

Belasting van het oppervlaktewater in het landelijk gebied door uitspoeling van zware metalen

In opdracht van RIZA.

Belasting van het oppervlaktewater in het landelijk gebied door uitspoeling van zware metalen

**Modelberekeningen t.b.v. emissieregistratie 2006 en invloed van
redoxcondities**

**L.T.C. Bonten
D.J. Brus**

Alterra-rapport 1340

Alterra, Wageningen, 2006

REFERAAT

Bonten, L.T.C., D.J. Brus, 2006. *Belasting van het oppervlaktewater in het landelijk gebied door uitspoeling van zware metalen; Modelberekeningen t.b.v. emissieregistratie 2006 en invloed van redoxcondities*. Wageningen, Alterra, Alterra-rapport 1340. 46 blz.; 12 fig.; 10 tab.; 10 ref.

Ten behoeve van de emissieregistratie zijn modelberekeningen uitgevoerd om een inschatting te maken van de uitspoeling van zware metalen uit bodems in het landelijk gebied naar het oppervlaktewater. Het modelinstrumentarium voor de berekening van deze uitspoeling is sterk verbeterd door een nieuwe schematisatie van zware metaalgehalten in de bodem en een verbeterde hydrologie voor natuurgebieden. Daarnaast is de mogelijk invloed van de redoxeffecten geschat. Voor zand- en kleigronden lijken redoxeffecten nauwelijks een rol te spelen. De berekeningsresultaten met het verbeterde model komen beter overeen met metingen dan eerdere berekeningen. Landelijke vrachten van Zn, Cd en Ni zijn veel lager dan eerdere berekeningen.

Trefwoorden: zware metalen, uitspoeling, oppervlaktewater, emissieregistratie.

ISSN 1566-7197

Dit rapport kunt u bestellen door € 25,- over te maken op banknummer 36 70 54 612 ten name van Alterra, Wageningen, onder vermelding van Alterra-rapport 1340. Dit bedrag is inclusief BTW en verzendkosten.

© 2006 Alterra

Postbus 47; 6700 AA Wageningen; Nederland

Tel.: (0317) 474700; fax: (0317) 419000; e-mail: info.alterra@wur.nl

Niets uit deze uitgave mag worden veelevoudigd en/of openbaar gemaakt door middel van druk, fotokopie, microfilm of op welke andere wijze ook zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van Alterra.

Alterra aanvaardt geen aansprakelijkheid voor eventuele schade voortvloeiend uit het gebruik van de resultaten van dit onderzoek of de toepassing van de adviezen.

Inhoud

Samenvatting	7
1 Inleiding	9
2 Invloed van de redoxtoestand van de bodem op uitspoeling	11
2.1 Inleiding	11
2.2 Onderzoek in bestaande databases en modellen	12
2.2.1 Datasets	12
2.2.2 Modellen	14
2.3 Berekeningsmethode	14
3 Verbetering tav eerdere modelberekeningen	15
3.1 Ruimtelijke schematisatie van zware metaalgehalten	15
3.2 Verbeterde hydrologie voor natuurplots	20
3.3 Overige aanpassingen	20
4 Resultaten modelberekeningen	21
4.1 Invloed van redoxeffecten, landgebruik en bodemtype	21
4.2 Huidige berekeningen in vergelijking met berekeningen 2004	22
4.3 Uitspoeling in vergelijking met andere bronnen	26
4.4 Vergelijkingen met metingen in het oppervlaktewater	26
5 Conclusies en aanbevelingen	31
Literatuur	33
Bijlage 1 Methode voor toekennen vegetatietypes aan STONE natuurplots	35
Bijlage 2 Vegetatiekenmerken ten behoeve van hydrologie-berekeningen	41
Bijlage 3 Berekende concentraties en fluxen van zware metalen	43

Samenvatting

Ten behoeve van de emissieregistratie zijn in opdracht van RIZA modelberekeningen uitgevoerd om een inschatting te maken van de uitspoeling van zware metalen uit bodems in het landelijk gebied naar het oppervlaktewater.

De doelstelling van dit project is het verbeteren van het modelinstrumentarium voor de regionale uitspoeling van zware metalen uit bodems in het landelijk gebied. De verbeteringen betreffen (i) het beter laten aansluiten van de ruimtelijke schematisatie van zware metaalgehalten bij de ruimtelijke bodemschematisatie en (ii) het aanpassen van de hydrologie in natuurgebieden. Verder is een inschatting gemaakt van de maximale invloed van anaerobe condities in de bodem.

Uit de berekeningen volgt dat reducerende omstandigheden hoogstwaarschijnlijk geen belangrijke rol spelen voor zand- en kleigronden. Voor veengronden is geen eenduidige conclusie hieromtrent mogelijk. Voor de emissieregistratie is besloten redoxeffecten niet mee te nemen in de uitspoelingberekeningen.

Verder geldt dat berekende vrachten van alle metalen voor de hogere gebieden lager zijn dan bij de berekeningen van 2004, tengevolge van de verbeterde schematisatie van zware metaalgehalten en de verbeterde hydrologie voor natuurgebieden. Voor zink geldt dat de zeer hoge vrachten en concentraties in de eerdere berekeningen voor veengebieden, nu veel lager zijn. Deze lagere cijfers voor veengebieden zijn grotendeels verantwoordelijk voor de lagere cijfers op landelijke schaal. De berekende concentraties komen bij de huidige berekeningen veel beter overeen met de gemeten concentraties, waaruit blijkt dat de uitgevoerde verbeteringen logisch en realistisch zijn. Voor koper en lood verschillen de berekeningsresultaten op landelijke schaal slechts in geringe mate van de berekeningen uit 2004.

Tenslotte geven de huidige berekeningen aan dat uitspoeling van zware metalen een belangrijke bron van belasting van het oppervlaktewater blijft. De bijdrage aan de totale belasting varieert van ongeveer 20% voor cadmium tot ongeveer 40% voor zink, lood en nikkel.

1 Inleiding

Gedurende de afgelopen 4 jaar is een model ontwikkeld waarmee uitspoeling van zware metalen uit bodems in het landelijk gebied berekend kan worden. In 2003 zijn in een gezamenlijke rapportage van RIZA en ALTERRA (Römkens et al., 2003) berekeningsresultaten van dit model op landelijke schaal gepresenteerd. In deze rapportage is reeds aangegeven dat uitspoeling van zware metalen uit de bodem een belangrijke bijdrage levert aan de belasting van het oppervlaktewater. Dit geldt vooral voor de meer mobiele elementen als Cd en Zn en in mindere mate ook voor Cu en Ni. In 2004 zijn door ALTERRA in opdracht van RIZA berekeningen uitgevoerd waarbij rekening is gehouden met regionale verschillen in metaalgehalten, bodemeigenschappen en hydrologische condities (Bonten et al., 2004). De resultaten van deze berekeningen zijn vergeleken met lokale metingen van de oppervlaktewaterkwaliteit. Hieruit volgde dat gemeten en berekende concentraties gemiddeld redelijk overeenkwamen, met uitzondering van veengronden. Hierbij gaven de modelberekeningen een overschatting van de gemeten concentraties. De grootste verschillen werden gevonden voor zink. Reducerende omstandigheden in veengronden zijn mogelijk de oorzaak van deze overschatting. Ten behoeve van een betere inschatting van uitspoeling van zware metalen naar het oppervlaktewater is door RIZA aan ALTERRA gevraagd het huidige modelinstrumentarium te verbeteren.

Dit project heeft als doelstelling om een inschatting te maken van de maximale invloed van anaerobe condities in de bodem en daarnaast het modelinstrumentarium voor de regionale uitspoeling van zware metalen uit bodems in het landelijk gebied te verbeteren. De verbeteringen betreffen (i) het beter laten aansluiten van de ruimtelijke schematisatie van zware metaalgehalten bij de ruimtelijke bodemschematisatie en (ii) het aanpassen van de hydrologie in natuurgebieden.

Deze inschattingen en verbeteringen zijn als volgt uitgevoerd:

- Onderzoek is verricht naar de maximale invloed van anaerobe condities bij veengronden door (i) te bepalen wat de afstand is tussen de grondwaterstand en de sulfaatreducerende zones op basis van meetgegevens en modelresultaten (ii) uitvoeren van modelberekeningen waarbij voor de sulfaatreducerende zones een zware metaalconcentratie van nul wordt aangehouden. De resultaten van deze berekeningen zijn vergeleken met berekeningen waarbij wordt aangenomen dat er geen redoxeffecten optreden. Voor de uiteindelijke berekeningen ten behoeve van de emissieregistratie zijn redoxeffecten niet meegenomen.
- De ruimtelijke schematisatie van zware metaalgehalten in de bovengrond is verbeterd door (i) uitbreiding van het basisbestand, (ii) het afleiden van nieuwe relaties tussen zware metaalgehalten en bodemeigenschappen met een regionale correctie en (iii) het afleiden van nieuwe metaalgehalten per STONE-plot aan de hand van STONE-plot bodemeigenschappen.
- De hydrologie voor natuurplots is verbeterd door uit te gaan van vijf vegetatietypen in plaats van één zoals in de eerdere hydrologische berekeningen.

2 Invloed van de redoxtoestand van de bodem op uitspoeling

2.1 Inleiding

Bij schattingen van de uitspoeling van zware metalen uit bodem naar het oppervlaktewater wordt er gebruik gemaakt van zogenaamde partitierelaties, welke zijn afgeleid voor aërobe bodems. Deze relaties beschrijven een verband tussen gehalten in de bodem en concentraties in het bodemvocht. In het veld kunnen in bodems onder de grondwaterspiegel echter ook anaerobe omstandigheden voorkomen. Dit geldt vooral voor bodems met een relatief hoog organisch stofgehalte (veengronden). Het is niet bekend wat de geldigheid van deze relaties is voor anaerobe bodemlagen.

De belangrijkste oorzaak voor mogelijke verschillen tussen aërobe en anaerobe bodemlagen is de vorming van sulfides, welke gevormd kunnen worden onder sulfaatreducerende omstandigheden. Sulfides van zware metalen zijn zeer slecht oplosbaar, wat er toe kan leiden dat onder anaerobe omstandigheden de concentraties van zware metalen overschat worden met de partitierelaties.

Om inzicht te krijgen in de invloed van de redoxtoestand op de concentraties van zware metalen, is gekeken naar bestaande datasets en resultaten van modelberekeningen. Ten eerste is gekeken op welke diepte de verschillende redoxcondities voorkomen. En verder is gekeken of ook daadwerkelijk een effect op de concentraties van zware metalen in het bodemvocht kan worden waargenomen.

De verschillende redoxcondities komen in een bepaalde volgorde voor, welke bepaald wordt door de sterkte van de beschikbare oxidator, en worden gekenmerkt door een toe- of afname van concentraties van bepaalde macro-ionen:

- in natuurlijke systemen is zuurstof de sterkste oxidator. De concentratie zuurstof in het bodemvocht/grondwater zal daarom als eerste afnemen;
- na het verdwijnen van zuurstof zal denitrificatie ($\text{NO}_3^- \rightarrow \text{N}_2$) optreden, wat gekenmerkt wordt door een afname van de nitraatconcentratie in oplossing;
- vervolgens treedt reductie van ijzer ($\text{Fe}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{2+}$) en mangaan ($\text{Mn}^{4+} \rightarrow \text{Mn}^{2+}$) op, wat zichtbaar is in een toename van de concentraties van ijzer en mangaan in oplossing. Voor stoffen die sterk aan ijzeroxiden adsorberen kan de concentratie in oplossing hierdoor toenemen, dit geldt o.a. voor fosfaat, arseen en in mindere mate ook voor lood;
- de volgende stap is sulfaatreductie ($\text{SO}_4^{2-} \rightarrow \text{S}^{2-}$), waarbij de slecht oplosbare sulfides kunnen worden gevormd. De concentraties van zware metalen kunnen hierdoor afnemen. Sulfaatreductie wordt gekenmerkt door een afname van de sulfaatconcentraties in oplossing. De concentraties van ijzer zullen in het algemeen ook afnemen tengevolge van precipitatie van ijzersulfides. Doordat reductiesnelheid van ijzer beperkt wordt door het de oplossingsnelheid van ijzeroxides treden ijzerreductie en sulfaatreductie meestal tegelijkertijd op;

- als het beschikbare sulfaat volledig gereduceerd is kan methaanvorming optreden; Indien de beschikbare hoeveelheid ijzer groter is dan de hoeveelheid sulfaat kan de concentratie ijzer in oplossing weer stijgen. Ook de concentraties van zware metalen in oplossing kunnen dan weer toenemen.

