



Doctoral Thesis

Stochastic analysis of contaminant mass fluxes measured in multi-level-well fences

Author(s):

Schwede, Ronnie Lothar

Publication Date:

2009

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-005959276> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

Diss. ETH No. 18724

Stochastic Analysis of Contaminant Mass Fluxes Measured in Multi-Level-Well Fences

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY
ZURICH

for the degree of
Doctor of Science

presented by
RONNIE LOTHAR SCHWEDE

Dipl.-Math.
born August 22, 1979
in Detmold, Germany

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Peter Reichert, examiner
Prof. Dr.-Ing. Olaf A. Cirpka, co-examiner
Prof. Dr.-Ing. Wolfgang Kinzelbach, co-examiner

2009

Summary

Estimating the total mass flux of contaminants crossing a control plane is an essential metric in the assessment of both natural attenuation and active remediation techniques for contaminated aquifers. The total mass flux passing a control plane can be estimated by measuring concentration and groundwater velocity or the mass flux directly by so called fluxmeters. These measurements can be taken in several wells at various depths in which the wells typically are within a plane perpendicular to the main flow direction. This kind of setup is called a multi-level-well fence. The data obtained in a multi-level-well fence provide point like measurements within the hypothetically formed control plane. Often the number of measurements within the plane is limited, so that techniques for interpolating the existing measurements are needed. I will present a method to estimate the total mass flux passing the control plane and calculate its uncertainty. In groundwater resources management, more precisely in risk analysis techniques, the uncertainty of an estimate may be as important as the estimate itself. This holds in particular in quantifying the effect of natural attenuation or the efficiency of active remediation techniques when estimates using two control planes at different distances are compared. In these cases an estimate is useless as long as its uncertainty is unknown, because a priori it is not known if a seemingly observed decrease of the total mass flux is statistically significant or may be within the uncertainty range of the estimate.

The approach developed in this thesis is based on geostatistical inverse modeling. Available hydrological data are used to infer a hydraulic conductivity field which is conditioned in such a way that it meets the measurements and the prior given statistical parameters. As statistical parameters I assume an uncertain mean value of the conductivity field and the auto-correlated variability about this mean. The variance and the correlation length of the conductivity field are assumed to be known. Statistically the conductivity field is completely determined by this prior information and the assumption that the conductivity field is a second-order stationary Gaussian field with exponential covariance function. Thus, the prior statistical distribution of dependent variables, such as hydraulic head and concentration could be calculated (or modeled via Monte Carlo simulation). The conditioning of the prior distribution on measurements of dependent variables leads to conditional distributions of the log-conductivity field and of dependent variables for which no measurements exist. The first and second statistical moments of the conditional distributions can be used as estimator and measure of uncertainty.

The proposed approach for the interpolation of concentration data and the estimation of total

mass flux is based on inverse modeling using conditional Monte Carlo simulations to obtain the conditional statistics. This implies that many different independent realizations of the hydraulic conductivity field are generated, which are conditioned on the available measurements and meet the prior given statistical properties. The main advantages of the proposed method are: (1) the determined underlying hydraulic conductivity field is the truly independent material quantity, and (2) the method is not restricted to particular hydrological measurements. It can handle all types of hydrological measurements which can be included in the chosen inversion kernel. For the latter I chose the quasi linear geostatistical approach by Kitanidis (1995). At the current stage of development, the source location, size and maximal concentration of the compound must be known. Furthermore I included only first order decay in my calculations, which means that all chemical reactions must be summarized by a first order decay coefficient. I show that the developed method works in hypothetical test cases and outperforms classical methods not only in the accuracy of the estimation but also in giving reliable and narrow uncertainty bounds, which is extremely important for risk analysis methods. My approach of estimating the total mass flux from point like concentration measurements has been accepted for publication in *Journal of Contaminant Hydrology* (Schwede and Cirpka, 2009b). It represents the end point of my dissertation.

