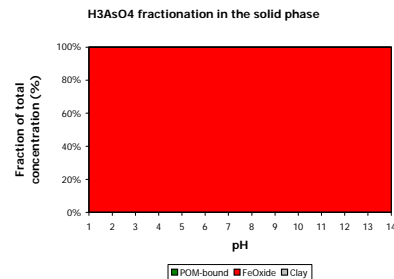
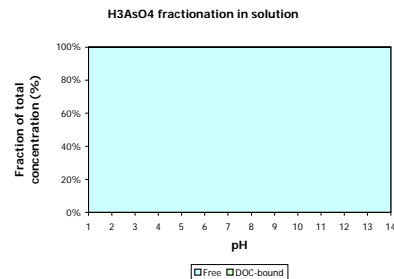
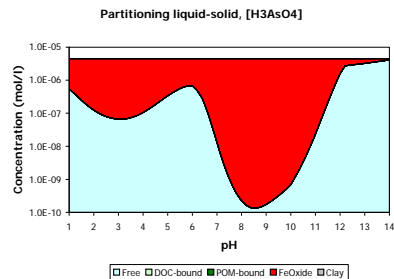
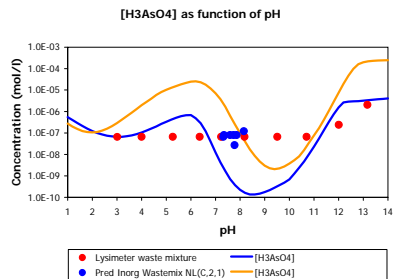
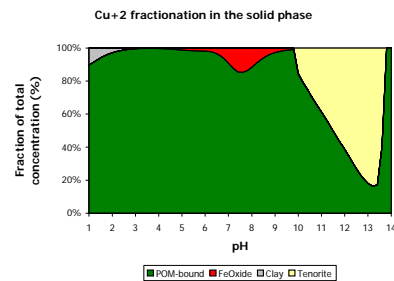
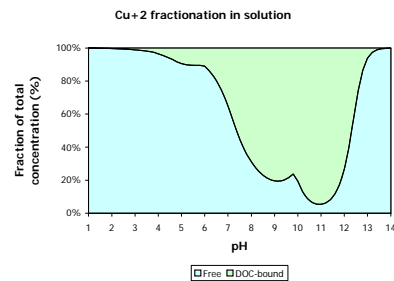
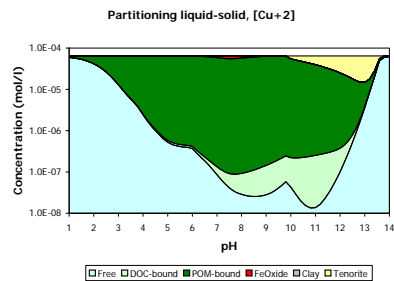
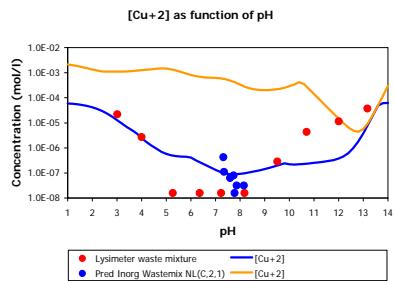
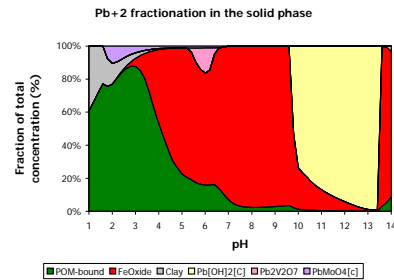
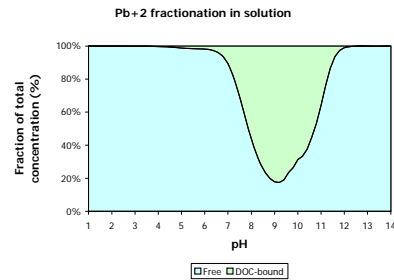
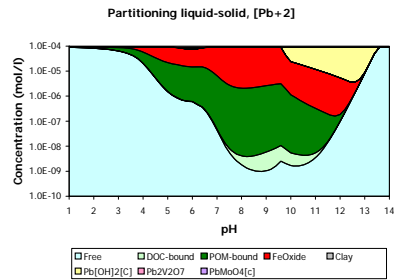
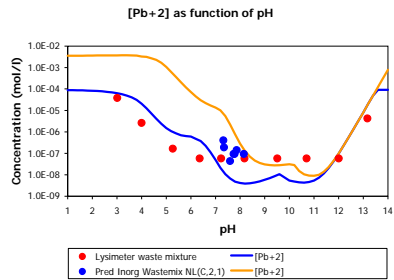
## Bijlage B pH afhankelijke uitloging lysimeter afval mengsel en geochemische modellering van de uitloging (Scenario 2)