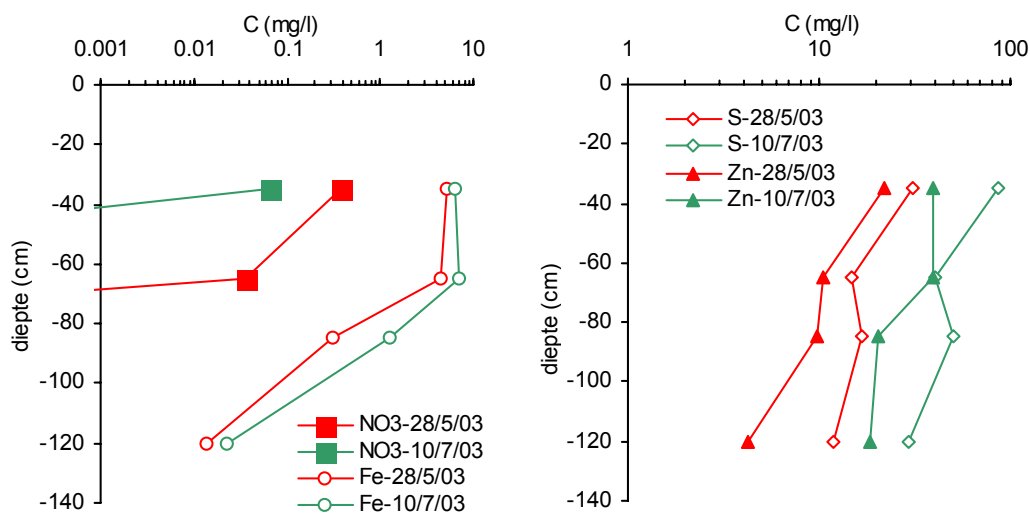
2.2 Onderzoek in bestaande databases en modellen

2.2.1 Datasets

Europeat

In project Europeat is gedurende meer dan anderhalf jaar het bodemvocht van veengronden op meerdere dieptes op vier locaties in Nederland bemonsterd en geanalyseerd. Hierbij is zowel gekeken naar de concentraties van macro-elementen, waaruit de redox-toestand kan worden afgeleid, als naar de concentraties van zware metalen.

De resultaten kwamen voor de verschillende locaties sterk overeen. Als voorbeeld zijn in onderstaande figuur de concentratieprofielen van nitraat, ijzer, sulfaat en zink met de diepte weergegeven voor twee verschillende tijdstippen. Deze profielen hebben betrekking op een perceel in Bleskensgraaf, maar zijn typerend voor de overige locaties en tijdstippen.



Figuur 2.1 Concentraties van nitraat, ijzer, sulfaat en zink in het bodemvocht voor twee verschillende tijdstippen, diepte in cm -mv

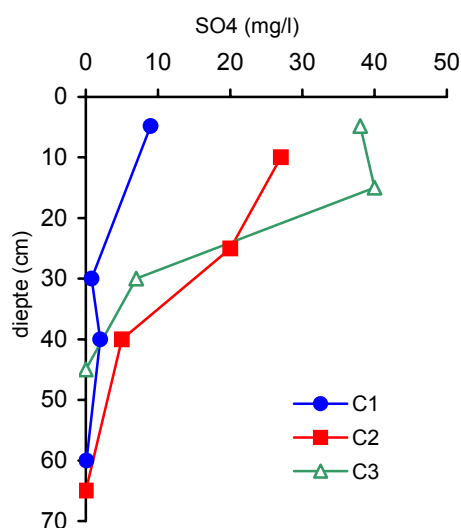
Uit deze figuur volgt dat de concentraties van nitraat en ijzer duidelijk afnemen met de diepte. Ook de concentraties van zink en sulfaat nemen af met de diepte echter in een veel geringere mate. De afname van de concentraties van nitraat treedt vooral op aan de bovenkant van het profiel, direct onder de grondwaterspiegel. De grondwaterstand op 10 juli 2003 was lager dan op 28 mei. Dit is ook duidelijk zichtbaar in de nitraatconcentraties. Nadat nitraat uit het bodemvocht is verdwenen, wordt een toename van ijzerconcentraties verwacht. De ijzerconcentraties nemen

echter sterk af, wat mogelijk veroorzaakt wordt doordat ijzerreductie en sulfaatreductie tegelijkertijd optreden, waardoor het gevormde Fe^{2+} meteen neerslaat als ijzersulfide. De daling van de sulfaatconcentraties is echter gering, evenals de afname van de zinkconcentraties, hetgeen betekent dat er waarschijnlijk geen (of slechts lokaal) zinksulfides worden gevormd. De overige zware metalen laten een overeenkomstig beeld zien. De waargenomen afname van zinkconcentraties is waarschijnlijk het gevolg van de afname in het zinkgehalte in de vaste fase. De verschillen tussen de verschillende bemonsteringstijdstippen voor in het bijzonder zink en sulfaat worden waarschijnlijk veroorzaakt door verschillen in chemische samenstelling van het bodemvocht (DOC, pH).

Samenvattend kan worden gesteld dat uit de metingen in het Europeat project geen aanwijzingen zijn voor het optreden van sulfaatreductie en de bijbehorende afname van zware metaalconcentraties.

Datasets RIZA

Een zoekselectie in het databestand van RIZA leverde drie resultaten op: twee kolommen uit het hoogveenreservaat Engbertsdijkvenen, Drenthe (C1 en C2; 52°28'N, 6°40'O, sphagnum veen) en een onbekende locatie ("Bremen-Mohr") in Duitsland (C3). In deze veenbodems is op meerdere diepten sulfaat in het poriewater gemeten (geen verdere gegevens). Op het moment van bemonstering was de grondwaterstand 10cm (C1), 30cm (C2) en 35cm (C3) onder maaiveld. Als de oxische-suboxische overgang wordt gedefinieerd door de grenswaarde $0,5 \text{ mg/l SO}_4^{2-}$ dan ligt deze grens op circa $9 \pm 3 \text{ cm}$ onder de grondwaterstand (optisch bepaald via trendlijn). Deze overgang kon niet worden bevestigd met andere redox-indicatoren zoals hierboven beschreven.



Figuur 2.2 Concentraties sulfaat in het bodemvocht van drie verschillende veenkolommen, diepte in cm -mv

In tegenstelling tot de Europeat-metingen, wordt hier wel duidelijk sulfaatreductie waargenomen, relatief dicht beneden de grondwaterspiegel.

2.2.2 Modellen

ANIMO

ANIMO is een model dat het gedrag van nutriënten (N en P) in de bodem simuleert (Groenendijk et al, 2005). Het wordt toegepast als onderdeel van STONE voor de berekening van de emissie van nutriënten naar het grond- en oppervlaktewater. Denitrificatie is een van de processen die in ANIMO worden gesimuleerd. Deze simulaties geven aan tot welke diepte nitraat in het grondwater kan voorkomen, waarmee tevens wordt aangegeven vanaf welke diepte ijzer- en sulfaatreductie kunnen optreden. Uit de modelsimulaties van ANIMO volgt dat voor veengronden in het algemeen volledige denitrificatie heeft plaatsgevonden voor dieptes van meer dan 30 cm beneden de grondwaterspiegel (mond. med. P. Groenendijk). Dit betekent dat ijzer- en sulfaatreductie, en daarmee sulfidevorming op kunnen treden vanaf 30 cm beneden de grondwaterspiegel.

BIOCHEM

BIOCHEM is een mechanistisch speciatiemodel dat rekening houdt met redoxcondities en kinetiek via specifieke mineraalvorming (bijvoorbeeld: de strengiet-vivianiet overgang voor fosfaat, haematiet-goethiet voor ijzer, etc.). Via het raamwerk ORCHESTRA worden tijd- en diepteafhankelijke metaalconcentraties berekend, waarbij redoxstatus wordt gedefinieerd via een al dan niet variabele grondwaterstand. Ten tijde van deze rapportage zijn nog geen bodemschematisaties voor veengronden uitgevoerd. Dit kan in een latere fase van het project eventueel worden uitgevoerd. BIOCHEM is dus vooralsnog niet geschikt om uitspraken te doen over het voorkomen van sulfaatreductie in veengronden.

2.3 Berekeningsmethode

Uit de beschikbare meetgegevens komt geen eenduidig beeld naar voren wat betreft het voorkomen van sulfaatreducerende zones in het grondwater en de gevolgen voor de concentraties van zware metalen in het grondwater. Om toch een indruk te krijgen van het maximaal mogelijke effect van de redoxcondities worden twee berekeningen uitgevoerd:

- een berekening waarbij gebruik wordt gemaakt van de bestaande (aërobe) partitierelaties voor het gehele bodemprofiel;
- en een berekening waarbij wordt gesteld dat sulfaatreductie optreedt vanaf een afstand van 10 cm en meer van de grondwaterspiegel. Voor de concentraties van zware metalen wordt hier een waarde van nul aangenomen.

Vergelijking van de resultaten van beide berekeningen geeft dan weer wat het maximale effect van sulfidevorming op uitspoeling kan zijn.

3 Verbetering tav eerdere modelberekeningen

3.1 Ruimtelijke schematisatie van zware metaalgehaltenes

Inleiding

In de eerdere schematisatie van zware metaalgehaltenes werden kansverdelingen van organische stof- en kleigehalten, pH en zware metaalgehaltenes geschat voor een landsdekkend 500m × 500m grid. Voor de eerdere uitspoelingsberekeningen werden op basis van deze schematisatie gemiddelde zware metaalgehaltenes berekend voor iedere STONE-plot. Doordat de ruimtelijke schematisaties van STONE-plots en het 500m × 500m grid niet geheel overkomen voor wat betreft landgebruik en bodemtype kunnen er daardoor te hoge dan wel te lage gehaltenes en daarmee ook te hoge of te lage uitspoelingsvrachten worden berekend. Om de ruimtelijke schematisatie beter te laten aansluiten bij de STONE-schematisatie zijn de zware metaalgehaltenes voor de huidige berekeningen opnieuw geschat. Bij deze nieuwe schatting is de STONE-schematisatie als uitgangspunt genomen. Naast een verbeterde methode is ook de dataset die gebruikt is voor de schattingen van de metaalgehaltenes sterk uitgebreid.

Voor de ruimtelijke schematisatie is gebruik gemaakt van een dataset van 6717 punten met voor elk punt XY-coördinaten, bemonsteringdiepte, landgebruik, bodemeigenschappen (OS, lutum, pH) en gehaltenes van zware metalen. Deze dataset is samengesteld uit de volgende bestanden:

- de gegevens die eerder gebruikt zijn voor de schematisatie van zware metalen (Brus et al., 2002);
- nieuwe data van de provinciale meetnetten van Noord-Brabant, Noord-Holland, Zuid-Holland, Groningen, Friesland, Utrecht en Gelderland. Deze data hebben betrekking op metingen in de periode 2001 t/m 2005;
- de meetpunten uit het project Achtergrondwaarden 2000 (Lamé et al., 2004);
- en data die eerder gebruikt zijn voor afleiding van de bodem-water partitierelaties (Römkens et al., 2004).

Sterk verontreinigde gebieden (o.a. uiterwaarden) en saneringslocaties zijn niet meegenomen in bovengenoemde dataset. De berekende gehaltenes zijn dus alleen het gevolg van een natuurlijk achtergrondgehalte en diffuse bronnen van zware metalen.

Bepaling gehaltenes in bovengrond (Cd, Cu, Pb en Zn)

De afleiding van de gehaltenes in de bovengrond gebeurt in drie stappen. Eerst worden relaties afgeleid tussen het zware metaalgehalte in de bovengrond en de bodemeigenschappen organische stof- en lutumgehalte en pH. Deze relaties worden afgeleid op basis van alle bovengrondmonsters in de hierboven genoemde dataset. Voor het afleiden van de relaties wordt onderscheid gemaakt in monsterpunten die genomen zijn op een perceel met als landgebruik landbouw en met als landgebruik natuur. Deze relaties hebben in de volgende algemene vorm:

$$\log Me = a_0 + a_1 \cdot \log OS + a_2 \cdot \log lutum + a_3 \cdot pH + \varepsilon$$

waarbij OS en lutum in %, en Me in mg/kg.

Voor de metalen Cd, Cu, Pb en Zn hebben a_0 t/m a_3 de volgende waarden:

Tabel 3.1 Coëfficiënten voor regressievoorspelling van zware metaalgehalten in bovengrond

metaal	a_0	a_1	a_2	a_3	R ²
landbouw					
Cd	-1.152	0.380	0.138	0.033	0.20
Cu	0.407	0.420	0.228	0.026	0.37
Pb	0.799	0.456	0.251	-	0.43
Zn	0.757	0.327	0.366	0.056	0.54
natuur					
Cd	-1.540	0.654	-	0.058	0.41
Cu	-0.359	0.647	0.271	0.073	0.67
Pb	0.774	0.554	0.218	-	0.59
Zn	-0.046	0.563	0.282	0.169	0.71

Bepaling van gehalten van nikkel

Voor nikkel kon op basis van de dataset met metingen geen onderscheid worden gemaakt tussen gehalten in de bovengrond en in de ondergrond en ook niet tussen gehalten in landbouw en in natuurgebieden. Daarom is voor nikkel één generieke relatie afgeleid:

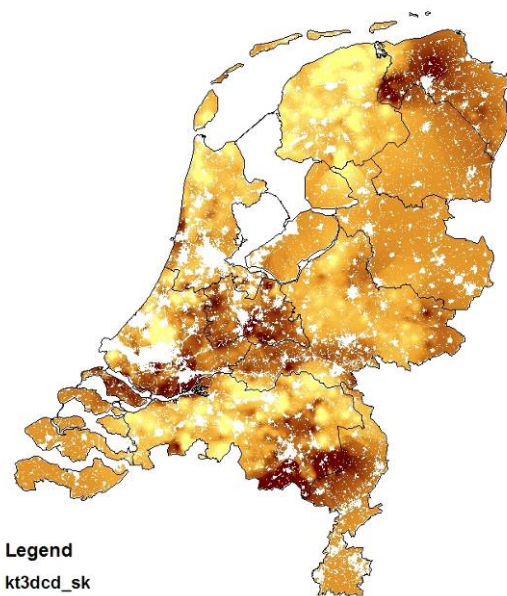
$$\log Ni = -0.377 + 0.211 \log OS + 0.594 \log lutum + \varepsilon \quad R^2=0.63$$

