

VALIDAZIONE DI UN MODELLO DI TRASPORTO DENSITÀ DIPENDENTE ATTRAVERSO L'USO DEL MASS RECOVERY RATE

VALIDATION OF A DENSITY DEPENDENT GROUNDWATER TRANSPORT MODEL USING MASS RECOVERY RATE

CHIARA SBARBATI^(*), NICOLÒ COLOMBANI^(*), MICÒL MASTROCICCO^(**) & MARCO PETITTA^(*)

^(*)Sapienza Università di Roma - Dipartimento di Scienze della Terra - P.Le Aldo Moro 5 - 00185 Roma (Italy)

^(**)Università di Ferrara - Dipartimento di Fisica e Scienze della Terra - Via Saragat 1 - 44122 Ferrara (Italy)

E-mail: chiara.sbarbati@uniroma1.it - Phone:+39/0649694238 fax:+39/064454729

RIASSUNTO

In questa nota breve viene descritto il processo di validazione di un modello di trasporto densità dipendente, precedentemente realizzato e pubblicato, attraverso l'utilizzo del Mass Recovery Rate, ossia il tasso di massa recuperata da 67 pozzi in pompaggio del Totale degli Idrocarburi e dei Cloruri disciolti in acqua, in un sito contaminato. La buona correlazione tra dati osservati e calcolati conferma la fattibilità di processi di validazione di modelli di flusso e trasporto sviluppati per siti contaminati, dove la bonifica avviene per mezzo di sistemi pump & treat, che necessitano quindi di strategie di gestione rapide e affidabili.

PAROLE CHIAVE: modelli numerici; validazione; acque sotterranee, trasporto di contaminanti

INTRODUZIONE

In questa nota breve si vuole discutere il processo di validazione di un modello di trasporto densità dipendente la cui realizzazione e calibrazione è stata precedentemente pubblicata (MASTROCICCO *et alii*, 2012).

Il parametro utilizzato per la validazione è il Mass Recovery Rate (MRR) riferito al Totale degli Idrocarburi (TPH) e dei Cloruri (Cl) disciolti in acqua, calcolato per ogni pozzo in emungimento facente parte del sistema di bonifica del sito.

I modelli di flusso e trasporto sono uno degli strumenti più importanti, al fine di rappresentare e comprendere i processi che avvengono all'interno di un acquifero (PROMMER *et alii*, 2000). Per realizzare modelli numerici realistici, è necessaria l'acquisizione di molti dati di campagna e la calibrazione di questi modelli diventa tanto più difficoltosa quanti più sono i parametri considerati. Il processo di validazione è l'ultima fase per completare un modello numerico; molti autori in letteratura (KONIKOW & BREDEHOEFT, 1992; ORESKES *et alii*, 1994; REFGAARD & HENRIKSEN, 2004) hanno trattato questo argomento esponendo differenti opinioni e definizioni. In generale, la validazione può essere definita come il processo di simulazione di un dato sistema in cui almeno uno dei parametri non è stato usato per la calibrazione (ILLMAN *et alii*, 2010); inoltre, durante il processo di validazione, il set di dati deve rimanere lo stesso che viene usato per la calibrazione (REFGAARD, 1997). Ad ogni modo il processo di validazione non è facile da realizzare ed un modello può considerarsi validato quando "possiede un range

ABSTRACT

In this short note is described the validation process of a density dependent groundwater transport model, previously implemented and published, using the mass recovery rate of dissolved Total Petroleum Hydrocarbons and Chloride from 67 pumping wells in a polluted site. A good fit between observed and calculated values was recorded, supporting the feasibility of flow and transport models validation in complex polluted sites where pump & treat remediation are applied and management strategies need to be rapid and robust.

KEY WORDS: numerical model; validation; groundwater; pollutants transport

INTRODUCTION

The aim of this short note is to discuss the validation process of a density dependent groundwater transport model previously published in this journal (MASTROCICCO *et alii*, 2012).

The parameter used for validation is the Mass Recovery Rate (MRR) of Total Petroleum Hydrocarbons (TPH) and chloride (Cl), calculated from each pumping wells of the remediation system.