During the development of the proposed methods, several intermediate results were obtained which by themselves are of interest to the geostatistical inverse modeling community. I address these results as the different milestones of my work. These milestones are summarized as follows:

1. In a preliminary study, I showed by (unconditional) Monte Carlo simulations and by a newly developed semi-analytical method, that the statistical distribution of steady-state concentration at any given point is not Gaussian but beta-like, which prohibits using many classical geostatistical methods relying on Gaussianity. Even methods like linear uncertainty propagation and kriging in simple form might lead to erroneous results. With the new semi-analytical methods I can very fast and fairly accurately approximate the statistical distribution of concentration at a given location considering any sampling volume of the concentration measurement. The semi-analytical method has been verified by (unconditional) Monte Carlo simulations. Furthermore the method contributed to determine concentration statistics for mixing-controlled reactive transport (Cirpka et al., 2008). The approach was published in *Water Resources Research* (Schwede et al., 2008).
2. I developed a method for stabilizing gradient-based geostatistical inversion methods using concentration data and successfully applied this concept to the chosen inversion scheme (the quasi linear geostatistical approach by Kitanidis (1995)). This approach is also used in the conditional Monte Carlo simulation for the interpolation of concentration data and the estimation of the total mass flux. Solute transport in typical groundwater applications is advection dominated, which means that advective transport is much faster than dispersive transport. As a consequence, the fringe of a solute plume is very narrow, implying that concentration measurements are seldom located at the plume fringe. This may be fatal for gradient-based inversion methods because the concentration gradient is significant

only at the fringe of the solute plume. Many of the mostly sparsely distributed concentration measurements might therefore be useless in common inversion schemes, because any gradient based method fails if there is no gradient. Increasing the sampling volume of concentration measurements results in more measurements covering the solute fringe and thus having a significant concentration gradient. Obtaining the right sampling volume for each measurement in the field would be problematic. The method I developed uses the hypothetical gradient associated to the concentration measurements with increased sampling volume only in early stages of its numerical calculation. This stabilizes the gradient-based inversion scheme and does not need additional concentration measurements with increased sampling volume. The developed method for this milestone of my dissertation was published in *Advances in Water Resources* (Schwede and Cirpka, 2009c).

3. The last task before obtaining an estimation approach of the total mass flux passing a control plane, is to develop an interpolation scheme for concentration data within the control plane. The proposed method is based on conditional Monte Carlo realizations, which are generated using the inversion scheme developed previously. This procedure not only allows to interpolate the concentration, but also gives the uncertainty of the interpolation. Another advantage of this approach is that not only concentrations are interpolated, but all measured parameters depending on the hydraulic conductivity field can be accounted for. The spatial resolution of the interpolation depends on the spatial resolution of the conditional Monte Carlo simulation and can thus theoretically be made infinitesimally small by discretizing the domain of interest in infinitesimally small cells. This contribution has been accepted for publication in *Ground Water* (Schwede and Cirpka, 2009a).

Throughout the thesis I have used hypothetical test cases, because this thesis focuses on the development of new conceptual and mathematical methods where it is important to show the efficiency and accuracy of the proposed method. As the real pore-space geometry of a porous aquifer is never known and thus the exact hydraulic conductivity cannot be known either, a validation of new methods by real data is impossible. This can easily be overcome by using hypothetical test cases, in which the hydraulic conductivity at all (discrete) locations is perfectly known. Of course, hypothetical hydraulic conductivity fields are always related to the method with which they are generated and may lack the characteristics of a real aquifer. I see the necessity of applying the proposed method to real data, which might be equally complex as the model development presented here but dealing with totally different problems. These applications are beyond the scope of my thesis and may be the topic of future studies.

Once the proposed method for the total mass flux estimation of a contaminant passing a control plane has also passed the practical validation, the method will provide a quantitative basis to assess the efficiency of natural attenuation as an alternative to active remediation of contaminated aquifers. It will thus contribute to more rational decisions in sustainable groundwater resources management.

