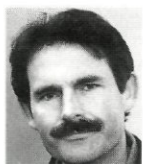


Gedrag van microverontreinigingen bij oeverinfiltratie en kunstmatige infiltratie; effecten van bodempassage gemeten langs stroombanen

1. Aanleiding

Drinkwateren bereid uit oppervlaktewater (na verblijf in een spaarbekken) en oever- of duininfiltraat, bevatten bij elkaar opgeteld minstens 230 organische microverontreinigingen; 230 van de 950 die Van Genderen et al. [1994] in Rijn, IJsselmeer, Maas en Haringvliet aantreffen in de periode 1983-1993. Nu zijn de concentraties in veruit de meeste gevallen $<0,1 \mu\text{g/l}$, en ontbreken er aanwijzingen voor nadelige effecten hiervan voor de volksgezondheid. Toch roept de aanwezigheid



PIETER J. STUYFZAND
Kiwa NV Onderzoek en Advies



FRANS LÜERS
Kiwa NV Onderzoek en Advies

van zo veel milieuvreemde stoffen wel vragen op:

- draagt bodempassage nog wel bij aan een kwaliteitsverbetering van oppervlaktewater?
- zijn de resterende 720 verbindingen nog onderweg naar de pompputten of worden ze netjes afgebroken in de bodem?
- zitten er in de bodem nog veel meer verbindingen die langzaam op de pompputten afkomen, verbindingen die vóór 1983 (vóór bovengenoemde inventarisatie 1983-1993) in de grote rivieren geloosd zijn?

Redenen genoeg om, in het kader van het gezamenlijk onderzoeksprogramma van de waterleidingbedrijven, de effecten van bodempassage op de kwaliteit van geïnfiltriseerd oppervlaktewater te gaan meten langs stroombanen met waarnemingsputten met korte filters op verschillende afstand van de infiltrerende waterloop. In de jaren '80 is al aandacht besteed aan de effecten van bodempassage, tijdens het door Kiwa uitgevoerde onderzoek naar de 'Hygiënische aspecten van duininfiltratie' [Stuyfzand (red), 1984; Stuyfzand, 1986] en 'Drinkwater uit oevergrondwater' [Van der Kooij (red), 1985]. Verbeterde analysetechnieken en een sterk verbeterde kwaliteit van het oppervlaktewater sedertdien, garandeerden dat er geen sprake kon zijn van een nutteloze herhaling. Voorliggend artikel is een samenvatting van onderdelen van Kiwa Mededeling 125 [Stuyfzand & Lüers, 1996].

Samenvatting

Bodempassage leidt tot verwijdering van vele in oppervlaktewater aangetoonde stoffen. Maar de mate en duurzaamheid van die verwijdering hangen wel af van, vooral:

- de huidige en voorafgaande vuillast van het oppervlaktewater;
 - de duur en lengte van bodempassage;
 - specifieke stoffeigenschappen, zoals de neiging tot sorptie en afbreekbaarheid;
 - het redox milieu (= bodemomgeving met kenmerkende graad van zuurstofloosheid); en
 - de voorraad aan oxideerbare stof in de bodem (o.a. organische stof en pyriet).
- De effecten van bodempassage zijn nader onderzocht met 5 meettraaien: 2 met oeverinfiltratie en 3 met kunstmatige infiltratie van oppervlaktewater. Er zijn ruim 300 stoffen beschouwd, waaronder macroparameters, zware metalen, radionucliden en organische microverontreinigingen.

Het redox milieu is in dit onderzoek de chemische 'sleutel-variabele' gebleken. Voor vele microverontreinigingen blijkt een specifieke 'redox barrière' te gelden; dit is het redox milieu waarin die microverontreiniging afbreekt of omzet of neerslaat. Zo vormt het anoxische milieu (zonder zuurstof, zonder nitraat, altijd met ijzer(II) in oplossing) een goede barrière in watervoerende pakketten tegen o.a. AMPA, atrazin, simazin en diuron. Het controleren op voorkomen van deze stoffen in grondwater wordt daardoor in veel situaties pas zinvol wanneer nitraat ten tonele verschijnt!

Vele organische microverontreinigingen in Rijnsoever- en duininfiltraat zijn de afgelopen 10-20 jaar sterk in concentratie gedaald, dankzij kwaliteitsverbetering van de Rijn sinds 1975; duininfiltraat mede dankzij een verbeterde voorzuivering en verminderde transportchlooring. Enkele winningen van Rijnsoevergrondwater kunnen echter geconfronteerd worden, binnen enkele decennia, met hogere concentraties aan stoffen die in zuurstofrijker milieu voorkomen (o.a. de 4 eerder genoemde bestrijdingsmiddelen) en met dalende concentraties voor stoffen die alleen in (diep) anoxisch milieu persisteren (zoals mecoprop en chlooralkylethers) of daar van nature mobiliseren (o.a. ammonium, ijzer, methaan en arseen). Dit betreft winningen waar de rivier door de Holocene afdeklaag heen ingesneden is en waar regelmatige vloedgolven het rivierbed schoon houden.

Het rendement van bodempassage is, althans voor microverontreinigingen, te verhogen door: (1) verlenging van de afstand ondergronds; en (2) passage van eerst een aërobe en vervolgens een anaërobe zone, zodat al het water meerdere redox barrières moet passeren. Dit lukt met diepinfiltratie meestal beter dan met open infiltratie.

Verdere adviezen aan waterleidingbedrijven zijn: let op uw redox; combineer de heilzame werking van bodempassage met directe zuivering van oppervlaktewater; verkort de bodempassage niet tot <60 dagen, wanneer er microverontreinigingen verwijderd moeten worden en afvlakking van belang is; en benut de selectieve inname ook aan de positieve kant. Voor politici is de boodschap: ga door met het opleggen van saneringsmaatregelen voor Rijn en Maas, omdat (a) het duidelijk tot kwaliteitsverbetering heeft geleid ook voor oever- en duininfiltraat, en (b) er helaas nog veel organische microverontreinigingen in oever- en duininfiltraat zitten.

