

Stanisław Czaban, Andrzej Dąbrowski

**STATYSTYCZNA OCENA WPLYWU SKŁADOWISKA
ODPADÓW PRZEMYSŁOWYCH NA WODY
POWIERZCHNIOWE**

***STATYSTICAL IMPACT OF INDUSTRIAL TAILINGS
POND ON SURFACE WATER***

Streszczenie

W składowisku odpadów przemysłowych o powierzchni ok. 1400 ha systemem hydrotransportu przesyłanych jest ok. 28 mln Mg odpadów flotacji. Mineralne odpady nie stanowią większych uciążliwości dla środowiska (z wyjątkiem pylenia). Istotnym problemem środowiskowym jest wpływ składowiska na wody powierzchniowe i podziemne ze względu na duże stężenia chlorków, siarczanów, sodu i magnezu w akwenu. Na podstawie 10-letnich badań monitoringowych określono dynamikę stężeń i ładunków chlorków i siarczanów w wodach powierzchniowych wokół składowiska. Oceniono także charakterystyczne stężenia wód powierzchniowych w funkcji zmienności jakości wody w akwenu składowiska.

Słowa kluczowe: składowiska odpadów, zanieczyszczenia wód powierzchniowych, szeregi czasowe, stężenia chlorków i siarczanów.

Summary

In a tailings pond of approx. 1400 ha, a hydrotransport system conveys approx. 28 mln mg of flotation waste. Mineral waste is not really harmful to the environment (except for dust emission). What does pose a problem is the environment's impact on surface and ground water, which is due to high concentration of chlorides, sulfates, sodium and magnesium in the water body. Based on a 10 year monitoring research program, the dynamics of chlorides and sulfates' concentrations and charges in surface water around the tailings pond will be presented. Characteristic concentrations of surface water as a function of water quality in the tailings pond will also be evaluated.

Key words: *tailings ponds, surface water pollution, time series, concentration of chlorides and sulfates*

WPROWADZENIE

Składowisko zlokalizowano w górnej, prawostronnej części zlewni rzeki Rudna. Obszar zlewni wykorzystywany jest rolniczo, przeważnie jako grunty orne. Zlewnie pokrywają utwory moreny dennej, piaski i żwiry. Powierzchnia całkowita zlewni wynosi 372,7 km², a długość rzeki to 37,3 km. Lasy i grunty leśne zajmują łącznie 2115 ha., a grunty zadrzewione i zakrzewione obejmują 143 ha. W produkcji rolniczej dominuje produkcja roślinna. W górnej części zlewni, w której zlokalizowano składowisko, użytki rolne stanowią 36% zlewni. W strukturze zasiewów największy udział mają zboża (81,3%), na drugim miejscu rośliny przemysłowe (głównie buraki cukrowe 6,0%). Obsada zwierząt gospodarskich w sztukach dużych na 100 ha użytków rolnych wynosi 23. Średnie zaludnienie w zlewni jest równe 33 osoby/km².

Badany obszar zalicza się do najcieplejszych w Polsce, średnia roczna temperatura przekracza nieco 8°C, a temperatura okresu wegetacyjnego (IV–IX) 14°. Średnia z wielolecia suma opadów rocznych wynosi 604 mm, natomiast w okresie wegetacyjnym 374 mm.