Zusammenfassung

Die Bestimmung des Massenflusses eines Schadstoffs durch eine Kontrollebene ist ein wichtiges Mass für die Quantifizierung und Bewertung sowohl des natürlichen Abbaus als auch aktiver Sanierungsmassnahmen. Für die Berechnung des Massenflusses eines Stoffes sind entweder Messungen der Stoffkonzentration und der Fliessgeschwindigkeit des Grundwassers nötig oder die direkte Messung von Massenflüssen mit neuartigen Messgeräten. Die Messungen, die für die Berechnung des Massenflusses notwendig sind, können beispielsweise in einer Reihe so genannter multi-level Bohrlöcher durchgeführt werden, die so angeordnet sind, dass sie eine Kontrollebene bilden (multi-level-well fence). Die Messungen der Konzentration, der Grundwasserfliessgeschwindigkeit oder auch des direkten Massenflusses können in den multi-level Bohrlöchern in verschiedenen Höhen durchgeführt werden. Diese Anordnung der Messstellen erlaubt es, punktartige Messungen der benötigten Grössen in der zu untersuchenden Kontrollebene zu erheben. Im Allgemeinen reicht die Anzahl der punktartigen Messungen innerhalb der Kontrollebene jedoch in keinsten Weise für eine hinreichend genaue Bestimmung des Massenflusses aus. Hieraus folgt sofort, dass Interpolationsmethoden nötig sind, um die erforderliche Dichte der Daten gewährleisten zu können. In meiner Dissertation stelle ich ein neues Konzept zur Bestimmung des Massenflusses und zur Interpolation von Konzentrationsdaten vor. Diese Methode bestimmt nicht nur den Schätzwert des Massenflusses eines Stoffes sondern auch die zugehörige Unsicherheit. Letzteres gilt auch für die entwickelte Methode zur Interpolation von Konzentrationsdaten. In der Bewirtschaftung von Grundwasserressourcen, genauer gesagt in der Risikoanalyse von Schadensfällen ist die Unsicherheit der Schätzung ebenso wichtig wie die Schätzung selber. Als Beispiel sei hier die Quantifizierung des natürlichen Schadstoffabbaus im Grundwasserleiter gegeben. Angenommen der Massenfluss eines Schadstoffs wird in zwei Kontrollebenen in unterschiedlichen Abständen zur Schadstoffquelle abgeschätzt, dann sind diese Werte ohne Angabe der Unsicherheit nutzlos, da keinerlei Aussage getroffen werden kann, ob eine eventuelle Reduktion des Massenflusses statistisch signifikant ist oder im Bereich des Schätzfehlers liegt.

Die von mir entwickelte Methode basiert auf geostatistischer inverser Modellierung. Hierbei wird das hydraulische Durchlässigkeitsfeld aus den zur Verfügung stehenden hydraulischen Daten abgeschätzt. Das berechnete hydraulische Durchlässigkeitsfeld ist so bestimmt, dass es sowohl die Messungen der abhängigen Parameter innerhalb der gegebenen Messungenauigkeit widerspiegelt als auch die vorher bekannten statistischen Eigenschaften aufweist. Im Einzel-

nen sind die bekannten statistischen Parameter ein unsicherer Mittelwert des hydraulischen Durchlässigkeitsfelds und die Autokorrelationsfunktion dieses Mittelwerts. Die Varianz und die Korrelationslänge des hydraulischen Durchlässigkeitsfelds habe ich als bekannt angenommen. Im statistischen Sinn ist das hydraulische Durchlässigkeitsfeld vollständig bestimmt durch diese statistischen Parameter und die Annahme, dass das hydraulische Durchlässigkeitsfeld ein von zweiter Ordnung stationäres Gauß-Modell mit exponentieller Kovarianzfunktion ist. Somit können die statistischen Verteilungen von abhängigen Variablen, wie der Piezometerhöhe und der Schadstoffkonzentration berechnet werden (oder mittels Monte Carlo Simulation abgeschätzt werden). Die Konditionierung dieser vorher bekannten statistischen Verteilungen der log-Durchlässigkeit auf Messungen von abhängigen Variablen führt zu konditionierten statistischen Verteilungen des hydraulischen Durchlässigkeitsfelds und von abhängigen Variablen, für die keine Messungen existieren. Die ersten und zweiten statistischen Momente dieser konditionierten Verteilungen können als Schätzwert und Schätzunsicherheit benutzt werden.