2. Het onderzoek

De effecten van bodempassage zijn onderzocht bij 2 meettraaien met oeverinfiltratie en 3 meettraaien met kunstmatige infiltratie van oppervlaktewater. Een doorsnee oever- en duininfiltratiesysteem zijn in afbeelding 1 weergegeven. Diepinfiltratie is niet onderzocht. De aanpak van het onderzoek is geschetst in 'Intermezzo 1'. De 6 onderzoeksvragen waren:

1. Welke microverontreinigingen worden dankzij bodempassage bij oever- en duininfiltratie verwijderd, en welke niet?
2. Is deze eliminatie permanent?
3. Hoe valt het rendement van bodempassage te optimaliseren?

4. Welke kwaliteitsverschillen zijn er tussen oever- en duininfiltraat?

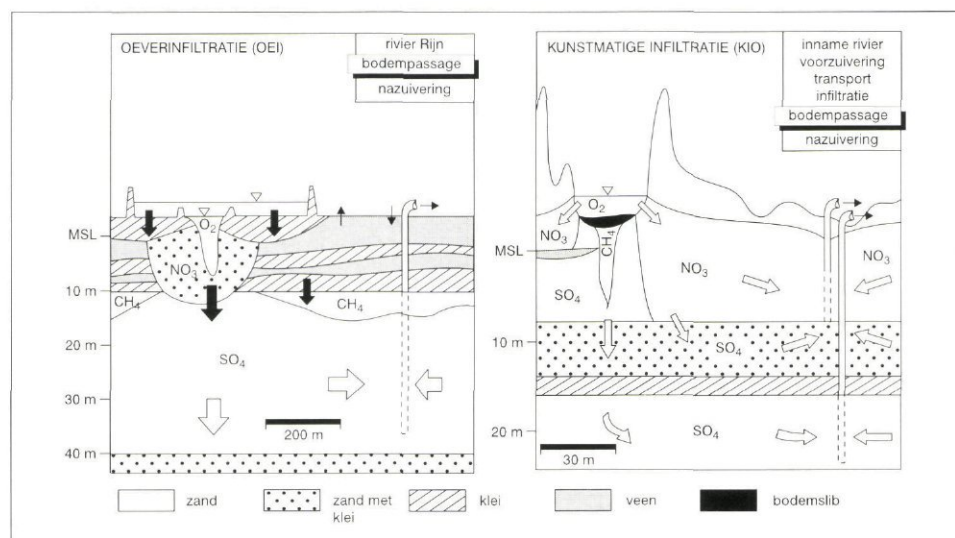
5. Welke stoffen komen er in meerdere of mindere mate op de zuivering (na bodempassage) af?

6. Op welke punten is de gangbare waterkwaliteitsbewaking verbeterbaar?

3. Stoffen die wel en niet verwijderd worden

Bodempassage leidt tot een zeer gunstige en vergaande verwijdering van vele in oppervlaktewater aangetoonde stoffen. Maar de mate en duurzaamheid van die verwijdering hangen wel af van:

- de huidige en voorafgaande vuillast van



Afb. 1. - Het onderdeel bodempassage bij een doorsnee oever- en duininfiltratiesysteem, met geschematiseerde dwarsdoorsnede, hydrogeologische opbouw, grondwaterstromingspatroon en ruimtelijke verdeling van navolgende redox milieus, in volgorde van afnemende aerobie (toenemende zuurstofloosheid):

O₂ = oxisch (vrijwel evenwicht met atmosfeer); NO₃ = suboxisch (zuurstof verlaagd met 10-100%, nitraat >1 mg NO₃ /l, sulfaat stabiel); SO₄ = anoxisch (geen zuurstof, geen nitraat, sulfaat stabiel, Fe²⁺ aanwezig); CH₄ = diep anoxisch (methaan aanwezig [CH₄ >0,5 mg/l], geen zuurstof, geen nitraat, sulfaat verlaagd met 10-100%).

N.B.: het redox milieu is de chemische 'sleutelvariabele' van pH-neutrale infiltratiesystemen.

in één van de 12 stofgroepen vermeld in tabel I. Voor een nadere toelichting op het gedrag van al deze stoffen verwijzen wij naar Kiwa-Mededeling 125.

het oppervlaktewater;

- de duur en lengte van bodempassage;
- specifieke stoffeigenschappen, zoals de neiging tot sorptie, precipitatie en afbraak;
- het redox milieu (= bodemomgeving met kenmerkende graad van zuurstofloosheid);

- de voorraad aan oxideerbare stof in de doelaquifer (o.a. organische stof en pyriet);
- en
- het bodemslibbeheer.

Een groot aantal stoffen kon op basis van de mate en duurzaamheid van verwijdering tijdens bodempassage ingedeeld worden

Redox milieus en redox barrières

Het redox milieu (voor indelingscriteria zie afb. 1 en [Stuyfzand, 1993]) is in dit onderzoek de chemische 'sleutel-variabele' gebleken. Het vormt derhalve een essentieel indelingscriterium voor tabel I. Voor vele microverontreinigingen blijkt nl. een specifieke 'redox barrière' te gelden; dit is

TABEL I - Indeling van stoffen (die in oppervlaktewater vóór infiltratie zijn aangetoond) in 12 stofgroepen op basis van gedrag tijdens bodempassage als functie van het redox milieu.

