



De atmosfeer; belangrijke bron van verontreiniging van het oppervlaktewater?

JAN DUYZER, TNO-MEP

Schadelijke stoffen kunnen zich door de lucht over grote gebieden verspreiden. Zo worden in het verleden gebruikte bestrijdingsmiddelen, zoals DDT, tot op de Noordpool aangetroffen. Maar ook op kleinere schaal, binnen Nederland, is verspreiding door de lucht soms een probleem, waarover weinig bekend is. TNO voerde de afgelopen jaren een uitgebreid onderzoek uit naar het voorkomen van schadelijke stoffen, zoals bestrijdingsmiddelen, PCB's en PAK, in de lucht en de neerslag. Overal in Nederland worden deze veelal toxische stoffen aangetroffen. Daarbij overschrijden de concentraties van enkele van deze stoffen in neerslag regelmatig de normen voor oppervlaktewater. Uit de metingen blijkt dat de atmosfeer voor veel stoffen een belangrijke aanvoerroute is. De gevonden stoffen kwamen voor het grootste gedeelte uit Nederland. De bronnen van de in Nederland verboden stoffen liggen vaak in het buitenland.

In de atmosfeer komt een groot aantal verschillende stoffen voor. Deze zijn afkomstig van zowel natuurlijke als antropogene bronnen. Een aantal stoffen is daarbij vooral belangrijk vanwege de persistentie, toxiciteit en de neiging tot accumulatie in de voedselketen. Polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK) komen vooral in de lucht terecht door emissies van het verkeer, terwijl aanzienlijke hoeveelheden bestrijdingsmiddelen in de lucht komen bij het bestrijden van plagen (insecten, schimmels) in de land- en tuinbouw.

PCB's verdampen uit oude apparatuur, zoals condensatoren en transformatoren. Na hun emissie naar de atmosfeer worden ze door de wind verspreid. Ze komen in andere gebieden echter als atmosferische depositie weer op aarde terug en in de bodem of het oppervlaktewater terecht. Het transport naar de aarde vindt plaats door opname van de stof in regendruppels (natte depositie). Ook gedurende droge perioden vindt echter opname plaats aan het aardoppervlak (de zogenaamde droge depositie). Door luchtbewegingen komen gassen of

deeltjes in aanraking met het oppervlaktewater, waarbij oplosbare stoffen meteen worden opgenomen. Het hangt van allerlei factoren af welk proces, droge dan wel natte depositie, belangrijk is.

Het doel van het onderzoek was een schatting te maken van de atmosferische belasting van het Nederlandse oppervlaktewater met PAK, PCB's en bestrijdingsmiddelen. Daarbij werd onderzocht in hoeverre computermodellen in staat zijn de depositie te berekenen. Deze modellen zijn belangrijk, omdat daarmee het effect van beleidsmaatregelen doorgerekend kan worden. Het onderzoek werd gefinancierd door de ministeries van VROM en Verkeer en Waterstaat (RIKZ, RIZA en directie IJsselmeer-gebied), STOWA, Provincie Noord-Holland, RIVM en TNO.

Werkwijze

Verspreid over Nederland zijn 18 meetstations ingericht. Bij de zorgvuldige selectie was een belangrijk criterium dat er geen bronnen van één van de genoemde stoffen in de directe omgeving mochten liggen. De concentratie dichtbij de bron is namelijk, in het algemeen, veel hoger dan op een afstand van enkele kilometers. Een meting van de depositie dichtbij een bron zou het landelijke beeld onevenredig beïnvloeden.

Elk station werd ingericht met een zogeheten wet-only monsternemer (zie foto). Deze bestaat uit een glazen fles met een trechter. Om te voorkomen dat de fles en de trechter vervuilen, wordt de trechter met behulp van een teflon deksel afgesloten in droge perioden. Als het regent zorgt een regendetector ervoor dat het deksel wordt geopend. De neerslag komt dan in een glazen fles die zich in een koelkast bevindt. Daarnaast werden op elk station luchtmonsters genomen door grote volumina lucht door filters met een geschikt adsorptiemateriaal te zuigen. De concentratie van de stoffen in lucht wordt gebruikt om de droge depositie te bepalen.