Vervolgens wordt voor alle punten in de dataset het verschil tussen de regressievoorspellingen en de daadwerkelijk gemeten waarden bepaald:

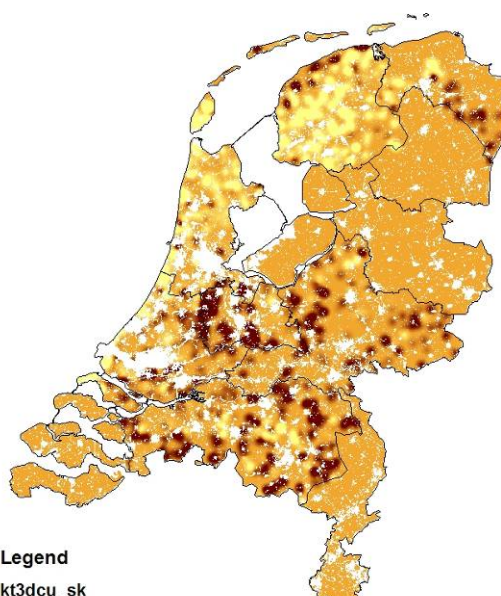
$$\varepsilon = \log Me_{\text{gemeten}} - \log Me_{\text{regressie}}$$

Deze verschillen (residuen) worden vervolgens voor heel Nederland geïnterpoleerd. Dit geeft een beeld of de gehalten in een bepaalde regio afwijken van hetgeen verwacht mag worden op basis van bodemeigenschappen en landgebruik (d.w.z. de regressievoorspellingen). In onderstaande figuren zijn de geïnterpoleerde residuen voor Cd, Cu, Ni, Pb en Zn weergegeven. De interpolatie van de residuen is uitgevoerd door middel van Simple Kriging (Deutsch & Journel, 1998). Een waarde van nul in de figuren betekent dat de waarde op basis van de regressie vergelijking overeenkomt met de gemeten waarde, een waarde groter dan nul betekend dat er een hoger gehalte metaal is gemeten dan mag worden verwacht op basis van de regressievergelijkingen.

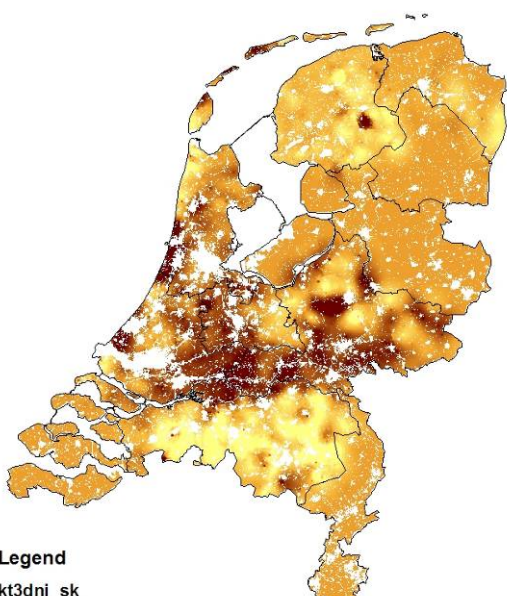
Cadmium



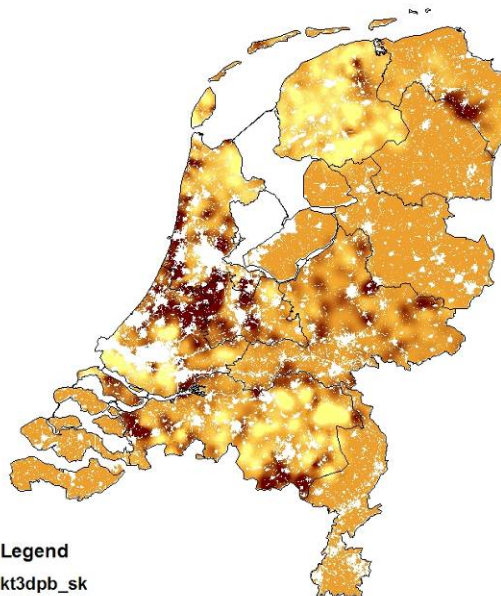
Koper



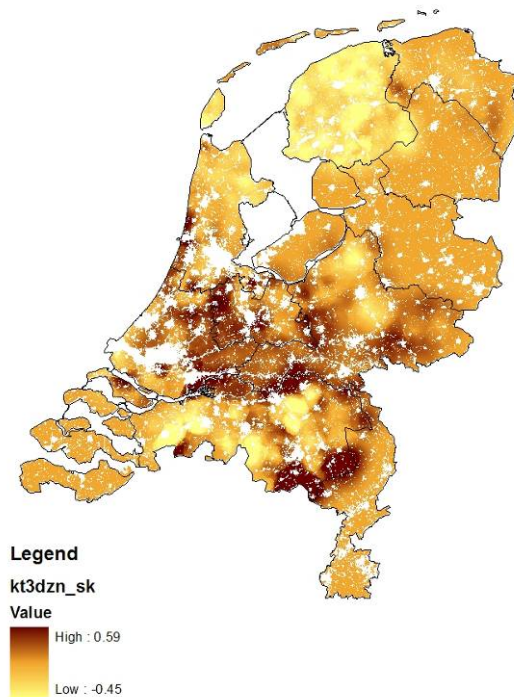
Nikkel



Lood



Zink



Figuur 3.1 Geïnterpoleerde residuen tussen gemeten gehalten en regressievoorspellingen. Schaal van legenda in log-eenheden (0 is geen afwijking t.o.v. regressievoorspelling, 1 is 10× verhoogd t.o.v. voorspelling, -1 is 10× verlaagd)

Uit deze figuren komen duidelijk de bekende gebieden met verhoogde gehalten naar voren, zoals de Kempen (Cd en Zn), toemaakdeken (m.n. Pb en Zn), rivierengebied (Ni). Verder valt op dat afwijkingen van kopergehalten ten opzichte van regressievoorspellingen sterk heterogeen verdeeld zijn. Voor Overijssel, Limburg, Zeeland en Flevoland zijn relatief weinig meetpunten beschikbaar. Regionale variatie in de residuen kunnen voor deze regio's daarom nauwelijks worden berekend en weergegeven.

De gehalten in de bovengrond worden tenslotte berekend door een regressievoorspelling te berekenen aan de hand van de bodemeigenschappen van de bovengrond van elke STONE-plot en hierbij het gemiddelde residu per STONE-plot bij op te tellen. Voor de dikte van de bovengrond wordt onderscheid gemaakt afhankelijk van het landgebruik van de betreffende STONE-plot. Voor bouwland is de bovengrond gedefinieerd als 0-25 cm -mv, voor grasland 0-15 cm -mv en voor natuur 0-5 cm -mv.

Bepaling gehalten in de ondergrond (Cd, Cu, Pb en Zn)

Gehalten in de ondergrond worden in het algemeen bepaald door enerzijds gehalten in de bovengrond welke grotendeels door menselijke activiteiten (bemesting, atmosferische depositie) zijn bepaald en anderzijds door van nature voorkomende gehalten. Om dit onderscheid te maken wordt het gehalte in de ondergrond op twee

manieren bepaald. Per bodemlaag wordt uiteindelijk de maximale waarde van beide gehalten gebruikt voor de uitspoelingberekeningen. In de praktijk betekent dit vanaf een bepaalde diepte gebruik wordt gemaakt van de relatie voor het achtergrondgehalte. In de bovenliggende lagen is de invloed van menselijke activiteiten nog merkbaar.

In de eerste methode wordt een relatie afgeleid tussen het gehalte in de ondergrond en bodemeigenschappen, gehalte in de bovengrond en diepte. Deze relatie geeft als het ware de invloed van menselijke activiteiten op de ondergrondgehalten weer. De relaties zijn afgeleid op basis van alle ondergrondmonsters in de dataset. Deze relatie heeft de volgende algemene vorm:

$$\log Me(z) = b_0 + b_1 \log z + b_2 \log Me(0) + b_3 \log OS + b_4 \log lutum + b_5 \cdot pH$$

waarbij OS en lutum in %, Me in mg/kg en z in cm -mv.

Voor de metalen Cd, Cu, Pb en Zn hebben b_0 t/m b_5 de volgende waarden:

Tabel 3.2 Coëfficiënten voor bepaling van gehalten in de ondergrond

metaal	b_0	b_1	b_2	b_3	b_4	b_5	R ²
Cd	-0.496	-0.354	0.382	0.174	0.261	0.011	0.44
Cu	0.364	-0.351	0.102	0.372	0.650	0.009	0.64
Pb	1.141	-0.560	0.191	0.312	0.369	0.014	0.55
Zn	0.343	-0.111	0.146	0.320	0.466	0.071	0.69

In de tweede methode worden het gehalte in de bovengrond en diepte niet meegenomen als predictor voor de bepaling van het gehalte in de ondergrond, waardoor het berekende gehalte kan worden gezien als een natuurlijke achtergrondwaarde. Voor de afleiding van deze relaties is gebruik gemaakt van de ondergrondmonsters van het project AW2000. Deze relatie heeft de volgende algemene vorm

$$\log Me_{\text{ondergrond}} = c_0 + c_1 \log OS + c_2 \log lutum + c_3 \cdot pH$$

waarbij OS en lutum in %, en Me in mg/kg.

Voor de metalen Cd, Cu, Pb en Zn hebben c_0 t/m c_3 de volgende waarden:

Tabel 3.3 Coëfficiënten voor bepaling regressievoorspellingen in ondergrond

metaal	c_0	c_1	c_2	c_3	R ²
Cd	-1.980	0.585	0.386	-	0.31
Cu	-0.338	0.581	0.751	-	0.48
Pb	0.307	0.633	0.346	-	0.40
Zn	0.228	0.410	0.467	0.084	0.60

3.2 Verbeterde hydrologie voor natuurplots

Bij alle berekeningen van de hydrologie van STONE is tot dusver voor alle natuurgebieden uitgegaan van de vegetatiestructuur “onbemest grasland”. Om recht te doen aan de diversiteit in vegetatiestructuren zoals deze in werkelijkheid voorkomen is voor de hydrologieberekeningen zoals gebruikt in dit rapport onderscheid gemaakt in vijf verschillende vegetatiestructuren, namelijk loofbos, dennenbos, sparrenbos, heide en onbemest grasland. Door een GIS-“overlay” te maken van de STONE natuurplots met het LGN3⁺-bestand (landgebruikbestand) (De Wit et al., 1999) en de vierde bosstatistiek (Clement, 2001) is het aandeel van elk van de vegetatietypes per STONE-plot bepaald. Een uitgebreide beschrijving van de methode voor toekenning van het onderscheiden landgebruik in LGN3⁺ aan de vegetatiestructuren in STONE is weergegeven in 0. Voor de uiteindelijke berekening van de uitspoeling van zware metalen is de hydrologie gebruikt van de meest voorkomende vegetatiestructuur per STONE-plot. Vegetatiekarakteristieken zoals deze gebruikt zijn voor de berekeningen van de hydrologie zijn weergegeven in Bijlage 2.

De invloed van deze verbeterde hydrologie op de resultaten van de uitspoelingsberekeningen is relatief gering omdat de grootste veranderingen zich voordoen in relatief droge gebieden (o.a. Veluwe) waar de uitspoeling door de lage grondwaterstand ook bij eerdere berekeningen gering was.

3.3 Overige aanpassingen

pH-KCl → pH-bodemvocht

In de schematisatie van de bodemeigenschappen van de STONE-plots is de pH-waarde opgenomen, welke is afgeleid van pH-bepalingen met een 1M KCl extractie. Voor de uitspoelingsberekeningen moet echter gerekend worden met de daadwerkelijke pH van het bodemvocht c.q. grondwater. Voor een aantal datasets met bodemmonsters bij Alterra is zowel pH-KCl als pH-bodemvocht bepaald. Op basis van deze datasets is de volgende relatie tussen beide pH-waarden afgeleid:

$$pH_{\text{bodemvocht}} = 0,82 \cdot pH_{\text{KCl}} + 1,79; \quad R^2 = 0,83$$

Bij de eerdere berekeningen is gerekend met pH-CaCl₂. Deze heeft een iets lagere waarde dan pH-bodemvocht.

4 Resultaten modelberekeningen

4.1 Invloed van redoxeffecten, landgebruik en bodemtype

In Bijlage 3 zijn kaartjes opgenomen met de berekende concentraties van zware metalen in het lateraal uitspoelende grondwater. Concentraties zijn weergegeven ten opzichte van verwaarloosbaar risico (VR) en maximaal toelaatbaar risico (MTR). Uit deze figuren volgt dat het aantal overschrijdingen van de MTR door zink veel geringer is dan bij de eerdere berekeningen. Voor koper, nikkel en zink wordt het meest een overschrijding van de MTR berekend. Evenals bij de eerdere berekeningen worden overschrijding van de MTR vooral berekend voor de veengebieden in West-Nederland en de kop van Overijssel/Zuid-Friesland. Voor de berekeningen waarbij de mogelijke effecten van redox-condities zijn meegenomen, is het aantal overschrijdingen nog verder afgenomen. Wel worden steeds overschrijdingen voor dezelfde metalen (Cu, Ni en Zn) en dezelfde gebieden berekend.