Stof-gedragstype (1-4)	1 Sterke en langdurige verwijdering (>70%) (T _{1/2} <30 d, en/of R ≥100)*	2 Matige of tijdelijke verwijdering (20-70%) (T _{1/2} =30-120 d en/of R=10-100)*	3 Vrijwel geen verwijdering (<20%) (T _{1/2} >120 d en/of R<10)*	4 Toename
Redox-milieu (A-D)				
A. (sub)oxisch**	Groep 1A: NH ₄ BTEx, THM (excl. chloroform), DOP-sorbofuranose, NTA? MCA, lactonen, PCF?, palmitinezuur, MCP, MCPA	Groep 2A: O ₂ , PO ₄ , As, Cd, Co, Cu, Ni, Sb, Se, Te, V, Zn chloroform, simazin, dinoseb tri(iso)butylfosfaat, tetraglyme?, TCB, EDTA?	Groep 3A: O ₂ , NO ₃ 1,2-dichloorethaan, tri, tetra, per, trichloorethaan AMPA, atrazin, diuron, metolachloor t-butylfenol, trifenyfosfineoxyde, 2,4-DCA, N-methylbenzamide?, tetrachloororthofoaalzuur	Groep 4A: SO ₄ [@] , As [@]
B. anoxisch**	Groep 1B: O ₂ , NO ₃ , chloraat TCFZ, palmitinezuur, PCF?, THM, tetra, trichloorethaan, AMPA, atrazin, simazin, diuron, dinoseb	Groep 2B: As, Cd, Co, Cu, Ni, Sb, Se, Te, V, Zn tetraglyme?, per, TCB	Groep 3B: SO ₄ , 1,2-dichloorethaan, 1,2-dichlooretheen, tri, MCPA, MCP, EDTA?, t-butylcresol, tri(iso)butylfosfaat, trifenyfosfineoxyde, lactonen, DOP-sorbofuranose, diacetonglucose	Groep 4B: Fe, Mn, NH ₄ , PO ₄ As
C. diep anoxisch**	Groep 1C: O ₂ , NO ₃ , SO ₄ , chloraat Cd, Co, Cu, Ni, Sb, Se, Te, Zn THM, dinoseb, t-butylcresol, AMPA, atrazin, simazin, diuron, trifenyfosfineoxyde, tetra, TCFZ, trichloorethaan, per tri(chloorpropyl)fosfaat	Groep 2C: SO ₄ difenylsulfon 1,2-dichloorethaan 1,2-dichlooretheen	Groep 3C: palmitinezuur, DOP-sorbofuranose diacetonglucose, EDTA?, MCPA, MCP, benzeen, xyleen, tri(iso)butylfosfaat, dimethylaniline, lactonen	Groep 4C: H ₂ S, CH ₄ , Fe, Mn, NH ₄ , PO ₄ DOC, I
D. (sub)oxisch t/m diep anoxisch (A-C)	Groep 1D: zwev. stof, lanthaniden, actiniden, Al, Be, Cr, Cs, Hg, Pb, chloriet meeste PAK, PCB en OCP, bromoform, DCA, nitrobenzeen, nitrotolueen, chloornitrobenzeen, pathogenen	Groep 2D: K, B, Ba, F, Li, ⁹⁰ Sr diglyme	Groep 3D: Cl, HCO ₃ , Na, K, Ca, Mg Br, F, ³ H, ² H, ¹⁸ O, diglyme, bentazon, DEET?, CAE, N-butylbenzeensulfonamide trichloorethylfosfaat, joodcyclo- hexaan, 1,3,3-trimethylloxindool	Groep 4D: Ca, HCO ₃ , SiO ₂

BTEx = benzeen, toluen, ethylbenzeen en xyleen; CAE = chlooralkylethers; DCA = dichlooraniline; DCB = dichloorbenzeen; DOP-sorbofuranose = di-ortho-propylideen-1-sorbofuranose; MCA = (mono)chlooraniline; OCP = organochloorpesticiden; PCF = pentachloorfenol; TCB = trichloorbenzeen; TCFZ = tetrachloor-orthofoaalzuur; THM = trihalomethanen.

@ = alleen indien er pyriet oxideert; *: T_{1/2} = halveringstijd; R = retardatiefactor; **: Criteria voor redox milieus: (Sub)oxisch: indien O₂ ≥1 of NO₃ ≥1 mg/l; Anoxisch: indien O₂ <0,5 en NO₃ <0,5 mg/l, SO₄ ≥0,9 (SO₄)₀ en CH₄ <0,5 mg/l; Diep anoxisch: indien O₂ <0,5 en NO₃ <0,5 mg/l, SO₄ <0,9 (SO₄)₀ of CH₄ >0,5 mg/l. (SO₄)₀ = oorspronkelijke sulfaat-concentratie (te berekenen via lineaire regressie met Cl⁻).

Intermezzo 1: aanpak van het onderzoek

Geïnfiltreerd oppervlaktewater is op 5 locaties bemonsterd en geanalyseerd op macroparameters en microverontreinigingen, in totaal circa 300 stoffen. Elke locatie bestaat uit een raai waarnemingsputten langs een stroombaan, die begint bij de waterloop en eindigt in een pompput. Op elke locatie zijn 4-5 waarnemingsputten 2 maal onderzocht in de periode november 1994-juni 1995. Gekozen is voor locaties met verschillen in geohydrochemisch milieu om hieruit processen af te leiden.

De 5 locaties zijn, met tussen haakjes het waterleidingbedrijf dat de meetraai ter plaatse beheert en deelnam in het onderzoek:

- OEI-1, te Opperduit langs de Lek (WZHO);
- OEI-2, te Zwolle bij de oevergrondwaterwinning 'Engelse Werk' (WMO);
- KIO-1, te Wijk aan Zee bij de duinwaterwinplaats 'Kieftenvlak' (PWN);
- KIO-2, te Katwijk aan Zee bij de duinwaterwinplaats 'Berkheide' (DZH); en
- KIO-3, te Scheveningen bij de duinwaterwinplaats 'Scheveningen' (DZH).