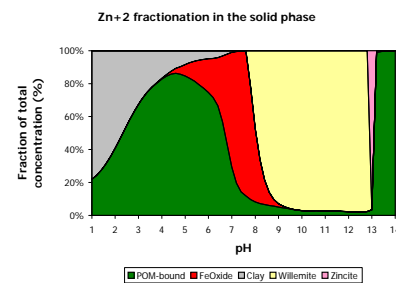
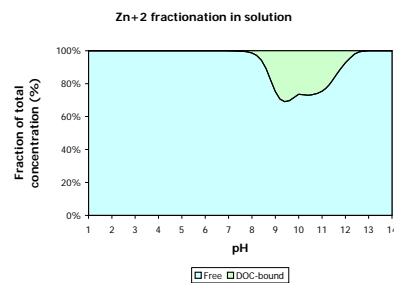
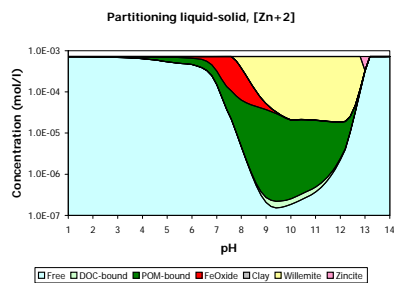
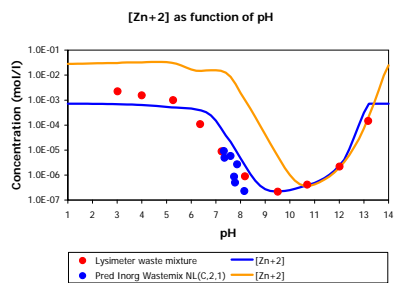
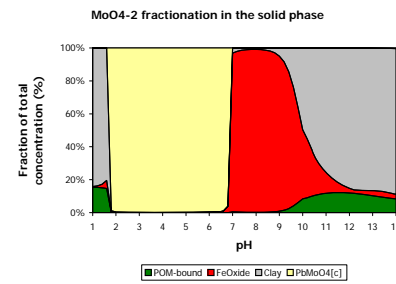
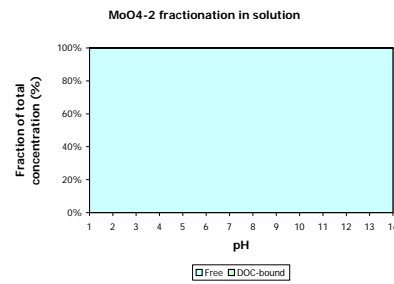
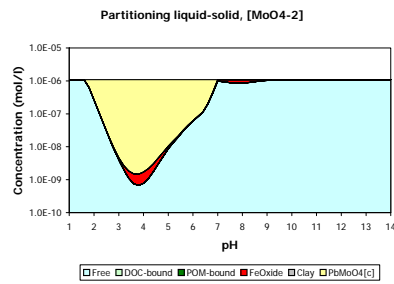
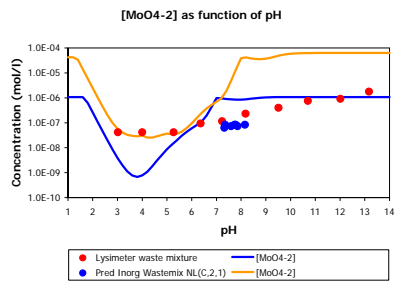
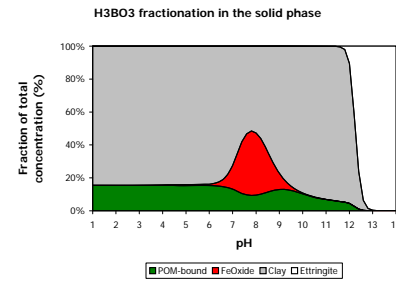
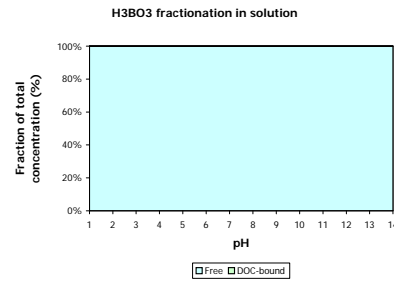
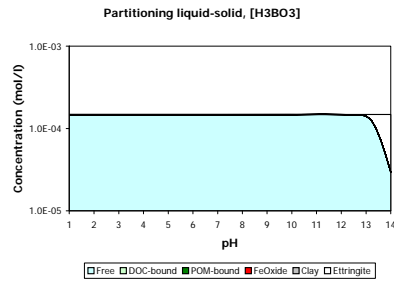
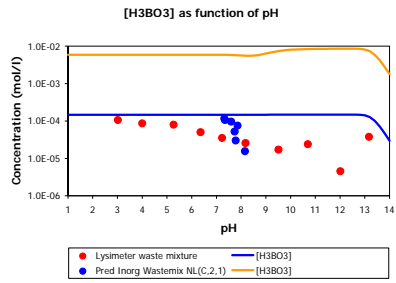