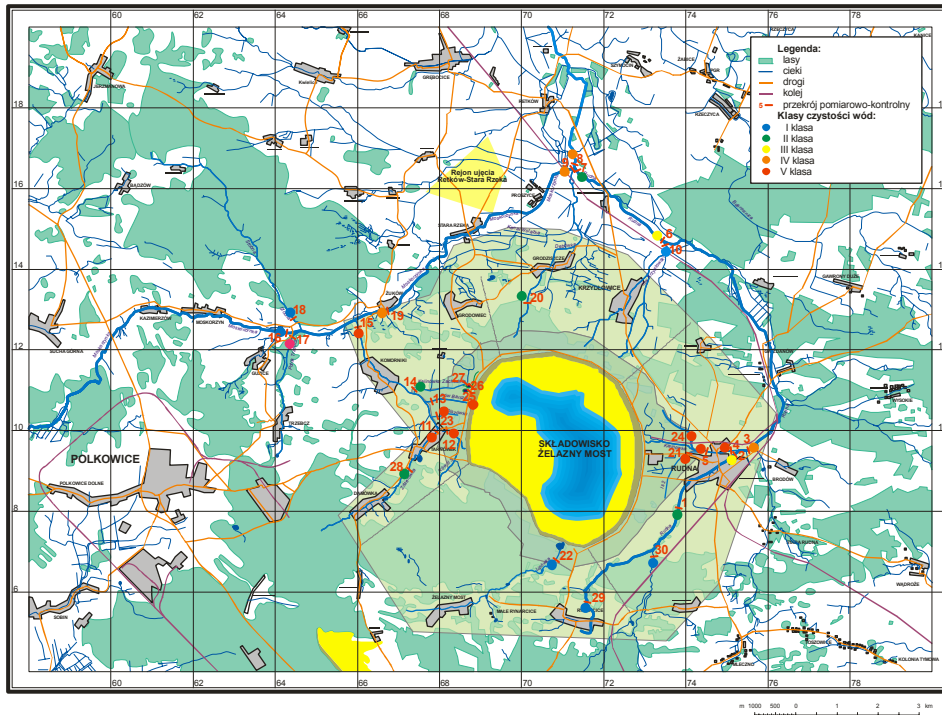
W składowisku o powierzchni 1400 ha gromadzone są odpady przemysłowe oraz wody kopalniane. Są to wody słone typu Cl- SO₄-Na-Ca. Ich mineralizacja ogólna kształtuje się na poziomie ok. 24–29 g/dm³, zawartość chlorków od 10,6 do 13,8 g Cl/l, a siarczanów od 2,60 do 3,58 g SO₄/l.

W infrastrukturze technicznej składowiska znajdują się systemy technicznej ochrony wód powierzchniowych przed zanieczyszczeniami. Należą do nich: planowa gospodarka odpadami, która pozwoliła znacznie zmniejszyć objętość wód infiltrujących (wskutek zastosowania frakcji drobnoziarnistych odpadów do uszczelnienia czaszy), rowy opaskowe oraz bariera drenażu pionowego. W latach 1998–2006 wykonano wiele robót na przedpolu składowiska. Ich celem było uporządkowanie gospodarki wodnej, a w szczególności zdrenowanie i ujęcie wód zasolonych z przypowierzchniowej warstwy gruntu wraz z wprowadzeniem ich od obiegu wód technologicznych. Wszystkie wykonane prace służą przede wszystkim ochronie wód gruntowych i powierzchniowych przed zanieczyszczeniem ich wodami filtrującymi ze składowiska.

MATERIAŁY BADAWCZE I METODY

Dla oceny oddziaływania składowiska na wody powierzchniowe prowadzone są badania w stałej sieci kontrolno-pomiarowej obejmującej 30 punktów pomiarowych (rys. 1). W każdym z punktów raz w miesiącu mierzone jest natężenie przepływu wody. Skład chemiczny wody określa się dla następujących parametrów: odczyn, przewodnictwo właściwe, azot amonowy, azot azotynowy, azot azotanowy i azot ogólny, fosfor, chlorki, siarczany, sól, potas, zawiesiny, substancje rozpuszczone, żelazo ogólne, mangan, miedź, cynk, ołów, nikiel i kadm. Mierzony jest także skład chemiczny akwenu składowiska. Na podsta-