Groundwater flow and transport models are one of the most important tools used to understand and represent the processes that take place in aquifers (PROMMER *et alii*, 2000). To build realistic numerical models, a large amount of field data are required and the calibration become more challenging as more are the parameters considered. The validation process is the last step to complete a numerical model; in literature many authors (KONIKOW & BREDEHOEFT, 1992; ORESKES *et alii*, 1994; REFGAARD & HENRIKSEN, 2004) discussed about this topic, offering different opinions and definitions. In general, model validation can be defined as the simulation of a given system in which at least one of the parameters is not used for calibration (ILLMAN *et alii*, 2010); in addition the data set for the validation process must remain the same used for calibration (REFGAARD, 1997). However, the validation process is not easy to realize and a model can be considered validate when it "possesses a satisfactory range of accuracy consistent with the intended application of the model" (REFGAARD & HENRIKSEN, 2004).

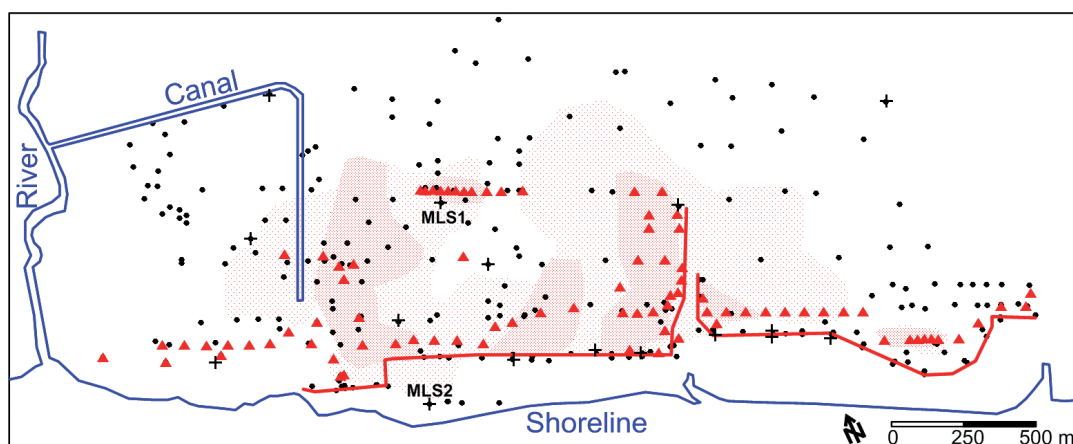


Fig. 1 - Rappresentazione schematica del sito: posizione dei piezometri di monitoraggio (cerchi neri), multivivello (croci nere), pozzi in pompaggio (triangoli rossi), barriera idraulica (linee rosse), estensione area LNAPL (area tratteggiata rossa agosto 2010, area puntinata rossa agosto 2002) da MASTROCICCO *et alii*, 2012
 - Schematic representation of the site: location of monitoring piezometers (black circles), MLS (black crosses), pumping wells (red triangles), HFB (red lines), LNAPL pools (red shaded areas in August 2010, red dotted areas in August 2002) from MASTROCICCO *et alii*, 2012

di accuratezza” che sia congruente con l’applicabilità del modello” (REFSGAARD & HENRIKSEN, 2004).

MATERIALI E METODI

Il modello di flusso e trasporto utilizzato per il processo di validazione è stato realizzato con SEAWAT 4.0 (LANGEVIN *et alii*, 2007) ed è lo stesso modello precedentemente descritto nell’articolo di MASTROCICCO *et alii* (2012). Nel sito in esame il livello di falda viene mensilmente monitorato in 250 piezometri, mentre le concentrazioni di TPH e Cl⁻ vengono analizzate due volte l’anno, sia nei piezometri che nei pozzi in emungimento. I parametri geologici, idrogeologici ed idrochimici utilizzati per i modelli di flusso e trasporto sono gli stessi della prima simulazione, riferita ad agosto 2010; l’unico cambiamento apportato riguarda il pacchetto scelto per simulare la distribuzione di concentrazione di TPH disciolto. In questa nuova simulazione, infatti, la zona sorgente di TPH è rappresentata attraverso il pacchetto Mass Loading Rate (MLR), generalmente utilizzato per simulare sorgenti puntuali o areali di fluidi in acquiferi (CHIANG & KINZELBACH, 1998).