Met de analyseresultaten en met kennis van de samenstelling van het infiltrerende oppervlaktewater, zijn aldus de waterkwaliteitsveranderingen tijdens bodempassage langs 5 stroombanen vastgelegd. Beantwoording van de onderzoeksvragen vergde een vertaalslag van 'gemeten kwaliteitsverandering' naar 'stofgedrag', d.w.z. van 'waarneming' naar 'interpretatie'.

Dit leidde tot o.a.:

- a. reconstructie van de verontreinigingshistorie van het infiltratiewater;
- b. indeling van de diverse ingangssignalen en concentratieverlopen in de bodem, in resp. impuls- en responstypen, voor de beeldvorming;
- c. vergelijking met eerdere metingen langs de meetraaien en beschouwing van concentraties c.q. concentratieverlopen in pompputten of puttenvelden;
- d. literatuuronderzoek naar fysische en chemische eigenschappen van de onderzochte stoffen (incl. afleiding van halveringstijden uit veld- en kolomstudies);
- e. uitbreiding en toepassing van het Kiwa-transportmodel INFOMI voor microverontreinigingen [Dijkhuis & Stuyfzand, 1997].

Aanpak en essentie van het hele onderzoek mogen volgen uit het op onderzoeksresultaten gebaseerde beeld in afbeelding 2. In het gereconstrueerde ingangssignaal van de Rijn zien we hierin 'oude' pieken voor arseen en de zwaardere PAK, een 'volwassen' piek voor bentazon en een 'jeugdige' piek voor atrazine. In de bodem is bentazon zonder vertraging en afbraak het verst voortgeschreden en wordt alleen nog in de verst afgelegen meetputten bij meetlocatie OEI-1 aangetroffen. Arseen dat niet afbreekt maar sterk adsorbeert en ook door natuurlijke bodems kan worden afgegeven, is uitgesmeerd over een groot deel van de bodem en wordt in vrijwel elke meetraai gevonden. Atrazine ondervindt geen vertraging, maar breekt in (diep) anoxisch milieu (zuurstof- en nitraatloos) snel en in (sub)oxisch milieu (zuurstof of nitraathoudend) langzaam af. In meetputten met grote ondergrondse reistijd (>500 d) of in anoxisch milieu dringt atrazine niet door. Diverse zwaardere PAK zijn weliswaar zeer persistent (geen afbraak) maar adsorberen bijzonder sterk. Zij worden daardoor (nog) niet in meetputten gedetecteerd, ook niet dicht bij de oever.

het redox milieu waarin die microverontreiniging afbreekt, omzet of neerslaat.

De belangrijkste redox barrières zijn, voor stoffen waarvan de aanwezigheid in Rijn, IJsselmeer of Maas is aangetoond, en vastlegging c.q. afbraak zeer waarschijnlijk is:

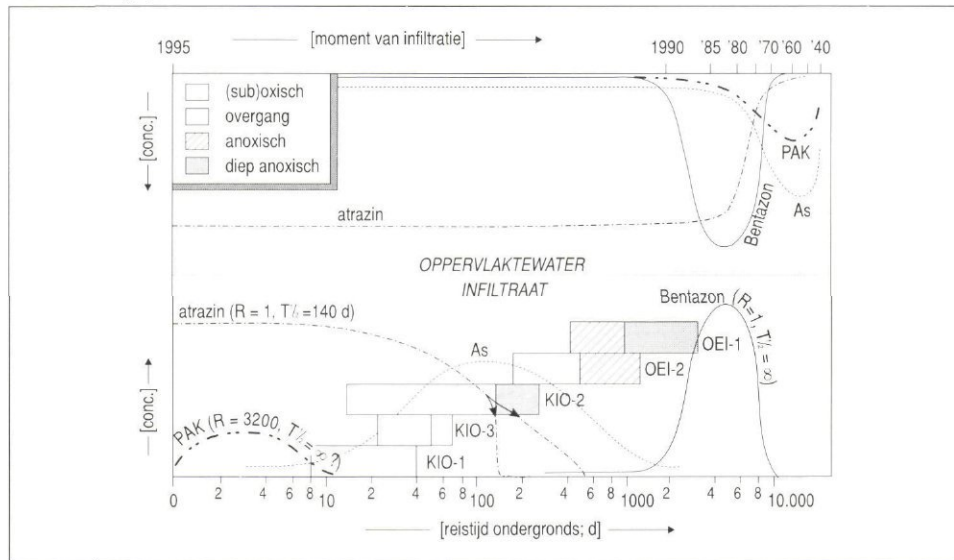
De (sub)oxische barrière:

Dit is de aërobe zone waarin zuurstof en/of nitraat voorkomen en ijzeroxyhydroxiden stabiel zijn of neerslaan. Deze barrière houdt tegen de stoffen uit groep 1A (grotendeels en langdurig) en 2A (gedeeltelijk en tijdelijk). Van diverse stoffen was dit onbekend, zoals van di-o-propylideen-1-sorbofuranose.

De anoxische barrière:

Dit is de anaërobe zone waarin zuurstof, nitraat en methaan afwezig zijn, en vooral ongestabiliseerde organische stof, ijzer-sulfiden en geadsorbeerd ijzer, mangaan en ammonium actief zijn. Deze barrière houdt tegen de stoffen uit groep 1B (grotendeels en langdurig) en 2B (gedeeltelijk en tijdelijk). Van diverse stoffen was dit onbekend, zoals van AMPA, atrazine, simazine en diuron.

Afb. 2 - Essentie van het onderzoek: infiltrerend oppervlaktewater met bepaalde verontreinigingshistorie (bovenste deel van afb.) creëert in de bodem langs een stroombaan (onderste deel van afb.) kwaliteitspatronen die verband houden met o.a. die historie, het fysisch-chemische gedrag van de verontreiniging en het redox milieu (de aërobiegraad). Het tracé waarlangs op de 3 KIO- en 2 OEI-meetlocaties infiltraat uit peilbuizen geanalyseerd is, is met 'balken' langs de tijdsas aangegeven. R = retardatiefactor (= vertraging van stof t.o.v. water); $T_{1/2}$ = halveringstijd.