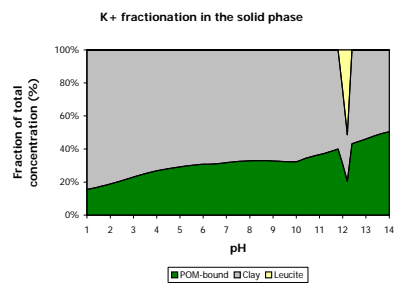
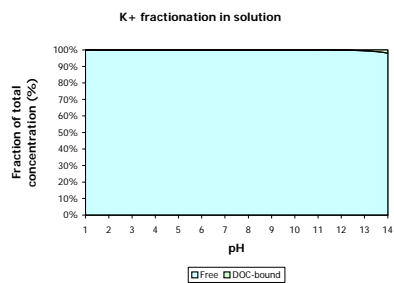
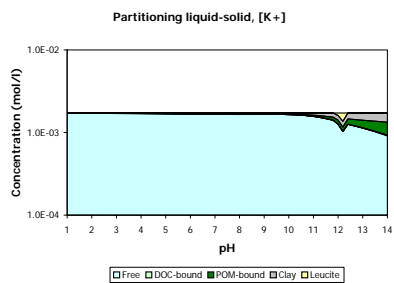
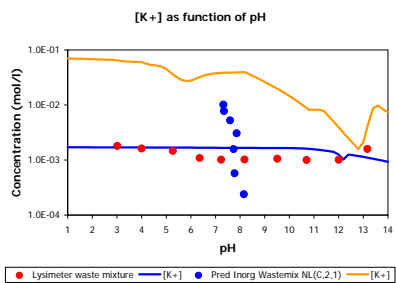
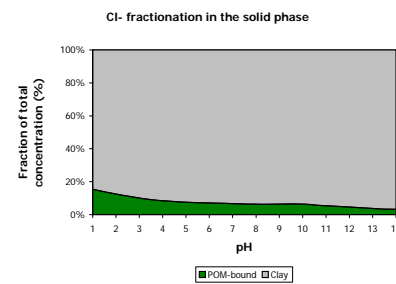
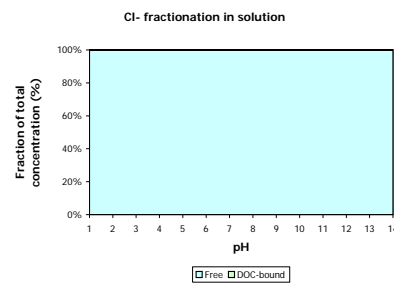
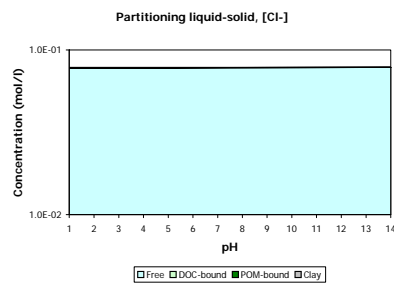
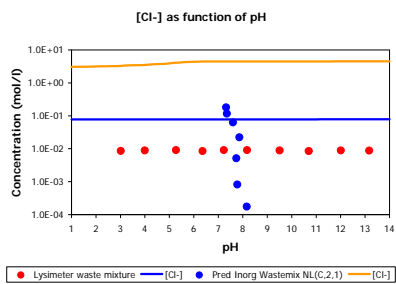
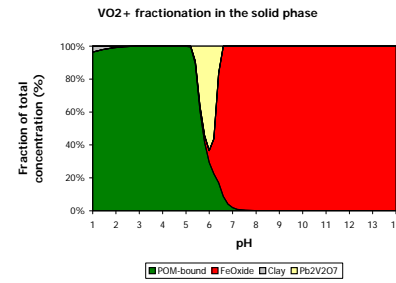
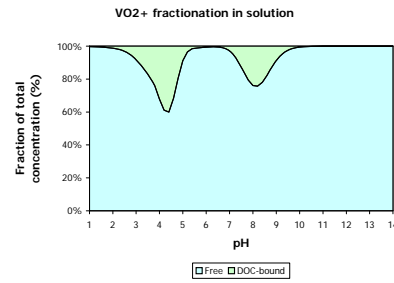
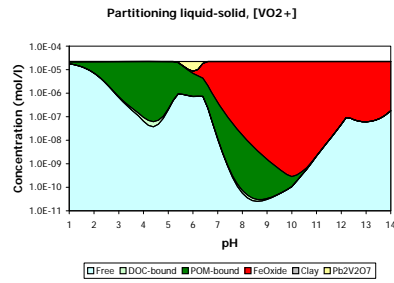
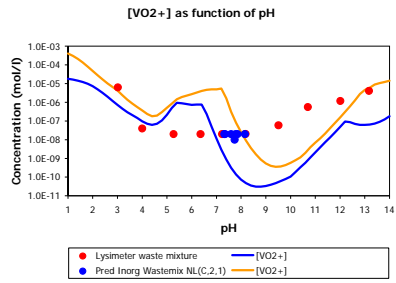