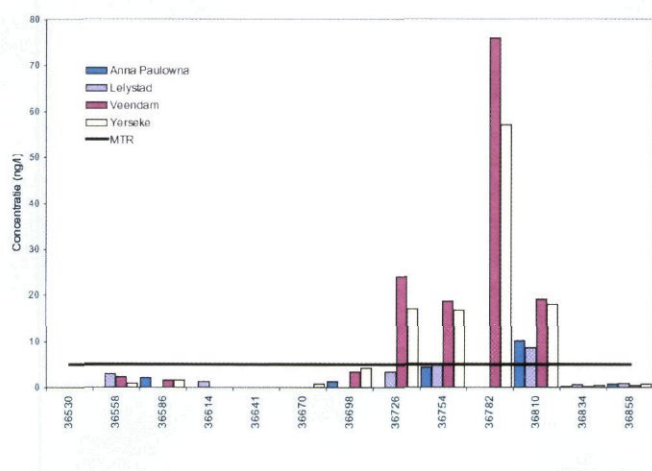
In de monsters lucht en neerslag werden met behulp van GC-MS de concentraties bepaald van 52 verschillende bestrijdingsmiddelen, 12 PAK's en 16 PCB's. Daarmee werd de concentratie van vrijwel alle belangrijke PAK's en PCB's bepaald. Uit de grote groep in Nederland gebruikte bestrijdingsmiddelen werd een selectie gemaakt op basis van een systematische afweging, waarbij de gebruikshoeveelheid, de emissie naar de lucht, de representativiteit voor bepaalde teelten en de analyseerbaarheid een belangrijke rol speelden.

Resultaten

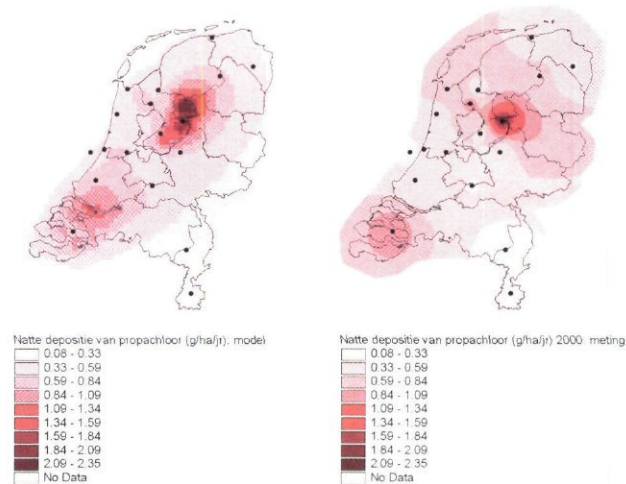
Vanaf september 1999 tot januari 2002 werden elke vier weken monsters genomen. In

Meetapparatuur op de meetpost Noordwijk, met uiterst links een neerslagmeter, in het midden de 'wet-only' monsternemer en rechts de apparatuur voor het nemen van luchtmonsters. Omdat het droog is, is het teflon deksel van de monsternemer op dit moment gesloten.





Afb. 1: De aanwezigheid van trifenylytin in neerslag



Afb. 2: De gemeten en de berekende natte depositie van propachloor in het jaar 2000. De blauwe punten geven de ligging van de meetstations.

deze monsters werden de gehalten van PAK, PCB's en bestrijdingsmiddelen bepaald. Bij gebrek aan normen voor neerslag en lucht voor de meeste stoffen werd de concentratie van de stoffen vergeleken met de normen voor oppervlaktewater. Afbeelding 1 geeft de resultaten weer van de concentratie trifenylytin, een stof die wordt gebruikt bij de bestrijding van aardappelziekte (*Phytophthora infestans*). Op vier plaatsen, alle in gebieden met aardappelteelt, werd de concentratie van trifenylytin in neerslag bepaald. In de grafiek valt een aantal zaken op. De stof wordt slechts in een beperkte periode van het jaar gebruikt en ook alleen in die periode teruggevonden in de neerslag. De verspreiding door de atmosfeer is voor deze stof dus snel. Daarnaast is landelijk een groot verschil in het voorkomen in neerslag te zien. Alleen in Yerseke en Veendam wordt de stof in hoge concentraties aangetroffen. Waarschijnlijk worden in de aardappelgebieden in Zeeland en Groningen meer trifenylytin-producten gebruikt dan in de overige aardappelteeltgebieden. Verder is het belangrijk dat de concentratie van deze stof in neerslag in deze gebieden het MTR-niveau (maximaal toelaatbaar risiconiveau) voor oppervlaktewater, gedurende enkele maanden, ruim overschrijdt.