De diep anoxische barrière:

Dit is de diep anaërobe zone waarin zuurstof en nitraat afwezig zijn en sulfaat tenminste gedeeltelijk gereduceerd is, en dezelfde componenten actief zijn als in de anoxische zone, echter plus H_2S , H_2 en CH_4 . Deze barrière houdt tegen de stoffen uit groep 1C (grotendeels en langdurig) en 2C (gedeeltelijk en tijdelijk). Van diverse stoffen was dit onbekend, zoals van bovengenoemde 4 bestrijdingsmiddelen en tri(chloorpropyl)fosfaat.

4. Wel of geen permanente verwijdering

De eliminatie van stoffen is in principe alleen permanent en significant voor zwevende stof (en de vele daaraan gebonden stoffen), pathogene micro-organismen, stoffen die tijdens bodempassage worden omgezet of afgebroken (vooral radioactieve stoffen en organische microverontreinigingen), en stoffen die neerslaan (vooral enkele zware metalen). Het betreft de stoffen behorende tot stofgroepen 1A-1D (tabel I).

Zwevend stof: permanente filtratie van vele microverontreinigingen

Stoffen die met zwevende stof worden afgevangen door filtratie, zijn blijvend geëlimineerd als het resulterende bodemslib door de rivier (tijdens hoogwaterafvoer) of mens (infiltratiepanden) wordt afgevoerd naar elders. Anders bestaat het risico dat zij hieruit vroeg of laat gemobiliseerd worden, bijvoorbeeld na een kwaliteitsverbetering van oppervlaktewater of tijdens lagere waterstanden (oxidatie). Zware metalen, fosfaat en arseen zijn hiervan een voorbeeld.

Berekend is dat filtratie van aan zwevende stof gebonden organische microverontreinigingen, in Rijn- en voorgezuiverd oppervlaktewater in Nederland, in theorie

niet meer kan zijn dan circa 50%. Dit betreft óók stoffen met een octanol/water-verdelingscoëfficiënt (K_{OW}) $>10^6$ (zoals vele PCB en PAK). Aanname hierbij is dat de binding voornamelijk geschiedt aan organische stof en dat deze even sterk is voor de opgeloste als gesuspendeerde fractie organische stof. De geringe mobiliteit in de bodem van dergelijke stoffen komt daarom voor $>50\%$ op rekening van sorptie aan die bodem.

Over de stabiliteit van redox barrières

Anoxische en diep anoxische redox barrières in watervoerende pakketten kunnen, zelfs bij kunstmatige aanvulling, decennia tot eeuwen lang aanwezig en actief blijven, maar raken op den duur wel uitgeloozd aan reducerende bestanddelen als organische stof en pyriet, tenzij bodemslib of hoge concentraties NH_4 en DOC in het infiltratiewater zelf hen beschermt. Bodemslib vormt een 'periodieke' (diep) anoxische barrière, omdat het meestal op gezette tijden door natuurlijke erosie (bij hoogwaterafvoer in rivier) of de mens wordt verwijderd. Bij uitloging of verwijdering komt voor de (diep) anoxische barrière in de plaats een andere redox barrière, nl. de (sub)oxische. Dit is de aërobe zone met zuurstof of nitraat, waarin weer andere stoffen worden vastgehouden, afgebroken of omgezet (zie tabel I). De (sub)oxische barrière kan door accumulatie van slib of door vervuiling weer overgaan in een (diep) anoxische. Deze cyclus kan zich vele malen herhalen.

(Diep) anoxische redox barrières verliezen lokaal terrein

Deze barrières verliezen in enkele waterwingebieden langzamerhand terrein, doordat de vuillast van voorgezuiverd infiltratie- en rivierwater (vóór bodempassage) afneemt en het oxiderend vermogen van Rijnsoever- en duininfiltraat toeneemt. Dit heeft op termijn (enkele decennia) gevolgen vooral voor Rijnsoeverinfiltraat op die locaties waar de rivierbodem afdekende Holocene klei- en veenlagen volledig doorsneden heeft en vloedgolven het rivierbed schoon houden. Binnen enkele decennia kunnen de concentraties dalen voor vele stoffen uit groepen 3B, 3C en 4C, en die voor stoffen uit groepen 2A en 3A (tabel I) stijgen.

5. Optimalisatie rendement van bodempassage

Het rendement van bodempassage is optimaal als de ondergrondse reistijd lang genoeg is om: (a) pathogene micro-organismen voor 100% te elimineren, (b) gevaarlijke radionucliden als jodium-131 en strontium-90 zo veel mogelijk te laten

Intermezzo 2: kwaliteit van oever- en duin-infiltraat sterk verbeterd, maar ...

Kwaliteit van oever- en duininfiltraat sterk verbeterd!

Uit het onderzoek is ook gebleken dat de kwaliteit van Rijnsoever- en duininfiltraat de afgelopen 2 decennia sterk verbeterd is (afb.5). Dit dankzij saneringen in de stroomgebieden van Rijn en Maas en, in geval van duininfiltratie, mede dankzij een verbeterde voorzuivering, verminderde transportchlooring en eventueel gewijzigde bronkeuze. En die kwaliteit wordt voor oeverinfiltraat de komende 20 jaar wellicht nog beter, althans wat betreft de meeste 'klassieke' verontreinigingen. Dit toont het belang en succes van tal van saneringen.