In onderstaande tabel zijn de totale vrachten van lateraal uitspoelende zware metalen weergegeven. Ter vergelijking zijn ook de resultaten van de berekeningen uit 2004 hier weergegeven. Verschillen tussen de resultaten van de huidige berekeningen zonder redoxeffecten en de berekeningen van 2004 zijn voornamelijk het gevolg van de nieuwe schematisatie van zware metaalgehalten (zie ook paragraaf 4.2).

Tabel 4.1 *Berekende vrachten van zware metalen die uitspoelen uit de bodem naar het oppervlaktewater (vrachten in tn/jr)*

metaal	zonder redox	met redoxeffecten	berekeningen 2004
Cd	0.23	0.06	1.63
Cu	20.5	8.7	23.7
Ni	21.3	7.8	110.4
Pb	42.9	10.5	39.1
Zn	146	48.8	1187

Uit bovenstaande tabel en de figuren in Bijlage 3 volgt dat berekende vrachten en concentraties (voor een aëroob profiel) voor de metalen Cd, Ni en Zn veel lager zijn dan bij de berekeningen uit 2004. Voor Cu en Pb zijn de vrachten vergelijkbaar. De berekeningen waarbij redoxeffecten worden meegenomen laten zien dat vrachten twee- tot viermaal lager kunnen zijn dan bij een aëroob bodemprofiel. De invloed van de nieuwe schematisatie van zware metaalgehalten is voor Cd, Ni en Zn veel groter dan het meenemen van mogelijke redoxprocessen.

In Tabel 4.2 zijn de zware metaalvrachten voor berekeningen waarbij redoxeffecten niet zijn meegenomen uitgesplitst per landgebruik en per bodemtype. Uit deze tabel volgt dat de bijdrage van landbouw aan de uitspoeling drie- tot viermaal groter is dan de bijdrage van natuur. Het landbouwareaal is daarentegen slechts ruim tweemaal groter dan het natuurareaal, wat betekent dat vrachten per hectare voor natuurgronden zoals verwacht lager zijn dan voor landbouwgronden. De grootste vrachten per hectare zijn voor alle vormen van landgebruik afkomstig van

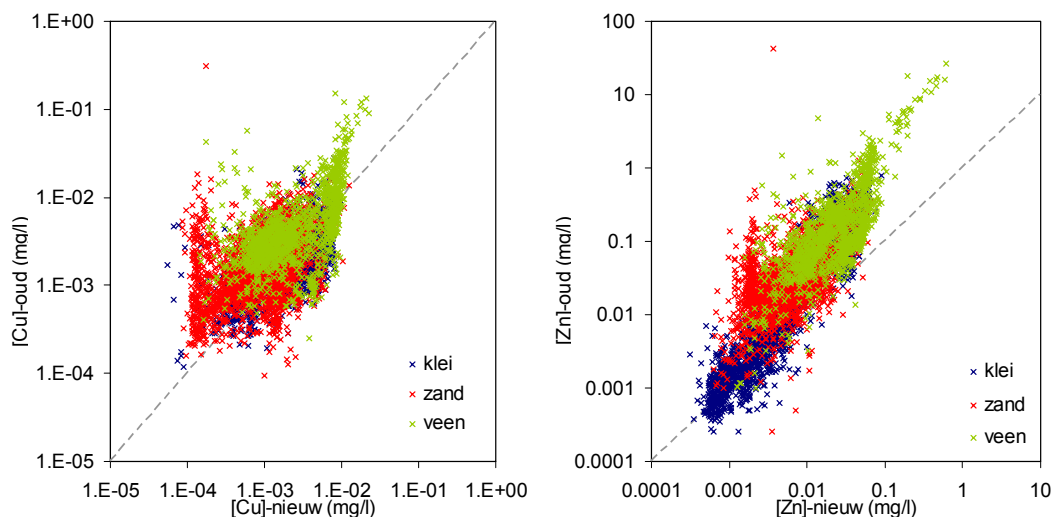
veengronden. Deze grote vrachten worden vooral veroorzaakt door de hogere grondwaterstanden in veengronden, waardoor uitspoeling uit de bovenste en meeste belaste bodemlagen plaatsvindt.

Tabel 4.2 Berekende zware metaalvrachten uitgesplitst per landgebruik en per bodemtype (zonder redoxeffecten).

landgebruik	bodemtype	oppervlakte (×1000 ha)	Cd (kg/jr)	Cu (tn/jr)	Ni (tn/jr)	Pb (tn/jr)	Zn (tn/jr)
maïs	klei/löss	41	2	0.3	0.3	0.5	1.1
	veen	24	6	0.2	0.3	0.7	2.7
	zand	156	14	0.5	0.3	1.7	2.8
bouwland	klei/löss	468	14	3.2	2.7	6.2	23
	veen	110	29	0.8	1.0	2.9	11
	zand	168	12	0.6	0.4	1.9	3.9
gras	klei/löss	317	13	2.5	2.1	4.0	9.5
	veen	278	40	6.7	8.2	8.4	48
	zand	388	37	1.2	1.2	5.4	8.0
landbouw totaal		1950	168	16	16	32	110
natuur	klei/löss	181	5	1.4	1.2	2.2	5.9
	veen	166	35	2.3	2.8	5.0	26
	zand	509	21	0.8	0.8	3.9	5.3
natuur totaal		855	61	4.5	4.8	11	37

4.2 Huidige berekeningen in vergelijking met berekeningen 2004

Uit bovenstaande blijkt dat de verbeterde schematisatie van zware metaalgehalten een zeer grote invloed heeft op de resultaten van de uitspoelingsberekeningen. Het grootste verschil tussen de huidige schematisatie en de schematisatie van 2004 is dat de huidige schematisatie beter aansluit bij de schematisatie van bodemeigenschappen (volgens STONE). Bij de eerdere schematisatie was het mogelijk dat aan STONE-plots met een relatief geringe bindingscapaciteit (laag organisch stof en lage pH) een hoog metaalgehalte werd toegekend. Dit hoge gehalte levert in combinatie met de lage bindingscapaciteit zeer hoge concentraties in het bodemvocht en grondwater op en daarmee zeer grote uitspoelingsvrachten. Voor de metalen Zn en Cd is dit effect veel groter dan voor Cu en Pb. Dit wordt geïllustreerd in onderstaande figuur, waarbij de concentraties van koper en zink in het (lateraal) uitspoelende grondwater voor de huidige berekeningen ten opzichte van de berekeningen van 2004 zijn weergegeven.

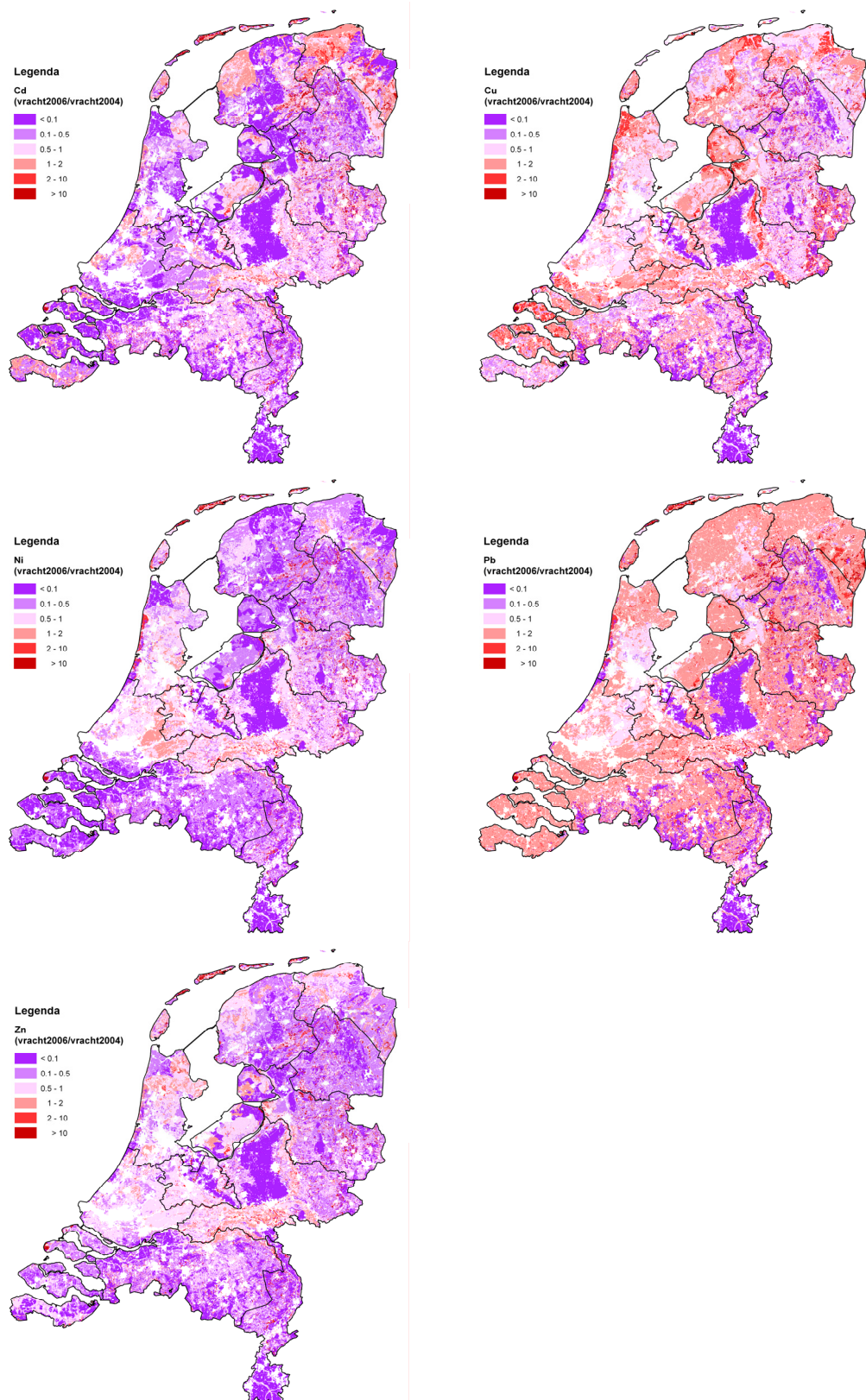


Figuur 4.1 Vergelijking van de concentraties van koper (links) en zink (rechts) volgens de huidige berekeningen en de eerdere uitspoelingsberekeningen.

Uit deze figuur volgt dat voor koper de nieuw berekende concentraties gemiddeld niet afwijken van de eerdere berekende concentraties. Wel zijn de hoogst berekende concentraties, vooral voor veengronden, sterk afgenomen. Voor zink geldt dat nieuw berekende concentraties gemiddeld lager zijn dan de eerdere waarden. Dit geldt zeer sterk voor de hoogste waarden. De zeer hoge concentraties uit de eerdere berekeningen bij veengronden zijn hier sterk afgenomen.

Het feit dat de berekende landelijke vrachten voor Zn (en ook voor Cd) veel lager zijn (factor 8) dan bij de eerdere berekeningen van 2004, wordt dus grotendeels verklaard doordat de zeer hoge concentraties en vrachten uit de eerdere berekeningen niet meer voorkomen in de huidige berekeningen.

In onderstaande kaartjes zijn de verhoudingen tussen de huidige en eerder berekende vrachten weergegeven voor alle STONE-plots.



Figuur 4.2 Verbodding tussen vrachten van zware metalen volgens huidige berekeningen (zonder redoxeffecten) en volgens berekening van 2004.

Algemeen

Uit deze figuren blijkt dat voor alle metalen de berekende vrachten lager zijn voor de hooggelegen gebieden: Veluwe, Utrechtse heuvelrug, Zuid-Limburg, Sallandse heuvelrug, stuwwallen bij Nijmegen, Montferland en Meinweg. Voor een groot deel zijn dit natuurgebieden. In deze gebieden zijn door de verbeterde schematisatie, waarbij het onderscheid tussen natuur en landbouw beter is meegenomen, de gebruikte zware metaalgehaltenes lager dan bij de berekeningen van 2004. Daarnaast geldt dat in het bijzonder voor bosgebieden de hydrologie is verbeterd (zie paragraaf 3.2), waarbij de nieuwe hydrologie een lagere grondwaterstand kent, met als gevolg een geringere uitspoeling. Echter de bijdrage van deze gebieden aan de totale uitspoeling op landelijke schaal is in de huidige berekeningen maar ook in de berekeningen van 2004 zeer gering. Deze veranderingen zijn dus nauwelijks verantwoordelijk voor de lagere vrachten van zink en cadmium (en nikkel) ten opzichte van de berekeningen van 2004.

Zink en cadmium

In de berekeningen van 2004 werden de hoogste vrachten en concentraties van zink en cadmium berekend voor de natte gebieden in Noordoost-Nederland (Kop van Overijssel, het zuiden van Friesland, enkele gebieden in Flevoland) en in Zuidwest-Nederland (Biesbosch en Zeeuwse eilanden). In het bijzonder voor zink waren de berekende concentraties zeer hoog, ook in vergelijking met gemeten concentraties. Uit de figuren valt af te leiden dat vooral in deze gebieden de berekende vrachten veel lager zijn dan in de eerdere berekeningen. De afname van de vrachten in deze gebieden zijn dan ook grotendeels verantwoordelijk voor de afname in de landelijke cijfers. De afname in deze gebieden wordt volledig veroorzaakt door de verbeterde schematisatie van zware metaalgehaltenes. Dat de huidige cijfers een verbetering zijn ten opzichte van de berekeningen uit 2004 blijkt verder ook uit de vergelijking tussen berekende en gemeten concentraties, waarbij vooral voor de veengronden de gemeten en berekende concentraties veel beter overeenkomen (zie paragraaf 4.4).