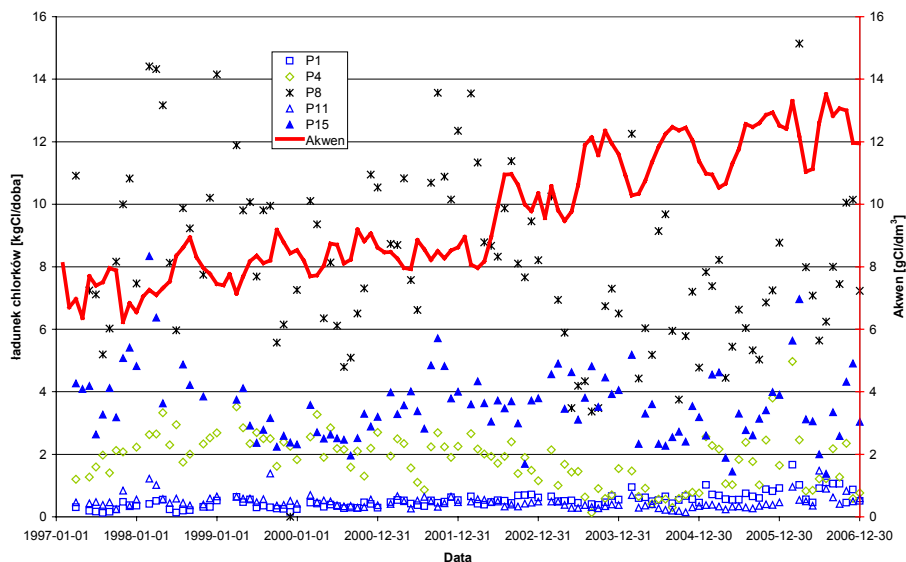
wie przeprowadzonych badań składu fizyczno-chemicznego wód oraz przeprowadzonych analiz statystycznych wody powierzchniowe w rejonie składowiska zaliczono do klas od II do V (rys. 1). O takiej kwalifikacji przesądziły wysokie stężenia zawiesin, związki biogenne i wskaźniki zasolenia.



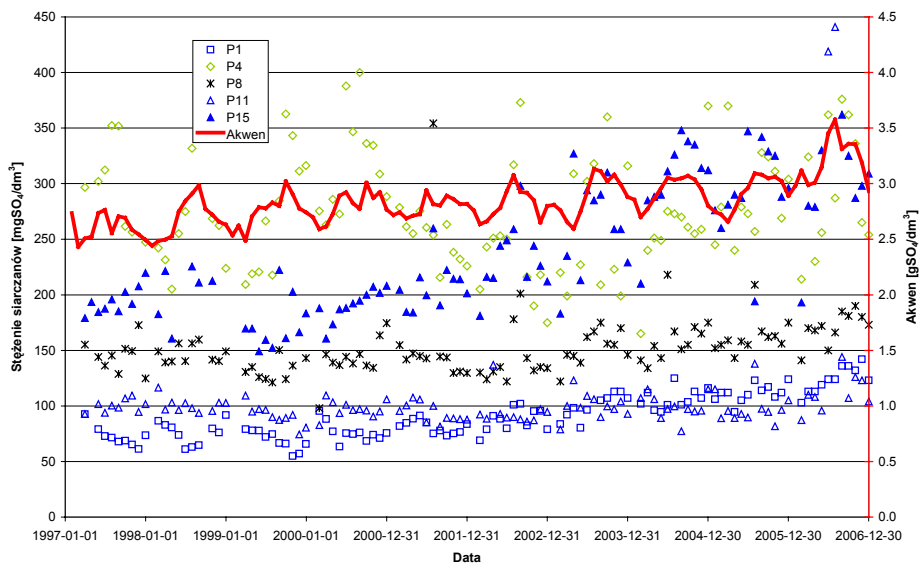
Rysunek 1. Klasyfikacja wód powierzchniowych w 2006 r. ze względu na stężenia chlorków

Figure 1. Classification of surface water regarding the concentrations of chlorides in 2006

W 2005 r., ze względu na stężenia związków azotu a zwłaszcza azotu azotanowego, w 3. przekrojach pomiarowych zakwalifikowano wody do klasy III, a w 2. do klasy IV. Ze względu na stężenia miedzi, wody powierzchniowe zakwalifikowano do klasy I w 24 przekrojach, w 2-ch do klasy II i w jednym przekroju (rów opaskowy) do klasy IV. W 9. przekrojach pomiarowych stężenia chlorków spowodowały zakwalifikowanie wód powierzchniowych do klasy V, w 3 do klasy IV, w 1 do III, a w 7 do klasy I i II. Z uwagi na stężenia chlorków wody potoków w zachodniej części składowiska (rów IIS i Olszówka) oraz w wschodniej – Kalinówka i rowy IS2 oraz IIN-1 były złej jakości. Wody Kalinówki, wpływając do rzeki Rudnej zmieniły jej klasyfikację z II na IV. Jednak już w następnym przekroju wody Rudnej były w II klasie czystości. Poniżej dopływu Moskorzynki wody Rudnej zakwalifikowano do III klasy czystości.