Gedurende de gehele periode werden in totaal zo'n 50 verschillende bestrijdingsmiddelen aangetroffen in lucht en neerslag. In totaal 22 stoffen werden één of meerdere keren aangetroffen in concentraties boven het MTR-niveau. Het betreft vooral insecticiden met een relatief laag MTR. Daarnaast werden vijf PAK's boven het MTR-niveau aangetroffen. Ruim 20 bestrijdingsmiddelen en enkele PAK's werden aangetroffen in concentraties boven de drinkwaternorm van 100 ng/l. Grote overschrijdingen werden vooral aangetoond voor chloorprofaam, chloorthalonil (ook vaak boven het MTR-niveau), propachloor en DNOC. Het betreft vaak stoffen die gebruikt worden in de aardappelteelt. Daarnaast is het opvallend dat ook niet-toegelaten stoffen, zoals atrazin, lindaan, trifluralin en zelfs endosulfan, worden aangetroffen.

Vrachten

Eén van de belangrijkste doelen van het onderzoek was om vast te stellen hoe groot de bijdrage van de atmosferische depositie is aan de jaarlijkse vracht van stoffen naar het Nederlandse oppervlaktewater. De tabel geeft een overzicht van de belasting ontleend aan de huidige studie en gegevens uit de Nederlandse

Emissieregistratie. Voor pentachloorfenol (PCP), hexachloorbenzeen (HCB) en PCB's is de bijdrage van de atmosferische route veel groter dan de andere bronnen. Voor PAK's zijn de bijdragen van de verschillende bronnen vrijwel gelijk. Uit de metingen blijkt dat ruwweg gemiddeld 0,1 procent van de gebruikte hoeveelheid werkzame stof in bestrijdingsmiddelen door atmosferische depositie in het Nederlandse oppervlaktewater terecht komt. Deze bijdrage is vergelijkbaar in grootte met de belasting door drift en laterale uitspoeling die ruwweg 0,22 procent van de gebruikte hoeveelheid werkzame stof bedraagt. Van sommige stoffen, zoals propachloor, is de depositie zelfs hoog te noemen. Eén procent van de in Nederland gebruikte hoeveelheid werkzame stof komt als atmosferische depositie in het Nederlands oppervlaktewater terecht.

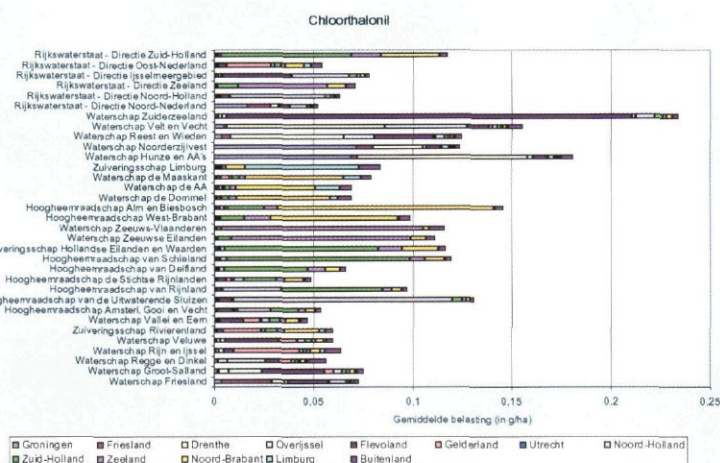
Modelberekeningen

De meetresultaten werden vergeleken met concentraties berekend met het OPS-computermodel van het RIVM. Dit model berekent de verspreiding van stoffen door de atmosfeer op basis van schattingen van de emissies. De emissies van bestrijdingsmiddelen voor het jaar 2000 in Nederland werden door het onderzoeksbureau Alterra berekend op basis van gedetailleerde gegevens over het gebruik. De emissies van de bestrijdingsmiddelen in de andere landen in Europa werden door TNO geschat op basis van Europese landbouwstatistieken. Door gebrek aan betrouwbare gegevens is de schatting van de emissie in het buitenland echter onzeker.