Koper en lood

De landelijke uitspoelingcijfers voor koper en lood wijken weinig af van de berekeningen van 2004. Op regionale schaal zijn er wel enige verschuivingen waar te nemen. Voor koper zijn de veranderingen zeer heterogeen verdeeld. Voor het merendeel betreft het geringen verhogingen of verlagingen van de vrachten. Voor lood lijken de vrachten gemiddeld iets hoger dan bij eerdere berekeningen. Voor de veengebieden in West en Noordoost Nederland zijn de vrachten echter gemiddeld iets lager. Voor de zandgebieden worden lokaal wel grote verlagingen berekend. Dit betreft vooral natuurgebieden. Deze lagere uitspoeling voor natuurgebieden is, zoals eerder vermeld, het gevolg van de verbeterde schematisatie van de zware metaalgehaltenes.

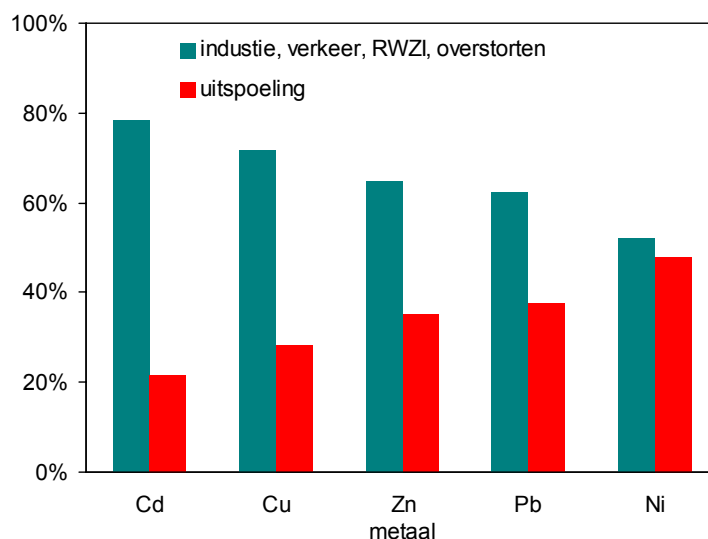
Nikkel

Voor nikkel zijn de berekende uitspoelingen voor bijna geheel Nederland lager dan de eerdere berekeningen. Een directe vergelijking met de eerdere berekeningen is echter niet goed mogelijk omdat de schematisatie van zware metaalgehaltenes voor nikkel bij de huidige berekeningen gebaseerd is op een veel grotere dataset dan bij de

berekeningen van 2004. Er kan daarom van worden uitgegaan dat de resultaten van de huidige berekeningen voor nikkel een aanmerkelijke verbetering zijn.

4.3 Uitspoeling in vergelijking met andere bronnen

In Figuur 4.3 wordt de bijdrage van de verschillende bronnen aan de totale belasting van het oppervlakte water met zware metalen weergegeven.

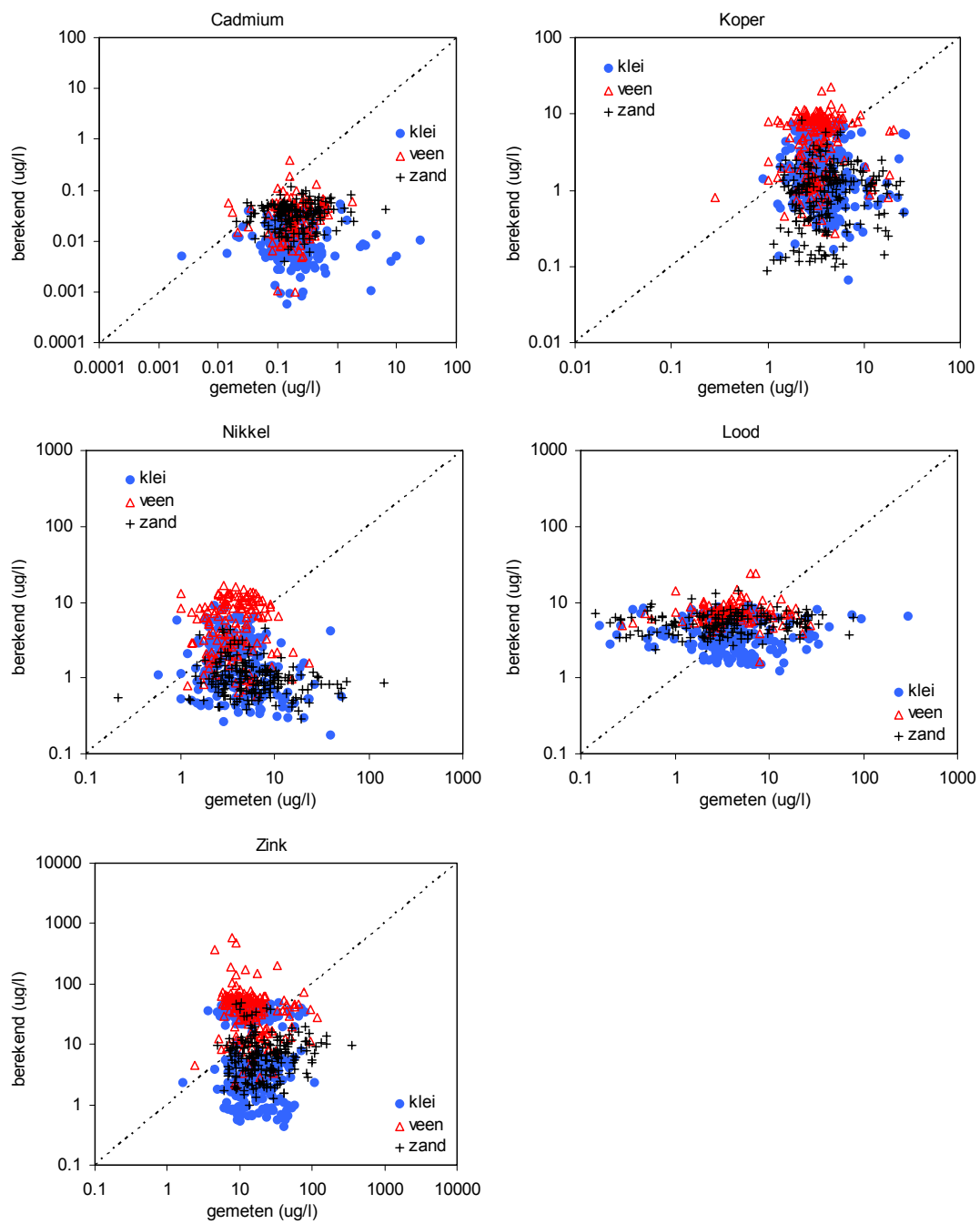


Figuur 4.3 Bijdrage van uitspoeling (rood) en andere bronnen (blauw) aan de belasting van het oppervlaktewater door zware metalen

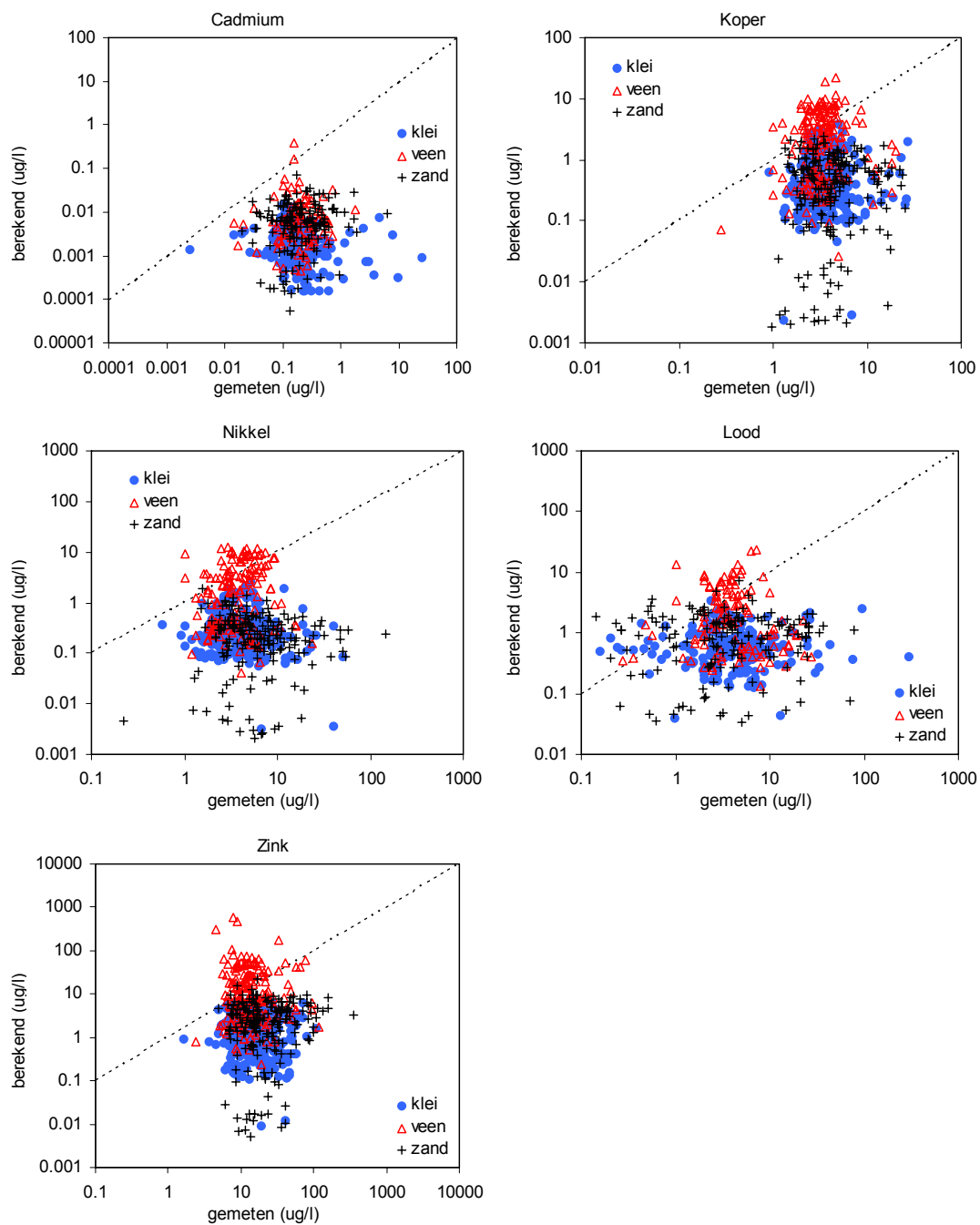
Uit bovenstaande figuur volgt dat uitspoeling uit de bodem voor alle metalen een belangrijke bron is voor de belasting van het oppervlaktewater. De bijdrage varieert van 20% voor cadmium tot ongeveer 40 % voor zink, lood en nikkel. Ondanks dat de huidige berekende vrachten voor zink en nikkel lager zijn dan volgens de berekeningen van 2004 is de bijdrage aan de totale belasting nog steeds relatief groot.

4.4 Vergelijkingen met metingen in het oppervlaktewater

In Figuur 4.4 en Figuur 4.5 zijn de berekende concentraties per STONE-eenheid uitgezet tegen gemiddelde gemeten concentraties in het oppervlaktewater. Hierbij is onderscheid gemaakt in bodemtype.



Figuur 4.4 Gemeten versus berekende concentraties in het oppervlaktewater per STONE-eenheid (concentraties in $\mu\text{g/l}$), redoxeffecten zijn niet meegenomen



Figuur 4.5 Gemeten versus berekende concentraties in het oppervlaktewater per STONE-eenheid (concentraties in $\mu\text{g/l}$), mogelijke redoxeffecten (d.w.z. sulfatreductie in de verzadigde zone) zijn wel meegenomen

In Tabel 4.3 is de gemiddelde afwijking van berekende concentraties in het lateraal uitspoelende grondwater ten opzichte van de meetwaarden in het oppervlaktewater weergegeven.

Tabel 4.3 *Gemiddelde afwijking berekende concentraties ten opzichte van gemeten concentraties (geometrisch gemiddelde van berekend/gemeten; waarde =1 betekent: geen afwijking, waarde < 1 betekent berekende concentraties zijn kleiner dan gemeten concentraties)*

	Cd	Cu	Ni	Pb	Zn
zonder redoxeffecten					
zand	0.16	0.20	0.16	1.48	0.29
klei	0.04	0.44	0.37	0.92	0.34
veen	0.15	1.16	1.23	1.79	2.37
alle plots	0.09	0.45	0.38	1.27	0.55
met redoxeffecten					
zand	0.02	0.06	0.03	0.20	0.07
klei	0.01	0.10	0.06	0.13	0.06
veen	0.03	0.50	0.36	0.42	0.66
alle plots	0.02	0.13	0.07	0.20	0.12

Uit bovenstaande tabel volgt dat bij berekeningen waarbij redoxeffecten niet worden meegenomen de berekende concentraties voor de meeste metalen en bodemtypen lager zijn dan gemeten concentraties. Een uitzondering zijn de veengronden waarbij berekende concentraties de gemeten concentraties overschrijden. Omdat naast uitspoeling ook andere bronnen een bijdrage leveren aan de concentratie zware metalen in het oppervlaktewater is een onderschatting van de gemeten concentraties conform de verwachting. Zoals reeds in de inleiding gesteld zijn voor veengronden de berekende concentraties mogelijk te hoog tengevolge van vorming van metaalsulfides onder sulfaatreducerende omstandigheden. Voor de berekeningen waarbij sulfaatreductie (dus met redoxeffecten) wel is meegenomen geldt dat berekende concentraties voor alle metalen en bodemtypen gemiddeld lager zijn dan de gemeten concentraties. Voor veengronden echter geldt dat de verschillen tussen gemeten en berekende concentraties met het meenemen van redoxeffecten overeenkomen met de verschillen zoals waargenomen voor zand en klei indien redoxeffecten niet worden meegenomen. Dit is een verdere aanwijzing dat voor veel veengronden redoxeffecten wel een rol spelen, terwijl dit voor de meeste zand- en kleigronden niet het geval is.