Voor de macrochemie zien we, in vergelijking met 10-20 jaar geleden, een (lichte) daling van het zoutgehalte (natrium, chloride, sulfaat, calcium), de hoeveelheid ammonium, fosfaat en DOC. Voor zware metalen gelden nog geen duidelijke verbeteringen, ondanks een spectaculaire daling in het oppervlaktewater en voorgezuiverd infiltratiewater (barium en borium niet wezenlijk gedaald). Voor vele tamelijk mobiele organische microverontreinigingen (merendeels met $\log K_{OW}$ c.q. $\log K_{OC} \leq 2,5$) is bij oeverinfiltratie sprake van een duidelijke concentratieafname (met factor 2-100!) over de hele stroombaan de afgelopen 12 jaar (afb. 5). Bij duininfiltratie is de concentratie aan diverse vluchtige gehalogeneerde koolwaterstoffen (ook zeer mobiel) opzienbarend gedaald ten opzichte van 1980 (afb. 5).

Maar nog zorgwekkend veel OMIVE

Niettemin zijn er vooral in Rijnsoeverinfiltraat nog honderden organische microverontreinigingen aanwezig, zij het in zeer lage concentraties (meestal $<0,1 \mu\text{g/l}$). Dankzij voorzuivering en selectieve inname is de situatie bij duininfiltratie veel gunstiger (afb. 3). In Rijnsoever- en duininfiltraat zijn in totaal 43 organische microverontreinigingen aangetroffen in concentraties $\geq 0,02 \mu\text{g/l}$ (op meerdere meetpunten), die nog niet eerder daarin gevonden waren. Hun toxicologische betekenis is niet onderzocht, er gelden geen drinkwaternormen voor. De aanwezigheid van zo vele OMIVE wijst op de noodzaak tot verdere aanpak van vervuilsbronnen.

vervallen, (c) zoveel mogelijk organische microverontreinigingen af te breken, en (d) voldoende afvlakking te realiseren van fluctuaties in kwaliteit en temperatuur. Het rendement van bodempassage is te verhogen door: (1) verlenging van de afstand ondergronds; en (2) passage van eerst een aërobe en vervolgens een anaërobe zone, zodat er meerdere redox barrières gepasseerd moeten worden. Beide opties zijn gunstig voor een verdere resp. bredere verwijdering van organische microverontreinigingen. Optie 1 pakt ook gunstig uit voor realisatie van bovenstaande punten a, b en d. Die gunstige serieschakeling van redox milieus is realiseerbaar via:

- terugwinning uit een ander pakket dan waarin directe aanvulling met oppervlaktewater geschiedt, of eenvoudiger
- diepinfiltratie in een anaëroob zandpakket met voldoende redox-buffervoorraad (pyriet of organische stof) en terugwinning uit hetzelfde pakket op 120-200 m afstand. Dan ontstaat vanzelf de gewenste

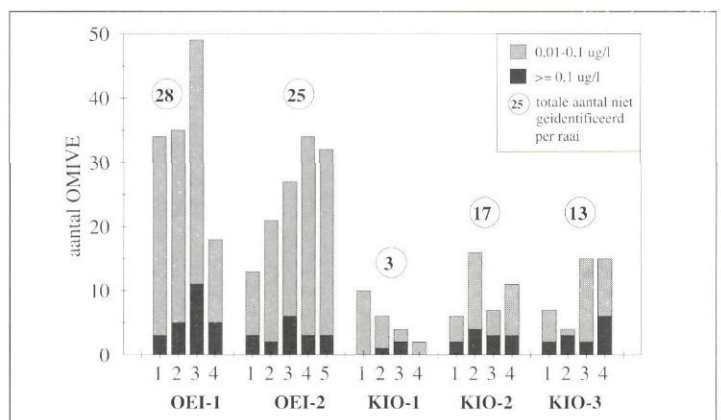
redox zonering die uiterst langzaam opschuift: dicht bij de infiltratieput (sub)oxisch en op grotere afstand anoxisch.

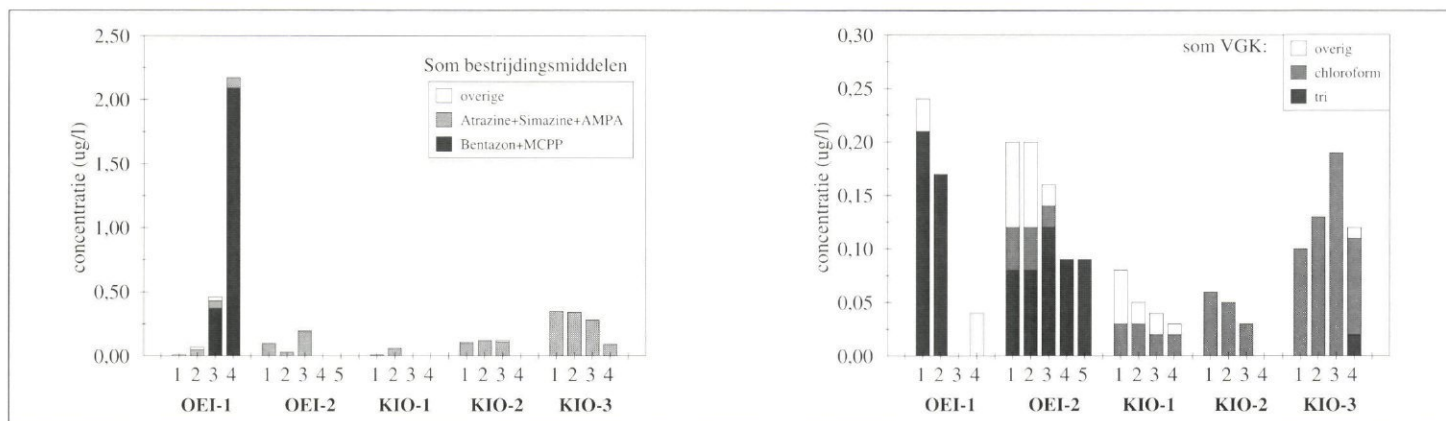
6. Waterkwaliteitsverschillen tussen oever- en duininfiltraat

Rijnsoeverinfiltraat vertoont gemiddeld circa 4 maal hogere aantallen organische microverontreinigingen en een 2-3 maal hogere totaal-concentratie ervan, dan duininfiltraat (afb. 3). Het heeft verder hogere concentraties aan stoffen uit groep 3B, 3C en 4C, doch lagere concentraties aan stoffen uit groep 3A (tabel I). Deze verschillen hangen vooral samen met, voor oeverinfiltraatssystemen:

- een gemiddeld lagere redox potentiaal (anoxisch versus (sub)oxisch; afb.1),
- geen voorzuivering noch selectieve inname, en
- meer opslag in de bodem van stoffen uit een vervuild verleden (bodemcompartiment is groter, biedt per m³ grond meer sorptieplaatsen en wordt minder snel schoongespoeld).