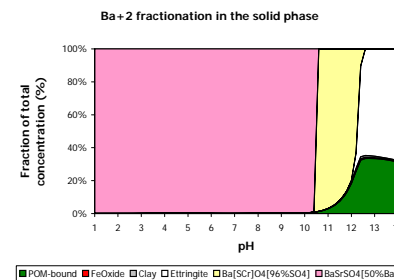
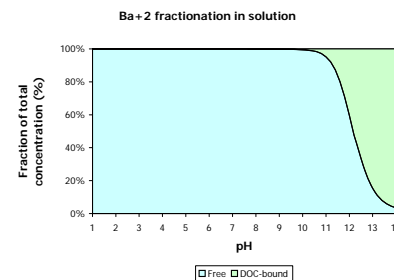
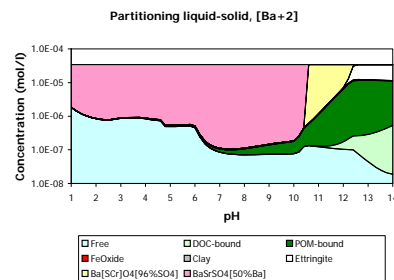
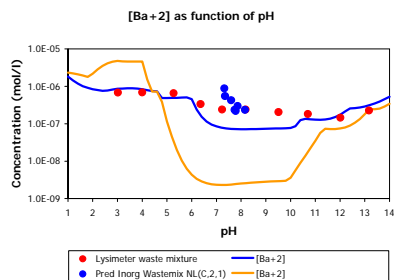
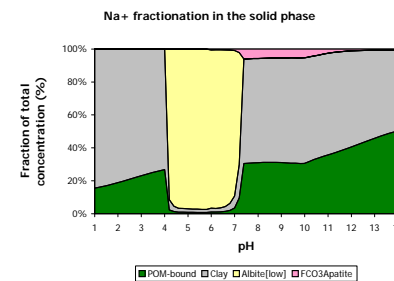
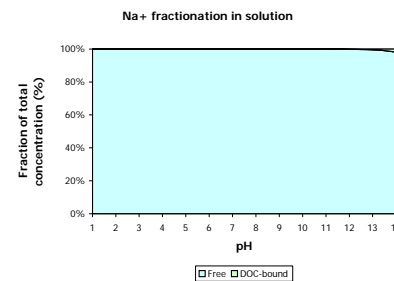
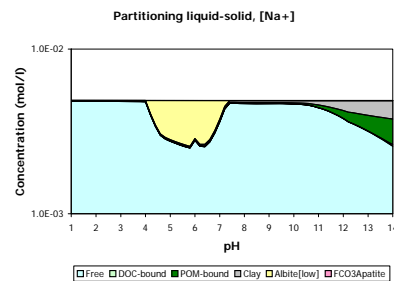
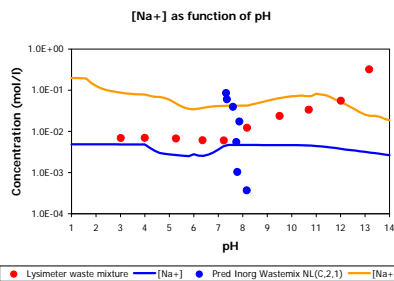
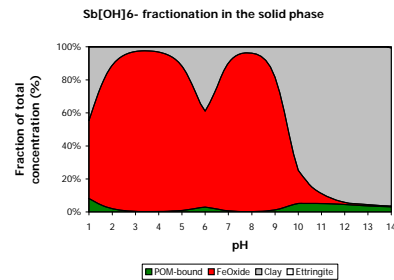
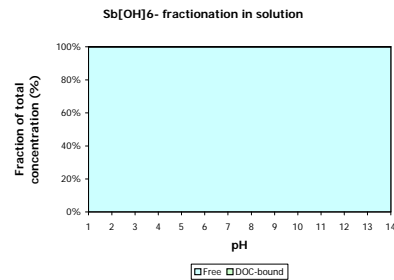
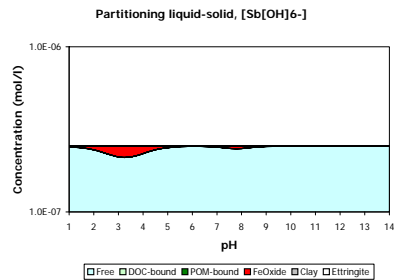
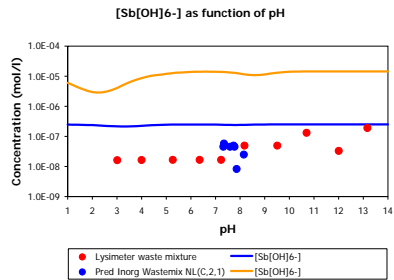