Voor cadmium geldt dat voor alle berekeningen de berekende concentraties gemiddeld veel lager zijn dan de gemeten concentraties. Dit komt overeen met het feit dat voor cadmium de berekende bijdrage van uitspoeling aan de belasting van het oppervlaktewater het geringst is. De concentraties in het oppervlaktewater worden dan voornamelijk bepaald door andere bronnen. Verder geldt nog dat bij het afleiden van de regressiemodellen voor de ondergrond, in veel monsters de gehalten van cadmium beneden de detectielimiet waren. Dit heeft tot gevolg dat regressievoorspellingen van de cadmiumgehalten voor de ondergrond een grote onzekerheid hebben, wat weerspiegeld wordt in de lage waarde R^2 voor de regressiemodellen van cadmium. Dit leidt mogelijk tot afwijkingen tussen de gemeten en de berekende concentraties van cadmium.

5 Conclusies en aanbevelingen

Conclusies

Invloed van de redoxtoestand.

Uit de berekeningen volgt dat de maximaal mogelijk invloed van reducerende omstandigheden relatief groot is. Uit vergelijking met metingen in het oppervlaktewater blijkt dat de berekende concentraties in geval van reducerende omstandigheden vooral voor zand en klei gronden lager zijn dan gemeten concentraties. Voor veengronden komen berekende concentraties wel redelijk overeen met gemeten concentraties. Dit geldt voor veengronden echter ook indien wordt uitgegaan van een volledig aëroob bodemprofiel. Samenvattend kan worden gesteld dat, reducerende omstandigheden hoogstwaarschijnlijk geen belangrijke rol spelen voor zand- en kleigronden. Voor veengronden is geen eenduidige conclusie hieromtrent mogelijk. Dit sluit wel aan bij de eerder uitgesproken verwachting waarbij werd gesteld dat reducerende omstandigheden alleen van belang zouden kunnen zijn in veengronden. Omdat er geen duidelijke conclusie ten aanzien van redoxeffecten mogelijk is, is besloten redoxeffecten dan ook niet mee te nemen voor de emissieregistratie.

Vergelijking van huidige berekeningen t.b.v. emissieregistratie met berekeningen van 2004

In algemeen geldt dat berekende vrachten van alle metalen voor de hogere gebieden lager zijn dan bij de eerdere berekeningen, tengevolge van de verbeteringen in de schematisatie van zware metaalgehalten en in de hydrologie voor natuurgebieden. Voor zink geldt dat zeer hoge vrachten en concentraties bij de eerdere berekeningen voor veengebieden, bij de huidige berekeningen veel lager zijn. De lagere cijfers voor deze gebieden zijn grotendeels verantwoordelijk voor lagere cijfers op landelijke schaal. De berekende concentraties komen bij de huidige berekeningen veel beter overeen met de gemeten concentraties, waardoor kan worden geconcludeerd dat de veranderingen ten opzichte van de eerdere berekeningen logisch en realistisch zijn. Voor koper en lood geldt dat de landelijke cijfers slechts in geringe mate afwijken van de eerdere berekeningsresultaten. Lokaal kunnen er ten gevolge van de verbeterde schematisatie wel veranderingen zijn. Voor nikkel tenslotte geldt dat de schematisatie gebaseerd is op veel meer datapunten dan vorige keer.

Uitspoeling in verhouding tot andere bronnen

De huidige berekeningen geven aan dat uitspoeling van zware metalen een belangrijke bron van belasting van het oppervlaktewater blijft. De bijdrage aan de totale belasting varieert van ongeveer 20% voor cadmium tot ongeveer 40% voor zink, lood en nikkel.

Aanbevelingen

Validatie van modelberekeningen

De resultaten van de huidige berekeningen zijn slechts gevalideerd door te vergelijken met gemeten concentraties in oppervlaktewater. Deze gemeten concentraties kunnen echter sterk beïnvloed zijn door bijdragen van andere bronnen en vermenging met gebiedsvreemd water. Om de betrouwbaarheid van de huidige berekeningsresultaten beter vast te stellen, is het wenselijk om ook een vergelijking te doen van berekende vrachten met gemeten vrachten (stofstroomanalyse). Deze analyse levert een duidelijker beeld op van de kwaliteit van de berekeningsresultaten.

Processen in de ondergrond

De gebruikte schematisatie van gehalten in de bodem houdt slechts beperkt rekening met processen in diepere bodemlagen zoals kwel en pyrietoxidatie. Voor metalen met een sterk geogene bijdrage (m.n. nikkel) is het daarom wenselijk bij een eventuele volgende berekening dit mee te nemen. Voor metalen die voornamelijk afkomstig zijn van antropogene bronnen (m.n. zink en koper) zullen processen in de ondergrond nauwelijks een rol van betekenis spelen. Verwacht wordt dat voor deze metalen kwel slechts zeer lokaal een belangrijke bijdrage aan de uitspoeling levert.

Achtergrondbelasting

Met de gebruikte schematisatie voor zware metalen is ook mogelijk om een achtergrondgehalte in de bodem te berekenen (zie pagina 17-18) en daarmee ook achtergronduitspoeling te berekenen. Tezamen met het meenemen van ondergrondprocessen als kwel kan dan een ‘natuurlijke’ achtergrondbelasting worden berekend. Voor veel normstellingvraagstukken en voor het vaststellen van maatregelen kan de achtergrondbelasting een belangrijk bijdrage aan de discussie zijn.

Literatuur

- Bonten, L.T.C., P.F.A.M. Romkens, and G.B.M. Heuvelink. 2004. Uitspoeling van zware metalen in het landelijk gebied. Modelleren van uitspoeling op regionale schaal: modelaanpak, resultaten modelberekeningen en modelvalidatie Alterra-rapport 1044. Alterra, Wageningen.
- Brus, D.J., J.J. de Gruijter, D.J.J. Walvoort, F. de Vries, P.F.A.M. Romkens, and W. de Vries. 2002. Landelijke kaarten van de kans op overschrijding van kritieke zware metaalgehalten in de bodem van Nederland 124. Alterra, Wageningen.
- Clement, J. 2001. GISBOS Vierde Bosstatistiek; Documentatie van bestanden. Alterra-Document. Alterra, Research Instituut voor de Groene Ruimte, Wageningen.
- De Vries, W., J. Kros, O. Oenema and J. de Klein. 2003. Uncertainties in the fate of nitrogen II: A quantitative assessment of the uncertainties in major nitrogen fluxes in the Netherlands. *Nutr. Cycl. Agroecosyst.* 66, 71-102.
- De Wit, A.J.W., T.G.C. van der Heijden and H.A.M. Thunnissen. 1999. Vervaardiging en nauwkeurigheid van het LGN3-grondgebruiksbestand. Rapport 663. DLO-Staring Centrum, Wageningen.
- Deutsch, C.V. and A.G. Journel, 1998. GSLIB. Geostatistical software library and user's guide. Second edition. Oxford University Press, New York
- Kroon, T., P. Finke, I. Peereboom and A. Beusen, 2001. Redesign STONE. De nieuwe schematisatie voor STONE: de ruimtelijke indeling en de toekenning van hydrologische en bodemchemische parameters. RIZA rapport 2001.017. RIZA, Lelystad.
- Kros, J. 2002. Evaluation of biogeochemical models at local and regional scale, PhD-thesis, Wageningen University
- Lamé, F.P.J., D.J. Brus., R.H. Nieuwenhuis, 2004. Achtergrondwaarden 2000, NITG 04-242-A, TNO, Utrecht
- Romkens, P.F.A.M., J.E. Groenenberg, L.T.C. Bonten, W. de Vries, and J. Bril. 2004. Derivation of partition relationships to calculated Cd, Cu, Ni, Pb and Zn solubility and activity in soil solutions Alterra-report 305. Alterra, Wageningen.

Bijlage 1 Methode voor toekennen vegetatietypes aan STONE natuurplots

Bij alle berekeningen van de hydrologie van STONE is tot dusver voor alle natuurgebieden uitgegaan van de vegetatiestructuur “onbemest grasland”. Om recht te doen aan de diversiteit in vegetatiestructuren zoals deze in werkelijkheid voorkomen is voor de hydrologieberekeningen zoals gebruikt in dit rapport onderscheid gemaakt in vijf verschillende vegetatiestructuren, namelijk loofbos, dennenbos, sparrenbos, heide en onbemest grasland. Het betreft hier dezelfde indeling in vegetatiestructuren zoals die wordt gehanteerd binnen SMART2 (Kros, 2002) en INITIATOR (De Vries et al., 2003). Voor de onderverdeling is gebruik gemaakt van het remote-sensing bestand LGN3⁺ (De Wit et al., 1999) en de vierde bosstatistiek (Clement, 2001). Hierbij is de vierde bosstatistiek gebruikt voor de onderverdeling van naaldbos in dennenbos en sparrenbos, een onderscheid waarin LGN3⁺ niet voorziet. Er is niet gekozen voor de meest recentste versie van het landgebruikbestand (LGN4), maar voor LGN3⁺ omdat deze laatste versie ook is gehanteerd voor de indeling van STONE plots (Kroon et al., 2001).

Voor het onderverdelen van het areaal “natuur” is de volgende procedure gehanteerd:

1. Reclassificatie van de LGN3⁺ classificatie naar de vegetatiestructuren loofbos, naaldbos, heide en onbemest grasland
2. Reclassificatie van de naaldbossen in vierde bosstatistiek naar dennenbossen en sparrenbossen
3. Overlay van het gereclassificeerde LGN 3⁺ en vierde bosstatistiek met STONE-natuurplots.
4. Bepaling per STONE-plot van de fractie loofbos, dennenbos, sparrenbos en heide
5. Controleren van de aan STONE-plots toegekende arealen loofbos, dennenbos, sparrenbos en heide aan de hand van de totalen (volgens LGN3/bosstatistiek) per provincie
6. Middels generieke weegfactoren per provincie de toegekende arealen corrigeren, zodat op het niveau van een provincie de arealen in overeenstemming zijn met de CBS statistiek.
7. Toekenning van het resterend deel aan onbemest grasland
8. Bepaling van de dominante vegetatiestructuur per STONE-plot, deze is gebruikt voor hydrologieberekeningen.
9. Berekening hydrologie voor elke STONE-‘natuur’plot

ad 1.

In Tabel 1 is weergegeven is hoe de reclassificatie van LGN3 naar de hier gehanteerde vegetatiestructuren is uitgevoerd.

Tabel 1 Tabel met reclassificatie van LGN3 naar de gehanteerd vegetatiestructuren

LGN3+ Code	Omschrijving	Reclassificatie
1	gras	
2	maïs	
3	aardappelen	
4	bieten	
5	granen	
6	overige landbouwgewassen	
8	glastuinbouw	
9	boomgaard	
10	bollen	
11	loofbos	Loof
12	naaldbos	Naald
16	zoet water	
17	zout water	
18	stedelijk bebouwd gebied	
19	bebouwing	
in	buitengebied	
20	loofbos in bebouwd gebied	
21	naaldbos in bebouwd gebied	
22	bos met dichte bebouwing	
23	gras in bebouwd gebied	
24	kale grond in bebouwd buitengebied	
25	hoofdwegen en spoorwegen	
26	bebouwing in agrarisch gebied	
30	kwelders	Onbemest gras
31	open zand in kustgebied	Onbemest gras
32	open duinvegetatie	Onbemest gras
33	gesloten duinvegetatie	Onbemest gras
34	duinheide	Heide
35	open stuifzand	Heide
36	heide	Heide
37	matig vergraste heide	Heide
38	sterk vergraste heide	Heide
39	hoogveen	Onbemest gras
40	bos in hoogveengebied	Loofbos
41	overige moerasvegetatie	Onbemest gras
42	rietvegetatie	Onbemest gras
43	bos in moerasgebied	Loofbos
44	veenweidegebied	Onbemest gras
45	overig open begroeid natuurgebied	Onbemest gras
46	kale grond in natuurgebied	Onbemest gras

ad 2.

In Tabel 2 is weergegeven is hoe de reclassificatie van de naaldbomen uit vierde bosstatistiek naar de hier gehanteerde klassen dennenbos, sparrenbos en loofbos is uitgevoerd.