Rysunek 2. Dynamika ładunku chlorków w wybranych punktach pomiarowych
Figure 2. Dynamics of the charge of chlorides in selected points of measurement



Rysunek 3. Dynamika stężenia siarczanów w wybranych punktach pomiarowych
Figure 3. Dynamics of the concentrations of sulfates in selected points of measurement

Stężenia chlorków i siarczanów w akwencie składowiska (rys. 2 i 3) w latach 1997–2006 wykazują wyraźny trend wzrostowy oraz pewną okresowość. Do analizy dynamiki stężeń i ładunków chlorków i siarczanów wytypowano 5 punktów pomiarowych nr: 1, 4, 8, 11 i 15.

W punktach pomiarowych 1 i 11 obserwuje się trend wzrostowy ładunku chlorków, natomiast w p. 4, 8 i 15 stwierdza się istotne zmniejszenie się ładunków w rozpatrywanym dziesięcioleciu (rys. 2). Jest to skutkiem zastosowania studzien drenażu pionowego oraz prac odwodnieniowych na przedpolu zachodnim, północnym i wschodnim. Natomiast dla stężeń siarczanów stwierdza się trend wzrostowy (rys. 3). Jest to spowodowane wpływem składowiska, a także ujmowaniem wód podziemnych. Niskie opady w trakcie okresu badawczego spowodowały zmniejszenie natężenia przepływu wód powierzchniowych i obniżenie poziomu wód gruntowych. Spowodowało to utlenienie nierozpuszczalnych siarczków żelaza FeS i siarczku manganowego MnS. W wyniku tego procesu tworzą się rozpuszczalne związki żelaza i manganu oraz siarczany. Wydaje się, że skutkiem tego jest wyraźny wzrost żelaza i manganu w badanych wodach powierzchniowych. Zmniejszenie przepływów w rzekach spowodowało też wzrost wskaźników zasolenia.

Zakładając, że wyniki pomiarów tworzą szeregi czasowe, dokonano statystycznej oceny wpływu stężenia chlorków w akwencie na stężenia i ładunków chlorków w rzekach oraz stężenia siarczanów w akwencie na dynamikę ładunków siarczanów w rzekach.

WYNIKI OBLICZEŃ STATYSTYCZNYCH

Analiza funkcji autokorelacji wzajemnej między stężeniami chlorków w akwencie i w wybranych punktach pomiarowych wykazała, że procesy przebiegają synchronicznie. Korelacja wzajemna, oszacowana z błędem standardowym $SE = 0,091-0,9094$, ma wartość największą 0,89 w punkcie 1, a najmniejszą, równą -0,26 w punkcie 5 (tab. 1) przy opóźnieniu 8 miesięcy.

Tabela 1. Korelacja wzajemna stężeń chlorków w akwencie składowiska i w wybranych punktach monitoringu wód powierzchniowych

Table 1. Mutual correlation of the concentrations of chlorides in the storage facility water body and in selected points of surface water monitoring

Punkt pomiarowy / Measurement point	1	4	8	11	15
Korelacja /Correlation	0,89	-0,26*	0,33	0,15	0,77
SE	0,091	0,094	0,091	0,091	0,091

*opóźnienie 8 miesięcy*delay 8 months

Tabela 2. Model regresji wzajemnej stężeń chlorków w akwenu składowiska i w wybranych punktach monitoringu wód powierzchniowych
Table 2. Mutual regression model of the concentrations of chlorides in the storage facility water body and in selected points of surface water monitoring

Punkt pomiarowy Measurement point	1	4*	8	11	15
Wyraz wolny (b_0) Free term (b_0)	110	559,4	65,2	109,0	209,0
Współczynnik b_1 Coefficient b_1	20	-2,5	14,7	2,3	87,3

*opóźnienie 8 miesięcy *delay 8 months

Tabela 3. Modele ARMA procesów rezydualnych dla stężeń chlorków w akwenu składowiska i w wybranych punktach monitoringu wód powierzchniowych
Table 3. ARMA model of residual processes for the concentration of chlorides in the storage facility water body and in selected points of surface water monitoring