Il pacchetto Mass Loading Rate è stato scelto per minimizzare gli errori numerici causati da un non realistico processo di “sorption” da parte di celle a concentrazione costante le quali possono assorbire il contaminante disciolto che vi fluisce attraverso nel caso in cui il plume disciolto abbia concentrazione maggiore della sorgente LNAPL.

L’estensione areale della distribuzione di LNAPL coincide con quella del precedente modello (Fig. 1) e il MLR viene assegnato alle celle in corrispondenza delle quali è stato rilevato, durante le campagne di misura, prodotto in fase separata; la massa di TPH che si discioglie giornalmente in queste celle è di 10 g/giorno o di 1 g/giorno, al fine di ottenere delle concentrazioni disciolte pari alle concentrazioni osservate nei piezometri con surnatante. Anche in questa nuova simulazione lo ione cloruro viene usato come tracciante ambientale, e le concentrazioni di input sono le stesse della precedente simulazione.

MATERIALS AND METHODS

The groundwater flow and transport model used for the validation process is SEAWAT 4.0 (LANGEVIN *et alii*, 2007), the same model adopted in MASTROCICCO *et alii* (2012). At the study site the water table is monthly monitored in 250 piezometers, while TPH and Cl⁻ are monitored in groundwater twice a year in piezometers and pumping wells. All geological, hydrogeological and hydrochemical parameters for both flow and transport are the same of the previous simulation, related to August 2010; except by the package used to simulate the concentration distribution of dissolved TPH. The source zone of TPH is currently simulated by the Mass Loading Rate (MLR) package, usually used for specifying the concentration of point or spatially distributed sources of fluids into the groundwater system (CHIANG & KINZELBACH, 1998). This package has been adopted to avoid numerical errors caused by unrealistic “sorption” of cells having constant concentration of dissolved TPH, when the dissolved plume shows concentration values higher than the source zone.

The areal extension of the LNAPL pools coincides with the previous model (Fig. 1) and the MLR has been assigned where LNAPL free phase has been found during the sampling survey; the daily dissolved rate is assumed 10 or 1 g of TPH/day, to simulate the range of concentration values observed in the monitoring wells. Even in this new simulation, Cl⁻ is used as environmental tracer, with the same input concentration distribution of the calibrated model.

The MRR is the parameter, not considered in the calibration process, used for the validation of the model. The MRR, expressed in kg/d, is calculated by the formula:

Il parametro di MRR, non incluso nel processo di calibrazione, è stato utilizzato per la validazione del modello. Questo parametro è espresso in kg/g ed è calcolato attraverso la formula:

$$MRR = \int (C_i * Q) dz \quad (1)$$

dove C_i è la concentrazione delle specie disciolte (mg/l) integrata lungo tutto il tratto filtrato (z) e Q è la portata del singolo pozzo facente parte del sistema di bonifica. Il risultato ottenuto è espresso in kg/g di massa di TPH disciolto recuperata.

In questo contesto i 67 pozzi della barriera idraulica possono essere considerati come il sistema di controllo di un “Integral Pumping Test” (GZYL *et alii*, 2011), che sia perpendicolare alla direzione del flusso ed in cui le zone di cattura dei pozzi in pompaggio sono coalescenti tra loro (HEROLD *et alii*, 2009). Il grado di correlazione è stato valutato attraverso il coefficiente di regressione lineare (R^2) e attraverso il coefficiente di efficienza del modello (E), definito da NASH & SUTCLIFFE (1970).