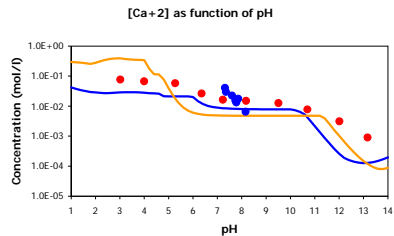




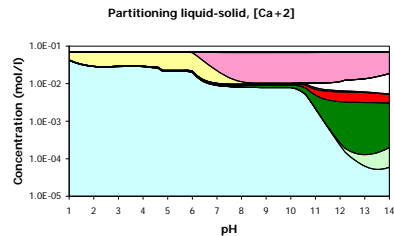




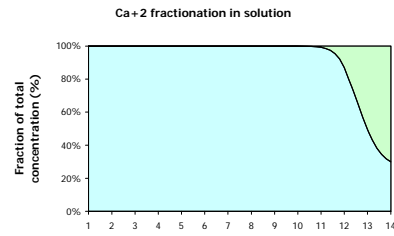




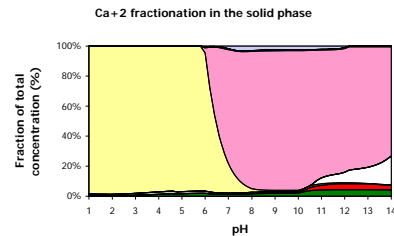
● Lysimeter waste mixture ● [Ca+2]  
● Pred Inorg Wastemix NL(C,2,1) ● [Ca+2]



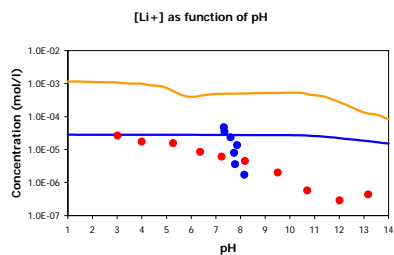
□ Free □ DOC-bound □ POM-bound □ FeOxide □ Clay □ Ettringite  
□ Anhydrite □ Calcite □ FeCO3Apatite □ Fluorite □ Laumontite