Die von mir vorgelegten Verfahren zur Interpolation von Konzentrationsdaten und zur Abschätzung des Massenflusses basieren beide auf konditionierten Monte Carlo Simulationen. Dies bedeutet, dass viele Realisationen von hydraulischen Durchlässigkeitsfeldern unabhängig voneinander erzeugt werden, wobei jedes Durchlässigkeitsfeld für sich die gegebenen Messungen hydraulischer Parameter widerspiegelt und auch den vorher gegebenen statistischen Parametern gehorcht. Die wesentlichen Vorteile dieser Methode sehe ich darin, dass erstens durch die Bestimmung des hydraulischen Durchlässigkeitsfeldes die wirklich unabhängige Materialeigenschaft bestimmt wird. Zweitens ist die Methode nicht beschränkt auf bestimmte hydrologische Messungen. Es ist möglich, jede Messung einer hydrologischen Größe zu benutzen, die von dem gewählten Inversionsalgorithmus unterstützt wird. Neben den gewaltigen Anforderungen an Rechenleistung ist derzeit eine weitere Voraussetzung der beschriebenen Methode die genaue Kenntnis der Schadstoffquelle. Genau gesagt müssen Lage, Größe und Maximalkonzentration der Schadstoffquelle bekannt sein. In der derzeitigen Implementierung wird ausschliesslich ein Abbau erster Ordnung des Schadstoffs unterstützt, somit müssen alle auftretenden chemischen Reaktionen durch den Abbaukoeffizienten erster Ordnung abgebildet werden. Trotz solcher Einschränkungen habe ich in dieser Arbeit gezeigt, dass die vorgestellte Methode in hypothetischen Testszenarien klassische Methoden nicht nur in der Genauigkeit der Schätzung übertrifft, sondern zusätzlich verlässliche und kleinere Fehlerschranken liefert, was wiederum sehr wichtig für die Risikoanalyse ist. Die von mir vorgestellte Methode zur Abschätzung des Massenflusses aus punktförmigen Konzentrationsmessungen ist zur Publikation bei *Journal of Contaminant Hydrology* (Schwede and Cirpka, 2009b) akzeptiert worden und bildet den Abschluss meiner Dissertation.

Während der Entwicklung der oben vorgestellten Methode ergaben sich einige Ergebnisse, die für sich alleine schon von Interesse für den Bereich der inversen Modellierung sind. Dies zeigen die im Folgenden beschriebenen verschiedenen Meilensteine, die zum Gesamtergebnis führten:

1. Eine theoretische Vorabstudie, die mittels (unkonditionierten) Monte Carlo Simulationen und einem neu entwickelten halb-analytischen Verfahren die statistische Verteilung von Konzentrationsdaten bestimmt, hat gezeigt, dass stationäre Konzentrationen nicht normal-

verteilt sind, sondern am ehesten mittels einer Beta-Verteilung modelliert werden können. Dieses Ergebnis hatte zur Folge, dass viele klassische geostatistische Verfahren, welche Normalverteiltheit voraussetzen, nicht anwendbar sind. Auch Methoden wie zum Beispiel die lineare Unsicherheitsfortpflanzung und Kriging in seiner einfachsten Form, welche keine Normalverteilung zwingend voraussetzen, können zu fehlerhaften Ergebnissen führen. Das in dieser Studie vorgestellte halb-analytische Verfahren ist in der Lage, sehr schnell und ziemlich genau die statistische Verteilung von Konzentrationen in Abhängigkeit des Messvolumens an gegebenen räumlichen Koordinaten zu errechnen. Die halb-analytische Methode wurde überprüft durch (unkonditionelle) Monte Carlo Simulationen. Ausserdem ist die Methode zur Bestimmung von Konzentrationsstatistiken im durchmischungskontrolliertem reaktiven Transport benutzt worden (Cirpka et al., 2008). Hierdurch wurde gleichzeitig die Anwendbarkeit des halb-analytischen Verfahrens zur Bestimmung von Konzentrationsstatistiken gezeigt. In *Water Resources Research* wurde die beschriebene Vorgehensweise veröffentlicht (Schwede et al., 2008).