RISULTATI E DISCUSSIONE

Considerato il buon valore di correlazione tra valori misurati e calcolati ($R^2 = 0.93$), ottenuto dalle simulazioni di flusso mensili, la Fig. 1 mostra che il modello, anche utilizzando un differente pacchetto per la simulazione delle sorgenti di concentrazione, è in grado di simulare in modo soddisfacente la concentrazione e la massa di entrambe le specie disciolte. Infatti, il valore di R^2 tra valori di concentrazione calcolati e osservati è di 0.93 per il TPH e di 0.91 per il Cl⁻; di conseguenza anche i valori di MRR sono ben correlati con valori di R^2 di 0.94 e 0.89, rispettivamente per TPH e Cl⁻, e valori di E di 0.91 per TPH e 0.87 per il cloruro. Gli elevati valori dei due indicatori statistici selezionati confermano la robustezza del modello concettuale.

Per quanto riguarda il TPH, gli alti valori di massa recuperata che caratterizzano alcuni pozzi possono essere dovuti alla presenza di tracce di LNAPL richiamate dai pozzi, le quali influenzano notevolmente i valori di concentrazione osservata, facendo quindi registrare questi alti valori di massa recuperata. Infatti queste anomale concentrazioni si possono riscontrare solo quando piccole gocce di NAPL sono presenti nei campioni d’acqua, portando la concentrazione a valori prossimi o addirittura superiori all’effettiva solubilità del prodotto.

Questa situazione è limitata a pochi punti di misura che rappresentano meno del 10% del sistema in pompaggio (Fig. 2, valori maggiori di 4 kg/giorno). Per simulare questi particolari risultati, è stato necessario estendere la presenza di LNAPL non solo al layer superficiale, ma anche lungo la verticale quasi fino alla fine del tratto filtrato. Ciò ha permesso di simulare al meglio il MRR non influenzando, allo stesso tempo, l’evoluzione del plume di TPH che rimane calibrato sui valori di concentrazione osservati. Il valore della massa di TPH disciolto recuperata calcolata dal modello è di 48.3 kg/g ed è stata comparata con il valore osservato di 46.1 kg/g, ottenuto moltiplicando i valori di concentrazione per la portata di ogni pozzo. Questo risultato conferma l’accuratezza del processo

where C_i is the concentration of the dissolved species (mg/l) (both observed or calculated) integrated over the depth of the well screen (z) and Q is the pumping rate of each pumping well of the remediation system. The obtained results are expressed in kg/day of recovered TPH.

In this context the 67 wells of the hydraulic barrier can be considered like an “Integral Pumping Test control plane” (GZYL *et alii*, 2011) perpendicular to the main groundwater flow direction, with coalescent capture zones (HEROLD *et alii*, 2009). The goodness of the model fit was evaluated using both the linear regression coefficient (R^2) and the model efficiency coefficient (E), defined by NASH & SUTCLIFFE (1970).

RESULTS AND DISCUSSION

Beside a nearly constant monthly R^2 between calculated and observed heads of 0.93 (not shown), Fig. 1 shows that the model, even using a different concentration package, is able to satisfactorily simulate the concentration and mass for both the dissolved species taken into account. In fact, the R^2 between observed and calculated concentrations is 0.93 for dissolved TPH and 0.91 for Cl⁻. Consequently, also the MRR values are positively related, showing an R^2 of 0.94 and 0.89 respectively for TPH and Cl⁻ with E value of 0.91 and 0.87, respectively. The elevated values of the selected statistical indicators confirm the robustness of the conceptual model.

About TPH correlation, the high values of recovery mass characterizing few pumping wells, can be attributed to the presence of some traces of LNAPL pumped by the wells that seriously affect the observed concentrations respect with the real dissolved concentration of the aquifer, leading to very high value of the total recovered mass recovered. In fact, these anomalous concentration values can be only recorded when small droplets of NAPL are present in the groundwater samples, causing concentration values close or even beyond to the effective solubility.

This situation is limited to few wells that represent less than 10% of the pumping system (values higher than 4 kg/day of calculated TPH mass in Fig. 2). To simulate these results, it was necessary to extend the presence of LNAPL not only in the upper layer but downward near the bottom of the well screen, only for the above mentioned well cells.