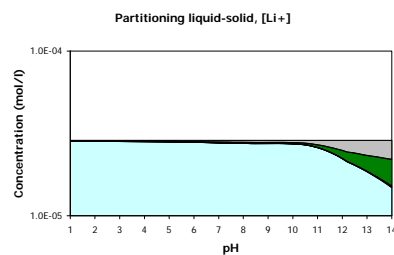
□ Free □ DOC-bound



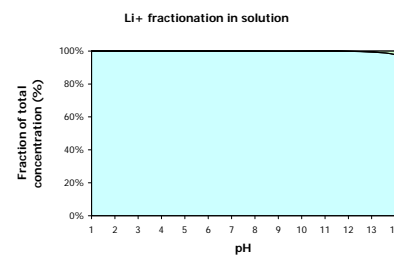
■ POM-bound ■ FeOxide ■ Clay ■ Ettringite ■ Anhydrite  
■ Calcite ■ FeCO3Apatite ■ Fluorite ■ Laumontite



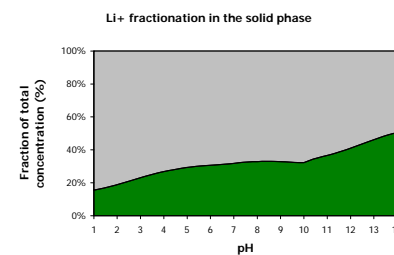
● Lysimeter waste mixture ● [Li+] ● Pred Inorg Wastemix NL(C,2,1) ● [Li+]



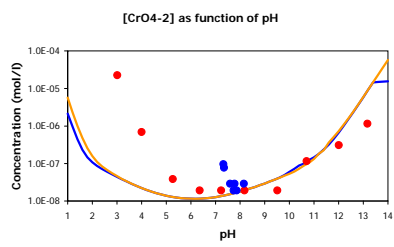
□ Free □ DOC-bound □ POM-bound □ Clay



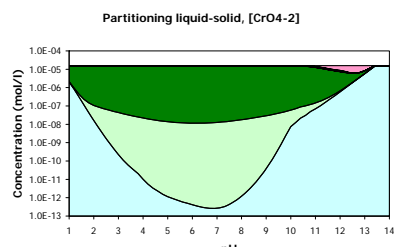
□ Free □ DOC-bound



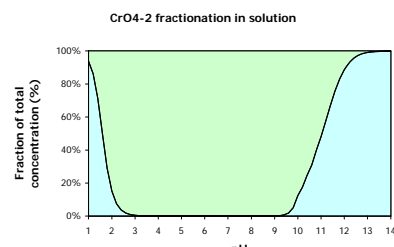
■ POM-bound ■ Clay



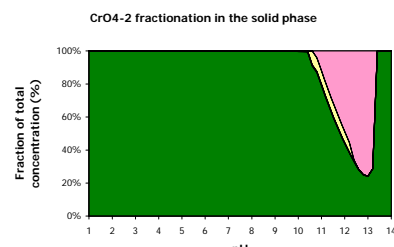
● Lysimeter waste mixture ● [CrO4-2]  
● Pred Inorg Wastemix NL(C,2,1) ● [CrO4-2]