Punkt pomiarowy Measurement point	1	4	8	11	15
Modele AR AR models:					
$a_1 \pm SE$		0,40±0,092		0,44±0,083	0,48±0,090
$a_2 \pm SE$		0,14±0,097			0,16±0,10
$a_3 \pm SE$		0,25±0,096			-0,045±0,10
$a_4 \pm SE$		-0,33±0,096			-0,28±0,092
Modele MA MA models:					
współczynnik $m_1 \pm SE$ coefficient $m_1 \pm SE$	-0,35±0,091				
współczynnik $m_2 \pm SE$ coefficient $m_2 \pm SE$	-0,26±0,11				
współczynnik $m_3 \pm SE$ coefficient $m_3 \pm SE$	-0,11±0,10				
współczynnik $m_4 \pm SE$ coefficient $m_4 \pm SE$	0,13±0,11				
współczynnik $m_5 \pm SE$ coefficient $m_5 \pm SE$	0,22±0,12				
współczynnik $m_6 \pm SE$ coefficient $m_6 \pm SE$	0,29±0,10				
Resztowy MSE (s^2) Residual MSE (s^2)	283,4	15317,0	6674,9	687,19	12655,0

Proces przenoszenia się stężenia chlorków z akwenu składowiska do wód powierzchniowych można opisać modelem postaci $y(t) = b_0 + b_1x(t) + r(t)$, gdzie $y(t)$ jest stężeniem chlorków w punkcie monitoringowym, $x(t)$ stężeniem chlorków w akwenu składowiska. W punkcie 4 model ten opisany jest z opóźnieniem o 8 miesięcy zależnością: $y(t) = b_0 + b_1x(t-8) + r(t)$.

Wartości funkcji autokorelacji wskazują, że procesy rezydualne $r(t)$ są zróżnicowane dla analizowanych punktów:

- 4 i 15 jest to proces AR(4),
- 11 jest to proces AR(1),
- 1 jest to proces MA(6),
- 8 jest to proces białego szumu $\varepsilon(t)$ o wariancji resztowej 6674,9.

Wykonana analiza funkcji autokorelacji wzajemnej pomiędzy stężeniami siarczanów w akwencie i w wybranych punktach pomiarowych wykazała, że procesy przebiegają synchronicznie. Korelacja wzajemna, oszacowana z błędem standardowym $SE = 0,091$ ma wartość największą 0,70 w punkcie 15, a najmniejszą, równą 0,36 w punkcie 8 (tab. 4).

Tabela 4. Korelacja wzajemna stężeń siarczanów w akwencie składowiska i w wybranych punktach monitoringu wód powierzchniowych (synchronicznie)
Table 4. Mutual correlation of the concentrations of sulfates in the storage facility water body and in selected points of surface water monitoring (synchronously)

Punkt pomiarowy Measurement point	1	4	8	11	15
Korelacja Correlation	0,60	0,31	0,36	0,44	0,70
	SE 0,091				

Tabela 5. Model regresji wzajemnej stężeń siarczanów w akwencie składowiska i w wybranych punktach monitoringu wód powierzchniowych (synchronicznie)
Table 5. Mutual regression model of the concentrations of sulfates in the storage facility water body and in selected points of surface water monitoring (synchronously)

Punkt pomiarowy Measurement point	1	4	8	11	15
Wraz wolny (b_0) Free term (b_0)	65,4	68,71	24,47	161,0	396,0
Współczynnik b_1 Coefficient b_1	55,0	72,3	44,7	93,0	224,0

Proces transportu stężenia siarczanów z akwenu składowiska do wód powierzchniowych opisano modelem w postaci: $y(t) = b_0 + b_1x(t) + r(t)$, gdzie $y(t)$ jest stężeniem siarczanów w punkcie monitoringowym, $x(t)$ stężeniem SO_4 w akwencie składowiska.