2. Als Grundlage für die Berechnungen zur Bestimmung des Massenflusses und zur Interpolation von Konzentrationsdaten mittels konditioneller Monte Carlo Simulation, präsentiere, implementiere und teste ich eine konzeptionelle Methode, die gradientenbasierte geostatistische Methoden für die Inversion von Konzentrationsdaten stabilisiert. Der Schadstofftransport im Grundwasser ist typischerweise advektionsdominiert. Dies bedeutet, dass der advektive Stofftransport viel schneller ist als der dispersive. Als Konsequenz ist der Rand einer Abstromfahne eines Schadstoffs sehr schmal, was zur Folge hat, dass Konzentrationsmessungen diesen schmalen Bereich nicht oder nur selten treffen. Dieser Umstand könnte fatal sein für alle gradientenbasierten geostatistischen Inversionsmethoden, da es überhaupt nur am Rand der Schadstofffahne einen signifikanten Konzentrationsgradienten gibt. Folglich sind viele der sowieso schon räumlich spärlich gestreuten Konzentrationsmessungen unbrauchbar für gradientenbasierte Methoden, denn viele Messungen haben keinen Konzentrationsgradienten. Eine Vergrößerung des Messvolumens hätte zur Folge, dass mehr Messungen die Abstromfahne abdecken und somit einen signifikanten Konzentrationsgradienten besitzen. Die Problematik besteht darin, dass Feldmessungen mit grösserem Messvolumen erneut durchgeführt werden müssten. Die von mir entwickelte Methode benutzt nur im Anfangsstadium der numerischen Berechnung den hypothetischen Gradienten einer zugehörigen Konzentrationsmessung mit vergrössertem Messvolumen. Dies stabilisiert das gradientenbasierte Inversionsverfahren, benötigt jedoch keine zusätzlichen Konzentrationsmessungen mit vergrössertem Messvolumen. Die Methode dieses Meilensteins wurde in *Advances in Water Resources* veröffentlicht (Schwede and Cirpka, 2009c).
3. Der letzte Schritt, um eine Schätzmethode für den Massenfluss eines Schadstoffs durch eine Kontrollebene zu bestimmen, ist die Herleitung eines Interpolationsverfahrens für Konzentrationsdaten. Die hier vorgestellte Methode zur Interpolation basiert auf konditionellen Monte Carlo Realisationen, die mit Hilfe des vorgestellten Inversionsalgorithmus erzeugt werden. Dieses Verfahren erlaubt es, nicht nur Konzentrationsdaten zu interpolieren, sondern es liefert gleichzeitig eine Unsicherheit zu der Interpolation. Desweiteren

liefert das Verfahren neben der Interpolation von Konzentrationen simultan die Interpolation und die Unsicherheit von allen hydraulischen Grössen, die von dem hydraulischen Durchlässigkeitsfeldes abhängen. Die räumliche Auflösung der Interpolation hängt von der räumlichen Auflösung der konditionellen Monte Carlo Simulation ab und kann somit theoretisch beliebig genau gemacht werden durch die Aufteilung des Simulationsgebietes in unendlich kleine Zellen. Dieser Teil meiner Dissertation ist zur Publikation in *Ground Water* akzeptiert worden (Schwede and Cirpka, 2009a).

In der vorgelegten Dissertationsschrift bearbeite ich ausschliesslich hypothetische Testfälle. Meiner Meinung nach ist dies als erster Schritt zur Entwicklung einer neuartigen Methode zwingend erforderlich, denn nur hierdurch kann die Korrektheit und die Effektivität der zu prüfenden Methode nachgewiesen werden. In einem echten Grundwasserleiter ist die genaue Porenraumgeometrie niemals vollständig bekannt, und somit kann auch der hydraulische Durchlässigkeitsbeiwert niemals genau bekannt sein, was wiederum jegliche Validierung einer neuentwickelten Methode äusserst schwierig macht. In einem hypothetischen Testfall besteht aber gerade dieses Problem nicht, da der hydraulische Durchlässigkeitsbeiwert an jeder (diskreten) Stelle des hypothetischen Feldes genau bekannt ist und somit die Ergebnisse einer neuen Methode einfacher mit der hypothetischen Wahrheit verglichen werden können. Der Nachteil eines hypothetischen hydraulischen Durchlässigkeitsfeldes ist allerdings, dass dieses Feld immer von dem Modell abhängt, mit dem es erzeugt wird und somit niemals einen realen Grundwasserleiter in allen Details beschreiben kann. Meiner Meinung nach sind Entwicklung und Test einer Methode mit Felddaten etwa gleich aufwändig, aber haben komplett andere Anforderungen. In meiner Dissertation habe ich mich ausschließlich mit der Entwicklung von neuen Konzepten und Methoden und deren Validierung durch hypothetische Testfälle in zwei- und dreidimensionalen porösen Medien beschäftigt. Die Validierung der neuen Konzepte und Methoden mittels Felddaten übersteigt den Umfang dieser Dissertation und ist deshalb hier nicht berücksichtigt.

Sobald sich die vorgeschlagene Methode zur Bestimmung des Massenflusses eines Schadstoffs durch eine Kontrollebene auch im zweiten Teil, der praktischen Validierung, erwiesen hat, kann diese Methode eine grundlegende Basis zur quantitativen Bewertung dafür bilden, ob der natürliche Abbau ausreicht oder ob aktive Sanierungsmassnahmen in kontaminierten Grundwasserleitern nötig sind. Somit unterstützt die vorgestellte Methode wissenschaftlich fundierte Entscheidungen zur nachhaltigen Bewirtschaftung von Grundwasserressourcen.