Afb. 3 - Rijnsoeverinfiltraat bevat meer organische microverontreinigingen dan duininfiltraat. Weergegeven is het aantal organische microverontreinigingen aangetoond met GC/MS-schermingsonderzoek in pH7-XAD-isolaten in november 1994 en juni 1995, met onderscheid tussen 2 concentratie-niveaus. 1-5 = meetputten in volgorde van toenemende afstand tot de oever. OEI = OeverInfiltraat; KIO = Kunstmatige Infiltratie van Oppervlaktewater.





Afb. 4. - Enkele, typische kwaliteitsverschillen tussen Rijnsoever- en duininfiltraat vervagen omdat:
 1. bestrijdingsmiddelen als bentazon en MCPP (mecoprop) nu ook bij oeverfiltratiesystemen uitspoelen (alleen nog meetbaar op verste meetpunten OEI-1);
 2. atrazin en chloroform ook doordringen in de aërober wordende rivierbodem (hoofdzakelijk beperkt tot eerste meetputten bij OEI-2); en
 3. de chloroforminput van duininfiltratiesystemen sterk gedaald is dankzij het stopzetten c.q. verminderen van de transportchloring (concentraties waren vroeger bij KIO-1 en -3 veel hoger).
 VGK = vluchtige gehalogeneerde koolwaterstoffen;
 1-5 = meetputten op toenemende afstand tot oever rivier/plas.

Daarnaast draagt de transportchloring van voorgezuiverd Maaswater bij aan de duidelijk verhoogde chloroform-concentraties bij 2 meetraaien met duininfiltratie (en deed dit in het verleden ook op andere locaties met duininfiltratie). Verder zien we verschillen voor dezelfde 2 meetraaien omdat hierin specifieke Maasverontreinigingen zitten (o.a. diuron en hexadecanol-1). Enkele verschillen beginnen echter te vervagen (afb. 4).

Bij de keuze tussen oeverinfiltratie of kunstmatige aanvulling spelen vele andere overwegingen een belangrijke rol.

7. Stoffen die meer of minder op de (na)zuivering afkomen

Prognoses macroparameters en zware metalen voor komende decennia

Het kalkoplossend vermogen van het infiltratiewater is afgenomen en zal nog iets afnemen door sterk afgenomen ammoniumconcentraties in het infiltratiewater (minder nitrificatie), en in geval van duininfiltratie, pH-correctie na coagulatie in de voorzuivering. Daarnaast zal er in de bodem minder koolzuur geproduceerd gaan worden omdat het aantal methaanvormende milieus in de bodem afneemt door uitloging van organische stof mede dankzij onderstaande toename van de aërobie. Dit leidt voor teruggewonnen water tot een (meestal geringe) concentratiedaling van vooral calcium en bicarbonaat (bij duininfiltratie al voltooid, bij oeverinfiltratie nog niet).

Oeverfilteraatsystemen, op geringe afstand

van de oever met diepe insnijding van het rivierbed in het watervoerend pakket, staat een langzame toename in de aërobiegraad van het bodemsysteem (doorbraak nitraat) te wachten, omdat Rijn en Maas schoner zijn geworden en wellicht nog schoner worden. Dit heeft navolgende consequenties voor de kwaliteit na bodempassage:

- a. een duidelijke concentratietoename voor stoffen van groep 2A en 3A: vooral nitraat en in geringe mate Cd, Cu, Ni, Sb, Se, V en Zn;
- b. een concentratieafname voor stoffen van groep 4C; en
- c. op termijn kans op de aërobe vorm van putverstopping. Daar valt weinig aan te doen, alleen bij nieuwe putten kan overwogen worden deze op grotere afstand van de oever of in een dieper zandpakket te plaatsen.

Prognoses organische microverontreinigingen voor komende decennia

We zien in het vooruitzicht een verdere afname van vele 'bekende' organische microverontreinigingen analoog aan het concentratieverloop in de Rijn. Het betreft o.a. dikegulac, bentazon, chloorfenoxycarbonzuren (waaronder mecoprop), vluchtige organohalogenen, anilines, chloorbenzenen en chlooralkylethers. Bij oeverfiltratie duurt de uitspoeling langer dan bij duininfiltratie. Een langzame toename in de aërobiegraad van het bodemsysteem (zie prognose macroparameters) draagt bij, dankzij vorming van de (sub)oxische redox barrière, aan een verdere concentratiedaling van stoffen uit groep 1A. Die toename in de aërobiegraad is daarentegen ongunstig, door het verdwijnen van de anoxische en diep anoxische redox barrière, voor de ontwikkeling van stoffen uit groep 1B, 1C, 2B en 2C, zoals diuron, atrazin, simazin, AMPA en tri(chloorpropyl)fosfaat. Dit betreft vooral Rijnsoeverinfiltraat, waar de rivier helemaal door de afdeklaag heen ingesneden is. Bij duininfiltratiesystemen verandert er voor deze stoffen weinig,

omdat de aërobiegraad doorgaans al hoog is. Tenslotte valt te verwachten dat de meer polaire (hydrofiele) organische microverontreinigingen door analytisch-chemische ontwikkelingen geleidelijk beter in beeld zullen verschijnen. Voorbeelden zijn synthetische organische complexvormers (als EDTA en DTPA), aromatische sulfonaten, fosfonaten, diverse pharmaca, synthetische muskusgeurstoffen en enkele xeno-oestrogenen (hormonaal werkzame organische microverontreinigingen). In dit onderzoek is hieraan geen aandacht besteed. Deze en aanverwante stoffen verdienen nader onderzoek, omdat ze lastig te zuiveren zijn en mogelijk schadelijk voor de gezondheid zijn. Drinkwaternormen ontbreken evenwel.