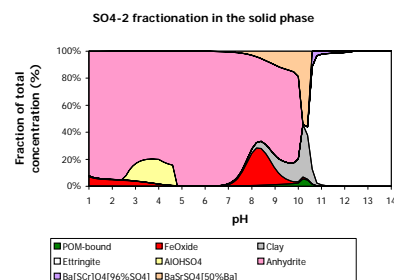
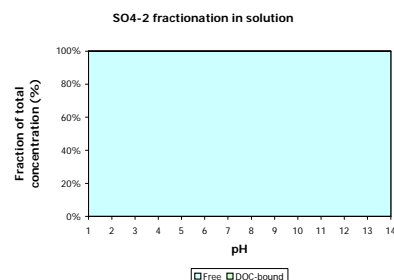
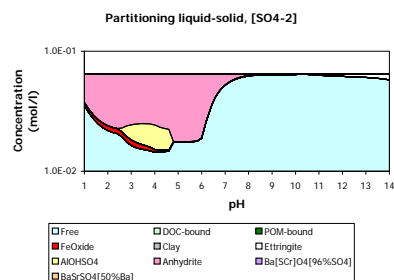
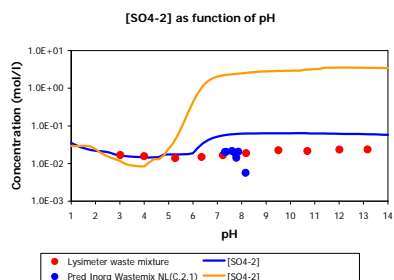
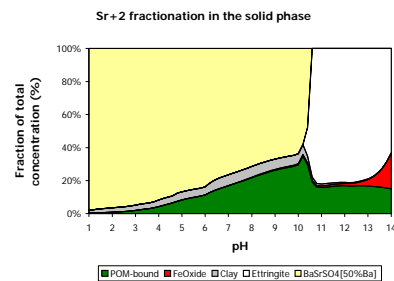
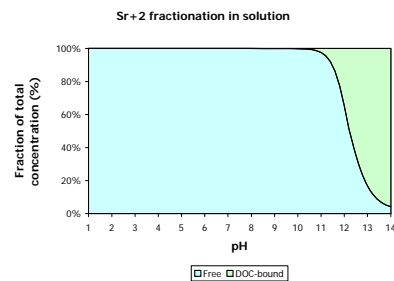
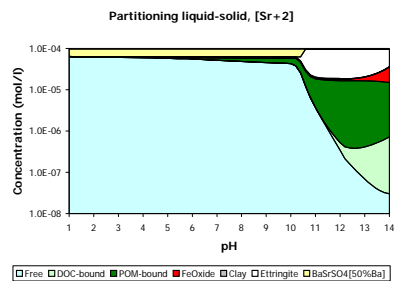
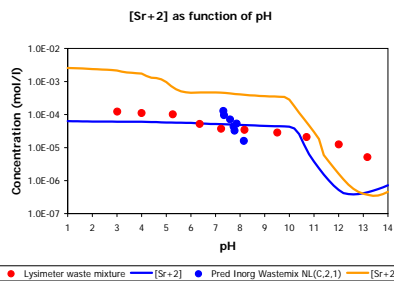
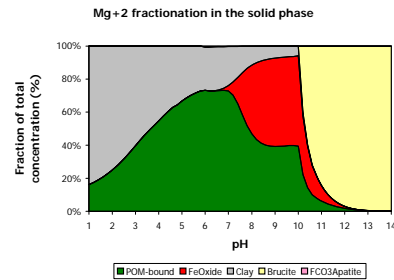
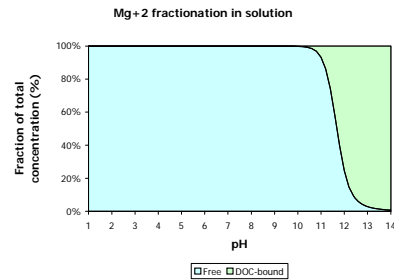
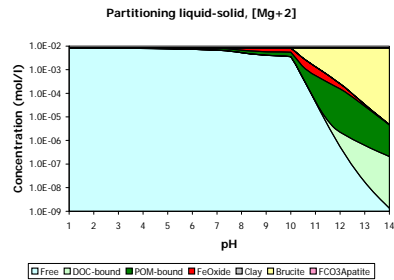
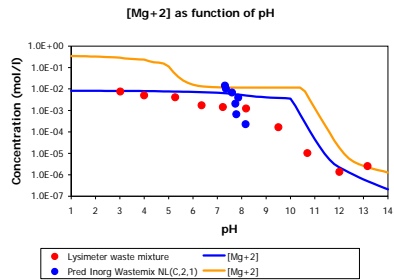
□ Free □ DOC-bound □ POM-bound □ FeOxide □ Clay □ Ba[SO4]04[96%SO4] □ Cr[OH]3[A]



□ Free □ DOC-bound



■ POM-bound ■ FeOxide ■ Clay ■ Ba[SO4]04[96%SO4] ■ Cr[OH]3[A]



# Bijlage C pH afhankelijke uitloging lysimeter afval mengsel met 20% AVI-bodemas en geochemische modellering van de uitloging (Scenario 3)