Wartości funkcji autokorelacji wskazują, że procesy rezydualne $r(t)$ są zróżnicowane (tab. 6):

- dla punktów monitoringowych 1 i 15 jest to proces AR(1) o współczynniku autoregresji a z białym szumem $\varepsilon(t)$ o wariancji resztowej s^2 ,

- dla punktu nr 4 jest to proces MA(3) postaci $r(t) = \varepsilon(t) - 0,28\varepsilon(t-1) - 0,19\varepsilon(t-2) - 0,41\varepsilon(t-3)$ z białym szumem $\varepsilon(t)$ o wariancji resztowej 1700,6,
- dla punktu nr 11 jest to proces MA(1) postaci $r(t) = \varepsilon(t) - 0,76\varepsilon(t-1)$ z białym szumem $\varepsilon(t)$ o wariancji resztowej 1025,9,
- dla punktu nr 8 jest to proces białego szumu $\varepsilon(t)$ o wariancji resztowej 601,1.

Tabela 6. Modele ARMA procesów rezydualnych stężeń siarczanów w akwenu składowiska i w wybranych punktach monitoringu wód powierzchniowych

Table 6. ARMA model of residual processes for the concentration of sulfates in the storage facility water body and in selected points of surface water monitoring

Punkt pomiarowy Measurement point	1	4	8	11	15
Modele AR: AR models:					
współczynnik autoregresji (a) \pm SE autoregression coefficient (a) \pm SE	0,72 \pm 0,065				0,45 \pm 0,083
t (119) (p)	11,03 (0,000000)				5,49 (0,000000)
Modele MA: MA models:					
współczynnik m_1 coefficient m_1		-0,28 \pm 0,087		-0,76 \pm 0,072	
t (117) (p)		-3,17 (0,0020)		-10,53* (0,000000)	
współczynnik m_2 coefficient m_2		-0,19 \pm 0,090			
t (117) (p)		-2,07(0,040)			
współczynnik m_3 coefficient m_3		-0,41 \pm 0,083			
t (117) (p)		-4,90(0,000003)			
Resztowy MSE (s^2) Residual MSE (s^2)	117,5	1700,6	601,1	1025,9	1831,5

*) rozkład t Studenta ze 119 stopniami swobody

*) Student's t-distribution with 119 degrees of freedom

Analiza funkcji autokorelacji wzajemnej między stężeniem chlorków w akwenu i ładunkami chlorów w analizowanych punktach pomiarowych wykazała, że procesy przebiegają synchronicznie. Korelacja wzajemna, oszacowana z błędem standardowym SE=0,091, ma wartość największą 0,66 w punkcie P1, a najmniejszą, równą -0,19 w punkcie P11 (tab. 7).

Tabela 7. Korelacja wzajemna stężeń chlorków w akwenu i ładunków chlorków w wybranych punktach monitoringu wód powierzchniowych

Table 7. Mutual correlation of the concentrations of chlorides in the water body and of the charges of chlorides in selected points of surface water monitoring

Punkt pomiarowy / Measurement point	1	4	8	11	15
Korelacja / Correlation	0,66	-0,40	-0,29	-0,19	-0,20
	SE 0,091				

Tabela 8. Model regresji wzajemnej stężeń chlorków w akwenu i ładunków chlorków w wybranych punktach monitoringu wód powierzchniowych (synchronicznie)**Table 8.** Mutual regression model of the concentrations of chlorides in the water body and of the charges of chlorides in selected points of surface water monitoring (synchronously)

Punkt pomiarowy / Measurement point	1	4	8	11	15
Wyraz wolny (b_0) Free term (b_0)	0,262	3,412	13,23	0,668	4,655
Współczynnik b_1 Coefficient b_1	0,080	-0,162	-0,420	-0,020	-0,109

Tabela 9. Modele AR(1) procesów rezydualnych dla stężeń chlorków akwenu i ładunków chlorków w wybranych punktach monitoringu wód powierzchniowych**Table 9.** AR(1) model of residual processes for the concentrations of chlorides in the water body and for the charges of chlorides in selected points of surface water monitoring

Punkt pomiarowy Measurement point	1	4	8	11	15
Współczynnik autoregresji (a) Autoregression coefficient (a)	0,472	0,456	0,356	0,337	0,511
SE	0,082	0,083	0,086	0,087	0,079
t (119)	5,784	5,541	4,136	3,874	6,454
P	0,000000	0,000000	0,000066	0,000176	0,000000
Resztowy MSE (s^2) Residual MSE (s^2)	0,0245	,4177	8,7147	0,0367	,8106

Proces transportu ładunku chlorków ze składowiska do wód powierzchniowych można opisać modelem matematycznym w postaci $y(t) = b_0 + b_1x(t) + r(t)$, gdzie $y(t)$ jest stężeniem chlorków w rozpatrywanym punkcie pomiarowym, $x(t)$ stężeniem chlorków w akwenu składowiska, a $r(t)$ – procesem rezydualnym, opisującym zależność od czasu.