Tabel 2 Tabel met reclassificatie van vierde bosstatistiek naar de gehanteerd vegetatiestructuren

Dennen	Sparrenbos	Loofbos
11 = grove den	21 = douglas	31 = japanse lariks
12 = corsicaanse den	41 = fijnspar	32 = europese lariks
13 = oostenrijkse den	42 = sitkaspar	
14 = wymouth den	43 = omorikaspar	
15 = pinus contorta	49 = spar, overig	
16 = rigida den	51 = tsuga	
17 = zeeden	52 = thuja	
19 = den, overig	53 = abies grandis	
59 = naaldbomen, overige	54 = abies alba	
	55 = chamaecyparis	
	56 = jeneverbess	

ad. 5, 6 en 7

Omdat er ten gevolge van de onzuiverheid van de STONE-plots ook natuur buiten de natuurplots ligt, is er een correctie toegepast, volgens:

$$A_n^*(i) = A_n(i) + \left(A_n(P) - \sum_i A_n(i) \right) \cdot \frac{\sum_i \sum_n A_n(i)}{\sum_n A_{n(i)}} \quad (a)$$

met:

$A_n^*(i)$ = het gecorrigeerde areaal (ha) van landgebruik n (=loofbos, naaldbos, heide) in STONE-plot i

$A_n(i)$ = het areaal (ha) van landgebruik n (=loofbos, naaldbos, heide) in STONE-plot i resulterend uit de overlay met LGN3⁺

$A_n(P)$ = het tot areaal (ha) van landgebruik n (=loofbos, naaldbos, heide) in provincie P gebaseerd op LGN3

Op deze wijze is er zorg voor gedragen dat de som van de arealen loofbos, naaldbos en heide voor de STONE-plots in een bepaalde provincie gelijk is aan het volgens LGN3⁺ bepaalde areaal in de betreffende provincie. Vervolgens is het areaal naaldbos per STONE-plot opgesplitst in sparrenbos en dennenbos op basis van informatie uit de vierde bosstatistiek (Clement, 2001). Hiertoe is gebruik gemaakt van de verhouding sparren/dennen van de naaldbossen die vanuit de bosstatistiek binnen de corresponderende STONE-plot vallen. Tenslotte is het resterende areaal (er was altijd sprake van een restpost) toegekend aan onbemest grasland.

In Tabel 3 is aangegeven hoe de onderscheiden natuurscategorieën verdeeld zijn over de bodem-vochtklasse combinaties. Uit deze tabel blijkt dat de gehanteerde disaggregatie-methode om de STONE-natuurplots op te splitsen in bossen en heide op nationaal niveau vergelijkbare arealen oplevert als vermeld in de referentie bestanden (LGN3 plus 4^e Bosstatistiek). Dit ligt uiteraard voor de hand omdat de STONE-arealen op het niveau van provincies aan het LGN3 zijn gelijk gesteld (zie

vergelijking (a)). Het areaal onbemest grasland valt echter substantieel hoger uit. Dat het areaal (on)bemest gras in STONE behoorlijk hoger uitvalt dan op basis van het LGN3 is het gevolg van de in STONE gehanteerde ‘correctie’ grasareaal.

Tabel 3 Arealen natuur (ha) opgesplitst in sparrenbossen, dennenbossen, loofbossen, heide en onbemest grasland op de diverse bodemtype-vochtklasse combinaties volgens de in INITIATOR2 gecorrigeerde STONE-schematisatie en LGN3 plus 4^e Bosstatistiek.

Vocht klasse	Bodemtype	Oppervlakte (ha)				
		Loofbos	Sparrenbos	Dennenbos	Heide	Onbemest grasland
Droog	Zand	67626	24748	118537	25401	144556
	Klei	6018	418	935	82	33740
	Veen	2920	594	694	626	17518
	Löss	3825	654	548	88	5886
	Totaal (STONE)	80390	26414	120715	26197	201700
Vochtig	Zand	13099	4279	9867	1762	58767
	Klei	5799	331	567	115	60810
	Veen	4083	603	513	438	41805
	Löss	17	1	15	3	214
	Totaal (STONE)	22998	5213	10962	2318	161596
Nat	Zand	7796	1247	2813	662	27545
	Klei	13620	828	899	94	43549
	Veen	8910	929	1605	679	83640
	Löss	714	45	150	8	542
	Totaal (STONE)	31040	3049	5467	1443	155276
Totaal	STONE	134428	34676	137144	29958	518573
	LGN/Bosstatistiek	134469	32247	139653	29966	114819

Volgens de toekenningprocedure is het totale areaal aan grasland en bouwland vrijwel gelijk. Verder blijkt dat de totale arealen uit het GIAB heel aardig overeenkomen met die uit STONE, zoals gebruikt in INITIATOR2. Volgens GIAB (gebaseerd op de LEI-landbouwtelling gegevens van 2000) zou er sprake zijn van 3% meer grasland ten koste van bouwland. Een dergelijke afwijking is zeer acceptabel temeer omdat de GIAB data betrekking hebben op het jaar 2000 en STONE gebaseerd is op LGN3 dat is afgeleid van satellietbeelden uit 1995 en 1997. Opmerkelijk is echter wel dat volgens Kroon et al. STONE 350.000 ha meer gras omvat dan volgens de LEI-landbouwtelling 1997. Dit verschil wordt deels veroorzaakt door (1) 150 000 ha niet getelde grond en (2) 142 000 ha relatienota gras (landbouwgebied dat in de Relatienota 1975 is aangewezen als natuurreservaat of landbouw met verhoogde natuurwaarde). Deze arealen zijn niet in de landbouwtelling opgenomen, maar uiteraard wel zichtbaar in het LGN3 bestand. Binnen STONE is deze 350 000 ha ‘extra’ grasland toegevoegd als onbemest grasland aan de natuurplots.

ad 8.

De meest voorkomende (dominante) vegetatiestructuur per STONE-plot is gebruikt voor de hydrologieberekeningen. Deze keuze van de dominante vegetatiestructuur per STONE-plot kan tot gevolg hebben dat de verhouding tussen de verschillende

vegetatiestructuren niet meer gelijk is aan de verhouding volgens LGN3⁺ en vierde bosstatistiek. Om dit te voorkomen is voor de bepaling van de dominante vegetatiestructuur een weegfactor per vegetatiestructuur gehanteerd.

ad 9.

Voor 21 STONE-‘natuur’plots kon geen hydrologie worden berekend, doordat er een sterk stijgende of sterk dalende trend in het grondwater werd berekend. Voor al deze 21 plots was ‘onbemest grasland’ de dominante vegetatiestructuur. Voor de uitspoelingberekeningen is voor deze plots gebruik gemaakt van de bestaande hydrologie.

Bijlage 2 Vegetatiekenmerken ten behoeve van hydrologie-berekeningen

Voorafgaand aan de hydrologie berekeningen met behulp van SWAP, is een literatuur studie uitgevoerd naar de parametrisatie van de verschillende vegetatietypen (loofbos/DEC, dennenbos/PIN, sparrenbos/SPR, gras/GRP en heide/HEA). De studie is uitgevoerd voor de SWAP invoer parameters LAI, boomhoogte, maximum worteldiepte, wortelverdeling, vrije doorval, stamvloeï, interceptiecapaciteit en gewasweerstand. Er is getracht om per vegetatietype een voor Nederland gemiddelde situatie te geven.

In eerste instantie zijn met de in de literatuur gevonden parametrisatie voor loofbos, dennenbos, sparrenbos, gras en heide alle STONE-plots doorgerekend. Na analyse van de gegevens blijkt dat bij meer dan 400 STONE-plots de hydrologieberekeningen niet tot een goed resultaat hebben geleid (voornamelijk veroorzaakt door numerieke rekenproblemen en/of het te diep wegzakken van de grondwaterspiegel). Vervolgens is met behulp van een referentiedataset, afkomstig van veldexperimenten in Castricum, een calibratie van de gewasparameters uitgevoerd. Hierbij is vooral gekeken naar de totale verdamping en deze is vergeleken met de verdamping van de veldexperimenten en een aantal verdampinggegevens uit de literatuur.

De uiteindelijke gecalibreerde gewasparameters staan weergegeven in Tabel 1. In deze tabel staan tevens de oorspronkelijke gewasparameters voor gras zoals die gebruikt zijn voor de vorige STONE natuur berekeningen.

Met deze gecalibreerde gewasparameters is vervolgens weer heel Nederland doorgerekend. Na analyse van de gegevens blijken er nog ca 200 plots te zijn waar geen hydrologie berekend kon worden of waarvan het grondwater te diep wegzakt. Voor de dominante vegetatiestructuur van de natuurplots kon voor 21 plots geen hydrologie worden berekend. Dit betrof allemaal plots met onbemest grasland als vegetatiestructuur. Voor deze plots is gekozen voor de reeds bestaande hydrologie voor onbemest grasland, zoals gebruikt bij de emissieregistratieberekeningen van 2005.

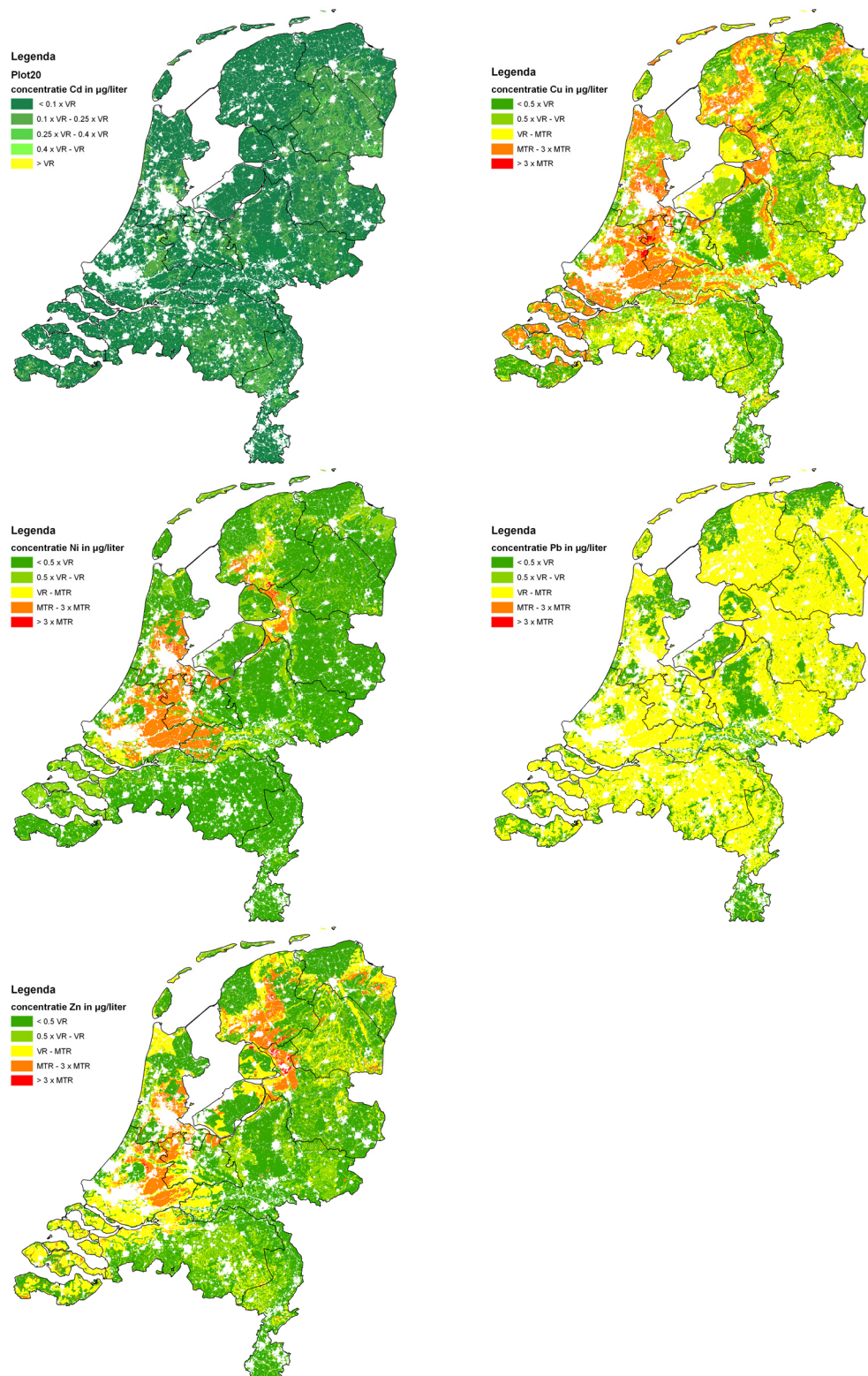
Tabel 1 Samenvatting van de parametrisatie van de verschillende vegetatietypen en de oorspronkelijke STONE parametrisatie voor grasland

Parameter	Leaf Area Index (LAI)					
DVS	Grove den	Fijnspar	Loof	Heide	Gras	Gras STONE
	PIN	SPR	DEC	HEA	GRP	2005
0	2.5	5.0	2.0	1.0	1.5	3.0
0.17	2.5	5.0	2.0	1.0	1.5	3.0
0.33	2.5	5.0	2.0	1.0	1.5	3.0
0.5	2.5	5.0	2.0	1.0	1.5	3.0
0.69	3.0	5.0	2.5	1.0	1.5	3.0
0.83	3.0	5.0	4.0	1.0	1.5	3.0
1.0	3.0	5.0	4.0	1.0	1.5	3.0
1.17	3.0	5.0	4.0	2.0	2.5	3.0
1.34	3.0	5.0	4.0	2.5	3.0	3.0
1.5	3.0	5.0	4.0	2.0	2.5	3.0
1.67	2.5	5.0	2.5	1.0	1.5	3.0
1.84	2.5	5.0	2.0	1.0	1.5	3.0
2.0	2.5	5.0	2.0	1.0	1.5	3.0
Vegetatiehoogte (m)	18	18	16	0.3	0.5	0.12
Max.worteldiepte (cm)	70	80	100	40	60	30
Diepte	Wortelverdeling fijne wortels (%)					
0-5 (strooisel)	5	5	5	5	5	25
5-10	25	20	15	80	55	25
10-20	20	15	20	10	20	25
20-30	20	15	20	5	10	25
30-40	10	15	10		5	
40-50	10	10	10		4	
50-60	5	10	5		1	
60-70	5	5	5			
70-80		5	5			
80-90			4			
90-100			1			
Interceptie-model	1	1	1	2	2	2
Interceptie (%)	30	40	80 (z) 20 (w)	nvt	nvt	nvt
Vrije doorval-coëfficiënt	0.30	0.15	0.2 (z) 0.8 (w)	nvt	nvt	nvt
Stamvloe-coëfficiënt	0.03	0.03	0.06	nvt	nvt	nvt
Interceptie-capaciteit S (cm)	0.10	0.30	0.1 (z) 0.03 (w)	nvt	nvt	nvt
Interceptie-coëfficiënt	nvt	nvt	nvt	0.25	0.35	0.25
Gewasweerstand (s/m)	100	140	100	60	60	70