Tabel 1. Belasting van het oppervlaktewater in Nederland door verschillende bronnen in het jaar 1998 in kilo's³⁾, vergeleken met de gemeten depositie naar heel Nederland (exclusief de Waddenzee)

	direct	atmosferische depositie	effluenten	atmosferische depositie (metingen)	
				2000	2001
benzo(a)pyreen	417	273	15,6	116	58
fluoranteen	1700	2920	89,8	1671	1378
PAK (6 van Borneff)	2890	3200	187	2426	1836
HCB	0,266	-	0,154	4	4
PCB (som van 10)	0	-	0,00075	30	13
PCP	1,26	-	63,3	74	54

Afbeelding 2 toont zowel het gemeten als het berekende verloop van de natte depositie voor het herbicide propachloor, een stof die wordt gebruikt in de uienteelt. De overeenkomst tussen berekende en de gemeten depositie is duidelijk. Dit geeft aan dat de aannames die zijn gemaakt over het gebruik van de



Afb. 3: Depositie in de verschillende waterkwaliteitsgebieden veroorzaakt door emissies in de verschillende provincies.

stof door het land en de emissiefactor redelijk goed zijn en dat het model de verspreiding redelijk voorspelt. Voor ongeveer de helft van de onderzochte stoffen komen de berekende en gemeten deposities binnen een factor twee overeen. Voor de rest van de stoffen is de overeenkomst door uiteenlopende oorzaken veel minder goed. Interessant is het resultaat voor het herbicide atrazin dat veelvuldig werd gebruikt in de maïsteelt. Hoewel atrazin inmiddels niet meer is toegelaten in Nederland en Duitsland wordt het toch regelmatig in Nederland aangetroffen. In de modelberekeningen werd de emissie van atrazin vanuit Nederland en Duitsland daarom gelijk aan nul gesteld. In andere landen in Europa wordt de stof echter nog wel gebruikt. Het met het model berekende patroon van de concentratie over het land komt redelijk overeen met het gemeten patroon. Daarbij zijn de concentraties relatief hoog in zuid-Nederland. De goede overeenkomst ondersteunt het beeld dat de in neerslag in Nederland aangetroffen atrazin voor een belangrijk gedeelte afkomstig is uit het buitenland. Eenzelfde beeld is te zien voor lindaan, trifluralin en terbutylazin.

De overeenkomst tussen de berekende en gemeten natte depositie geeft aan dat modellen bruikbaar zijn om een eerste schatting te maken van de atmosferische depositie. Met een model kan bovendien een relatie worden gelegd tussen emissies in een bepaald gebied en deposities in een ander gebied. Als illustratie van de mogelijkheden van het model is in afbeelding 2 een schatting weergegeven van de depositie van chloorthalonil in de verschillende waterbeheersgebieden als gevolg van emissies in de verschillende provincies. Het blijkt dat voor een stof als dichloorvos, gebruikt als insecticide in kassen, voornamelijk bronnen in de provincie Zuid-Holland verantwoordelijk zijn voor het voorkomen in neerslag door het gehele land. Daarnaast lijken bronnen in het

buitenland een belangrijke bijdrage te leveren aan de depositie. Voor het beheersgebied van Zuiveringsschap Hollandse Eilanden en Waarden is voor een groot aantal stoffen in kaart gebracht hoe groot de belasting is en welke bronnen daarvoor verantwoordelijk zijn²⁾. Hieruit blijkt dat de bestrijdingsmiddelen in het gebied vooral afkomstig zijn uit het gebied zelf. De zware metalen in de neerslag in het gebied zijn echter vooral afkomstig uit het buitenland.