This modification allowed to better simulate the MRR and, at the same time, did not lead to significant differences in the TPH plume evolution, which remained calibrated on the observed concentration values. The total recovery mass of dissolved TPH calculated by the model is 48.3 kg/day compared with the observed one of 46.1 kg/day, obtained multiplying the concentration values by the pumping rate. This result confirms the accuracy of the calibration and also allows to

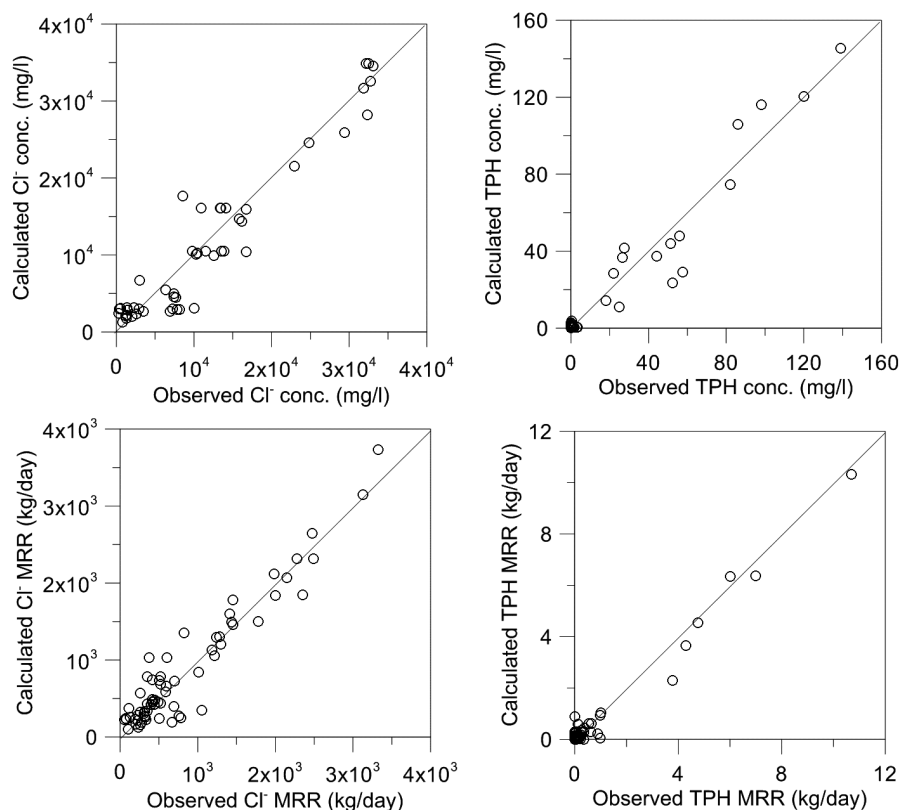


Fig. 2 - Diagrammi di confronto tra valori calcolati e osservati per le concentrazioni (in alto) e per il MRR (in basso), rappresentanti rispettivamente il Cl⁻ (sinistra) e il TPH (destra)

- Scatter plots of calculated and observed concentration (up) and MRR (down), respectively for Cl⁻ (left) and TPH (right)

di calibrazione e permette inoltre di validare il modello di trasporto precedentemente realizzato. Per quanto riguarda il Cl⁻, la validazione conferma l'esistenza di due sorgenti: una posizionata in corrispondenza del lato Sud del modello dovuta all'intrusione salina, e l'altra invece localizzata sul lato Nord-Est del modello.

CONCLUSIONI

Al fine di validare un modello di trasporto densità dipendente, precedentemente calibrato (MASTROICCO *et alii*, 2012), è stata effettuata una simulazione basata sul parametro MRR dei TPH e Cl⁻ disciolti usando i dati riferiti a 67 pozzi in pompaggio all'interno di un sito contaminato.

La correlazione tra dati di concentrazione osservati e calcolati è risultata buona e di conseguenza anche i valori di MRR hanno mostrato la stessa positiva correlazione, sia per i TPH che per i Cl⁻.