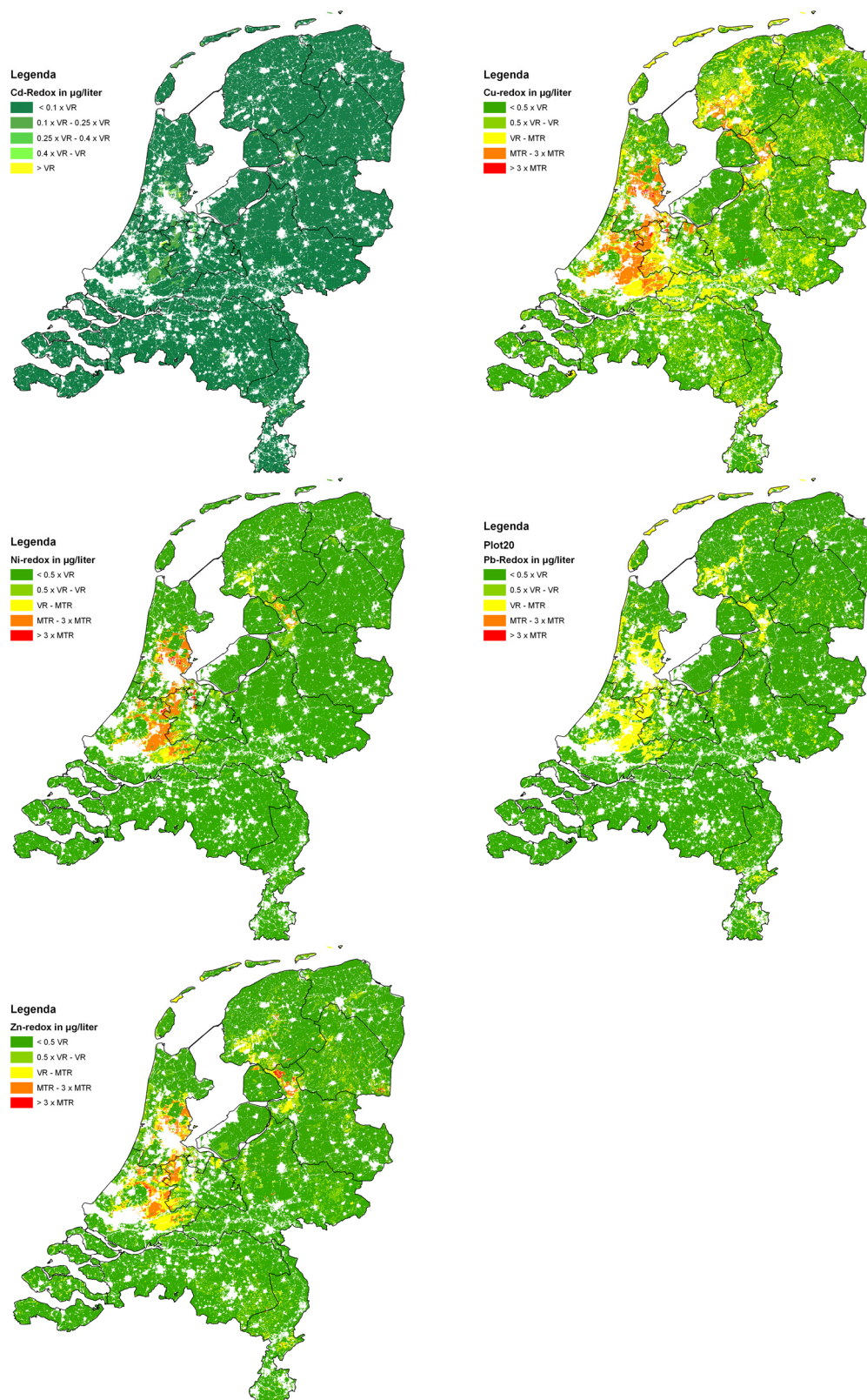
(z) = zomer, (w) = winter

Interceptiemodel: 1 = Gash95, 2 = Von Hoyningen-Hune and Braden

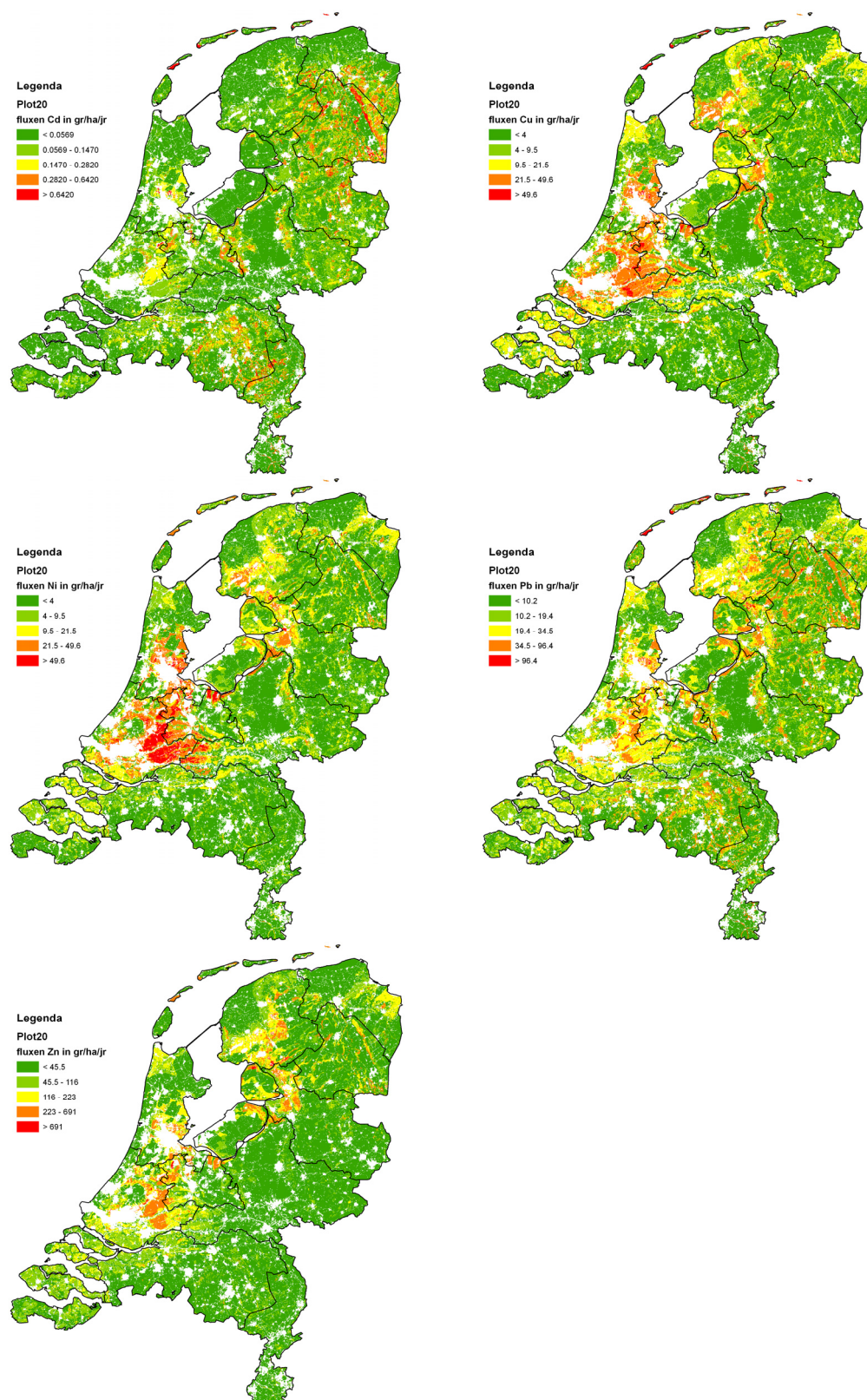
Bijlage 3 Berekende concentraties en fluxen van zware metalen



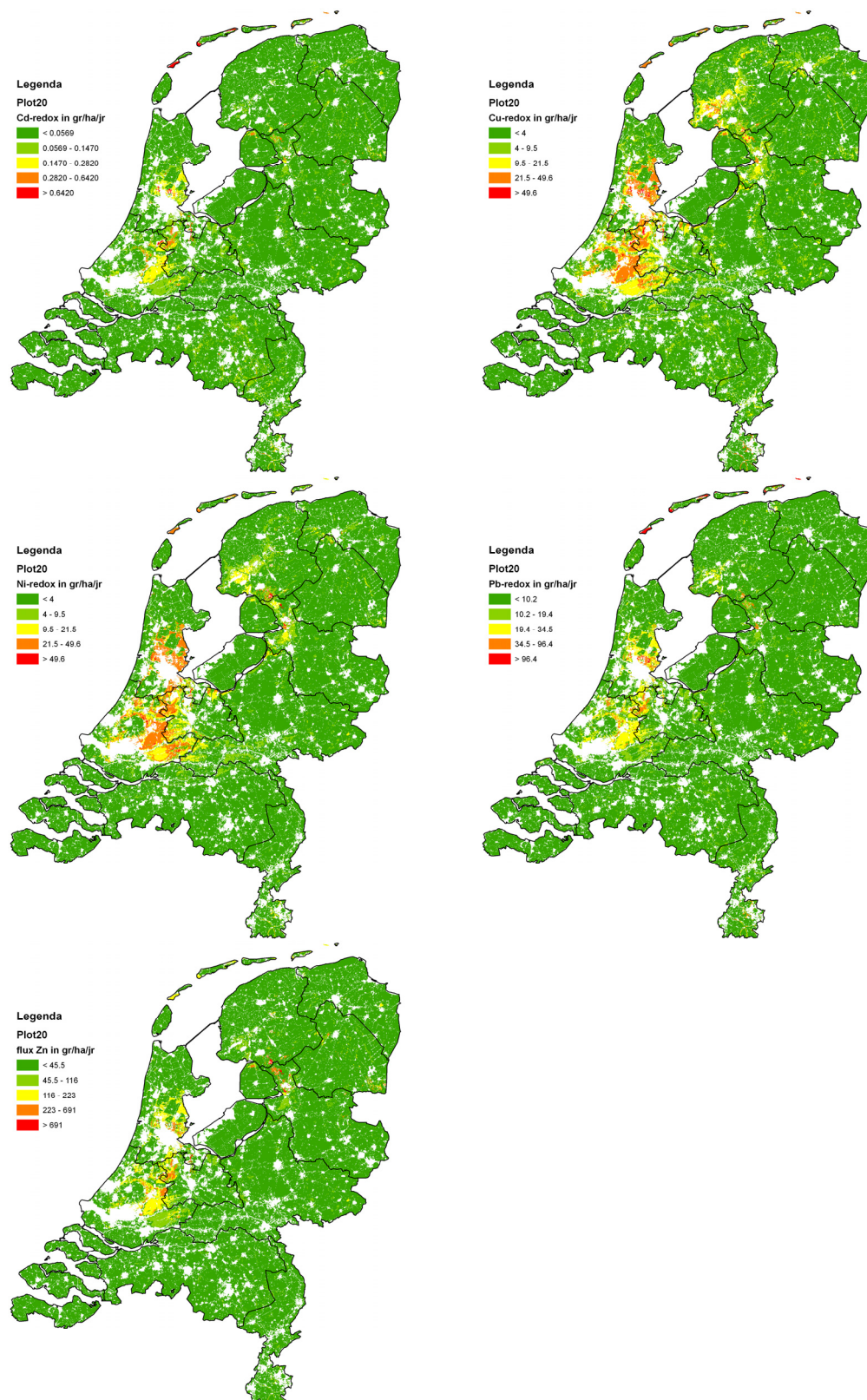
Figuur 1 Berekende concentraties van zware metalen in het lateraal uitspoelend grondwater voor alle STONE-eenbeden, profiel is volledig aëroob. Concentraties t.o.v. VR en MTR-niveaus.



Figuur 2 Berekende concentraties van zware metalen in het lateraal uitspoelend grondwater voor alle STONE-eenheden, profiel is gedeeltelijk sulfaatreducerend. Concentraties t.o.v. VR en MTR-niveaus.



Figuur 3 Berekende fluxen van zware metalen in het lateraal uitspoelend grondwater voor alle STONE-eenheden, profiel is volledig aëroob. Fluxen in g/ha/jr.



Figuur 4 Berekende fluxen van zware metalen in het lateraal uitspoelend grondwater voor alle STONE-eenheden, profiel is gedeeltelijk sulfaatreducerend. Fluxen in g/ha/jr.