Współczynniki b_i w punktach pomiarowych (tab. 8) wyrażają związek między stężeniem chlorków w akwenu składowiska a ładunkiem chlorków w poszczególnych punktach monitorowania składowiska, zmierzonym w tym samym momencie i są stałe, niezależne od czasu.

Wpływ czasu opisany jest procesem resztowym $r(t)$. Analiza autokorelacji cząstkowej procesu resztowego pozwala opisać ten proces modelem autoregresji rzędu 1 (tab. 9), spełniającym równanie $r(t) = ar(t-1) + \varepsilon(t)$ o współczynniku autoregresji a , z białym szumem $\varepsilon(t)$ o wariacji s^2 . Współczynnik autoregresji a wyraża korelację między kolejnymi wartościami procesu resztowego. Współczynniki te mają zbliżone wartości od 0,337 dla punktu P11 i największą 0,511 dla punktu P15.

WNIOSKI

1. Istnieją statystycznie istotne związki przenoszenia stężeń chlorków i siarczanów w akwencie składowiska ze stężeniami oraz ładunkami chlorków i siarczanów w wodach powierzchniowych okalających składowisko.

2. Modele składają się z części regresyjnej o parametrach niezależnych od czasu i części typu ARMA, opisujące relacje między kolejnymi momentami czasowymi.

3. Model transportu ładunków chlorków ze składowiska do punktów pomiarowych jest wspólny dla wszystkich punktów – występują jedynie różnice wartości parametrów.

4. Dla stężeń chlorków i siarczanów w rzekach model zależności jest bardziej zróżnicowany: w części punktów proces rezydualny jest procesem ruchomej średniej, a części procesem autoregresji.

BIBLIOGRAFIA

- Ayers R. S., Westcot D. W. *Water quality for agriculture*. Irrigation and Drainage Paper, 33, FAO, Rome 1979, s. 193.
- Box, G. E. P., Jenkins, G. M. *Time series analysis: Forecasting and control*. San Francisco, Holden-Day, 1976.
- J. R. Craig. *Saline waters: genesis and relationship to sediments and host rocks*. Saline Water Proc. Symp. Groundwater Salinity, 46th Annual Meeting. Amer. Assoc. Adv. Sci (AAAS), Las Vegas, Nevada, 1985, s. 125–166.
- Czaban S. i in. *Stan czystości wód powierzchniowych w rejonie składowiska Żelazny Most z uwzględnieniem źródeł zanieczyszczeń*. IIS, UP, Wrocław 1997–2007.
- Fialkiewicz W., Czaban S. *Impact of industrial tailings pond on infiltration of sulfates into groundwater* [in:] Steven Starrett, Jihua Hong, and William Lyon, eds., *Environmental Science and Technology* 2006, Vol. 2, 283-289, American Science Press, Houston, USA 2006.
- Liesko I., Lois L., Szebenyi G. *Tailings as a source of environmental pollution*. *Water Science and Technology*, 39 (10–11), 1999, s. 333–336.
- Shumway R. H. *Applied statistical time series analysis*. Englewood Cliffs, NJ: Prentice Hall 1988.

Prof. dr hab. inż. Stanisław Czaban
Instytut Inżynierii Środowiska
Uniwersytet Przyrodniczy we Wrocławiu
tel: +71 3205 513
e-mail: czaban@iis.ar.wroc.pl

Dr Andrzej Dąbrowski
Katedra Matematyki
Uniwersytet Przyrodniczy we Wrocławiu
tel: +71 3205 615
e-mail: andrzej.dabrowski@up.wroc.pl

Recenzent: Prof. dr hab. Włodzimierz Parzonka