Questa nota breve avvalorata la fattibilità del processo di validazione per modelli di trasporto di inquinanti disciolti, realizzati per siti contaminati caratterizzati dalla presenza di barriere idrauliche, attraverso il confronto tra la massa di contaminante recuperata dai pozzi in pompaggio osservata e quella calcolata dal modello. Nel presente caso di studio la validazione è stata ottenuta sia per i contaminanti disciolti (TPH) che per i traccianti ambientali (Cl⁻), evidenziando la possibilità di considerare le barriere idrauliche come un integral pumping test realizzato alla scala di sito.

validate the proposed groundwater transport model.

Concerning the Cl⁻, the validation confirms the existence of two sources: one due to seawater intrusion along the Southern boundary of the model, and a second one located on the North-Eastern corner of the model.

CONCLUSIONS

To validate a density dependent groundwater transport model previously calibrated (MASTROICCO *et alii*, 2012), a simulation based on the MRR considering dissolved TPH and Cl⁻ has been implemented using data of 67 pumping wells in a polluted site.

A good fit between observed and calculated values of concentration was recorded. Consequently the MRR showed the same positive correlation for TPH and for Cl⁻.

This note corroborates the feasibility of validation process related to forward transport model of dissolved contaminants in polluted sites having active hydraulic barrier, by comparing the total mass of compounds recovered by pumping wells, with the simulated one. In the case study the validation has been obtained for dissolved contaminants (TPH) and environmental tracers (Cl⁻), testifying the possibility to consider the hydraulic barrier as an integral pumping test.

OPERE CITATE / REFERENCES

- CHIANG W.H. & KINZELBACH W. (1998) - *Processing Modflow: a simulation system for modeling groundwater flow and pollution. Processing Modflow 8.0 User Manual.*
- GZYL G., KURA K., KOTLARZ G., ERTEL T., KOHOUT P., TORNIELLI V., PEDRON R., ALBERTI L. & LORENZO C. (2011) - *Report on application and demonstration of integral groundwater investigation approach.* Central Europe Programme, FOKS (Focus on Key Sources of Environmental Risks).
- HEROLD M., PTAK T., BAYER-RAICH M., WENDEL T. & GRATHWHOL P. (2009) - *Integral quantification of contaminant mass flow rates in a contaminated aquifer: Conditioning on the numerical inversion of concentration-time series.* Journal of Contaminant Hydrology, **106**: 29-38.
- ILLMAN W.A., ZHU J., CRAIG A.J. & YIN D. (2010) - *Comparison of aquifer characterization approaches through steady state groundwater model validation: a controlled laboratory sandbox study.* Water Resources Research, **46**: W04502.
- KONIKOW L.F. & BREDEHOEFT J.D. (1992) - *Ground water models cannot be validated.* Advanced Water Resource, **15** (1): 75-83.
- LANGVIN C.D., THORNE D.T. JR., DAUSMAN A.M., SUKOP M.C. & GUO W. (2007) - *SEAWAT Version 4: a computer program for simulation of multi-species solute and heat transport: U.S. Geological Survey Techniques and Methods.* Book **6**: Chapter A22, 39 pp.
- MASTROCICCO M., COLOMBANI N., SBARBATI C. & PETITTA M. (2012) - *Assessing the effect of saltwater intrusion on a petroleum hydrocarbons plume via numerical modeling.* Water, Air, and Soil Pollution, **223**: 4417-4427.
- NASH J.E. & SUTCLIFFE J.V. (1970) - *River flow forecasting through conceptual models part I - A discussion of principles.* Journal of Hydrology, **10** (3): 282-290.
- ORESKE N., SHRADERFRECHETTE K. & BELITZ K. (1994) - *Verification, validation, and confirmation of numerical models in the earth sciences.* Science, **263** (5147): 641-646.
- PROMMER H., BARRY D.A. & DAVIS G.B. (2000) - *Numerical modeling for design and evaluation of groundwater remediation schemes.* Ecological Modelling, **128** (2-3): 181-195.
- REFSGAARD J.C. (1997) - *Parameterisation, calibration and validation of distributed hydrological models.* Journal of Hydrology, **198** (1-4): 69-97.
- REFSGAARD J.C. & HENRIKSEN H.J. (2004) - *Modelling guidelines terminology and guiding principles.* Advanced Water Resource, **27** (1): 71-82.

Received September 2013 - Accepted November 2013