Effecten

Het onderzoek werd uitgevoerd met als doel een landelijk beeld van de depositie te verkrijgen. Zoals hierboven aangegeven zijn de meetpunten op afstand van bronnen gekozen, zodat ze een beeld geven van een 'achtergrond'-concentratie en depositie. In de directe nabijheid van brongebieden ligt de concentratie in de neerslag en lucht veel hoger en is daarmee de kans op effecten groter.

Aan de hand van berekeningen met een eenvoudig model is onderzocht in hoeverre de gevonden atmosferische depositie op zichzelf al aanleiding zou kunnen geven tot effecten in het oppervlaktewater. Deze oriënterende berekeningen geven aan dat voor de onderzochte stoffen geen overschrijding van MTR-concentraties te verwachten zijn, al zou de concentratie voor enkele stoffen in door regenwater gevoede watersystemen wel kunnen oplopen tot 50 procent van het maximaal toelaatbaar risiconiveau. Het effect van de depositie van een mengsel van verschillende toxische stoffen op de waterkwaliteit is voorts nog niet betrouwbaar aan te geven.

Conclusies

Voor het totale areaal van het Nederlands oppervlaktewater blijkt voor veel van de onderzochte stoffen (sommige PAK's, hexachloorbenzeen en pentachloorfenol) de belasting vanuit de atmosfeer belangrijker dan de aan-

voer via andere bronnen. Maar ook voor de andere stoffen vormt atmosferische depositie een belangrijke aanvoerroute. Voor watersystemen met een lage verversingsgraad zou atmosferische depositie alleen al kunnen leiden tot overschrijding van streefwaarden. In de omgeving van brongebieden leidt deze route mogelijk al tot overschrijding van MTR-concentraties.

Op basis van het beschreven onderzoek is voor het eerst een goed landelijk beeld ontstaan van het belang van de atmosferische depositie voor de kwaliteit van het oppervlaktewater. De resultaten van dit onderzoek maken het voor waterkwaliteitsbeheerders mogelijk de atmosfeer als diffuse bron in kaart te brengen en een beleid gericht op vermindering van deze belasting te ontwikkelen. Modelberekeningen geven aan dat de depositie vaak wordt gedomineerd door emissies in het eigen beheersgebied. Dit biedt uiteraard aanknopingspunten voor beleid. Het aantreffen van in Nederland verboden stoffen geeft aan dat ook op internationale schaal aandacht voor dit proces nodig is.

Gezien het belang van de atmosferische depositie voor de waterkwaliteit is het belangrijk de ontwikkelingen in de atmosferische depositie van belangrijke stofgroepen door monitoring te blijven volgen. Dit geldt voor de hier onderzochte stofgroepen PAK's en PCB's en in het algemeen voor nutriënten en metalen. In hoeverre de atmosfeer een bron is van oestrogen actieve stoffen is niet duidelijk. Ook voor bestrijdingsmiddelen is de situatie ingewikkeld. Het voorkomen van bestrijdingsmiddelen zou sterk kunnen veranderen als gevolg van veranderingen in het middelenpakket. Met de resultaten van de huidige studie lijken bovendien goede wetenschappelijke argumenten aanwezig om de route via atmosferische depositie in het toelatingproces van bestrijdingsmiddelen mee te nemen. De overeenkomst tussen berekende en gemeten concentraties laat zien dat de voor de beoordeling benodigde kennis aanwezig is.

LITERATUUR

- 1) Duyzer J. en A. Vonk (2002). Atmosferische depositie van bestrijdingsmiddelen, PAK en PCB's in Nederland. TNO/MEP-rapport R2002/606.
- 2) Bleeker A. en J. Duyzer (2002). Belasting van het oppervlaktewater in het beheersgebied van het Zuiveringsschap Hollandse Eilanden en Waarden ten gevolge van atmosferische depositie. TNO/MEP-rapport R2002/231.
- 3) Harmelen A., W. Koch, P. Coenen, J. van den Roovaart en C. Olsthoorn (2001). Emissiemonitor Jaarcijfers 1999 en ramingen 2000 voor emissies en afval. Rapportagereeks Doelgroepmonitoring nummer 9. Hoofinspectie Milieuhygiëne.