8. Optimalisatie van de water-kwaliteitsbewaking

Een representatieve meetraai van waarnemingsputten tussen infiltrerende waterloop en winning is een belangrijk onderdeel van een meetsysteem waterkwaliteit. Het vormt de vooralarmering voor zowel die winning als de nationale milieubewaking.

Voor een doorsnee duininfiltratie met een totale reistijd ondergronds van circa 70 dagen moet de meetfrequentie ongeveer één- tot tweemaandelijks zijn, voor een oeverfilteraatswinning met een totale reistijd ondergronds van circa 500 dagen (half)jaarlijks.

In aanvulling op stofgerichte analyses is gewenst: een jaarlijks tot zesmaandelijks GC/MS-screenend onderzoek van een meetraai. Daar hoort ook periodiek GC/MS-screenend onderzoek van de Rijn bij, in geval van oeverinfiltratie, volgens dezelfde methode uitgevoerd, ter vergelijking met de Rijnsoeverinfiltraten. Na een toxicologische evaluatie van nieuw aangetoonde verbindingen, volgt dan een kwantitatieve analyse van de toxicologisch meest relevante organische microverontreinigingen, via specifieke stofgerichte analysemethoden waarvan de kwantitatieve

kenmerken (recovery, herhaalbaarheid, matrixeffecten e.d.) bekend zijn.

Frequente meting van diverse microverontreinigingen in infiltraat is voor kwaliteitsbewaking niet nodig (wel voor procesonderzoek). De veel-gemeten stoffen uit groep 1D (tabel I) kunnen qua frequentie op laag niveau gezet worden, tenzij er andere verontreinigingsbronnen zijn dan de voedende waterloop.

De waterkwaliteitsbewaking moet zich richten op stoffen die in het specifieke redox milieu mobiel zijn, en niet/minder op stoffen die langdurig door een redox barrière worden tegengehouden (tabel I). De werking van de redox barrière moet uiteraard wel gecontroleerd worden aan de hand van de belangrijkste redoxparameters (O_2 , NO_3 , SO_4 , Fe, Mn, CH_4). Bij calamiteiten met radionucliden moet de monitoring bij bodempassage zich in de eerste plaats richten op rest- β en navolgende radio-isotopen: ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{106}Ru en mogelijk I^{131} . Het relatief mobiele en moeilijk te zuiveren radionuclide strontium-90 vergt een gedegen vooralarmering, stringent innamebeleid en lange bodempassage. Ter inschatting van het effect van filtratie van zwevende stof op de concentratie van organische microverontreinigingen, moeten DOC en TOC in oppervlaktewater gemeten worden.

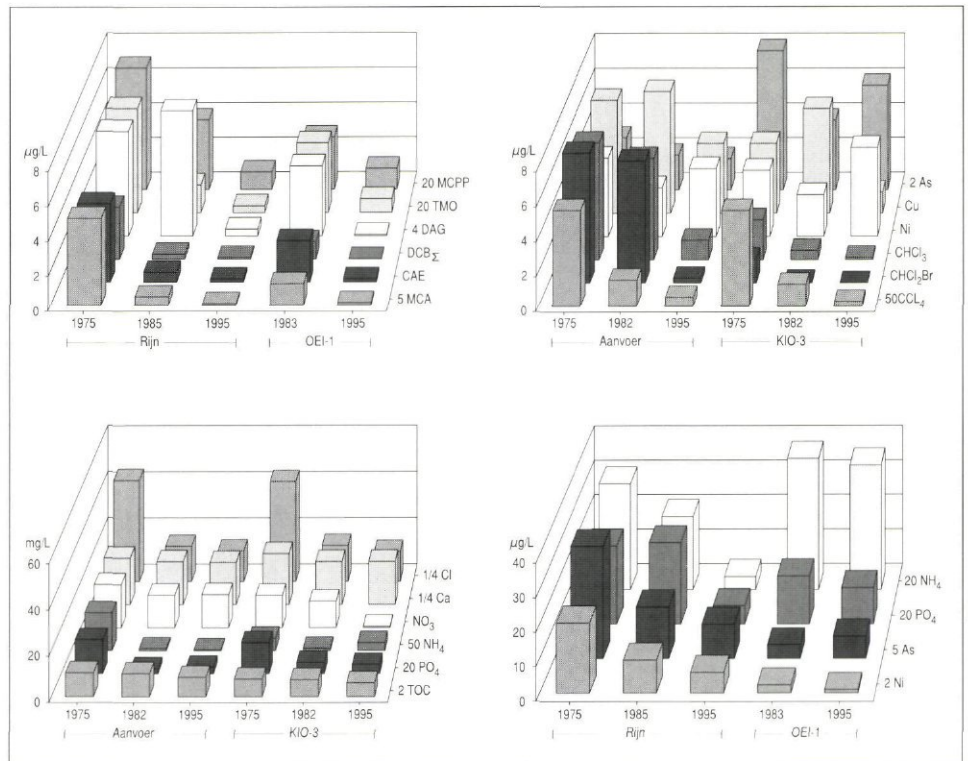
9. Adviezen aan waterleidingbedrijven Let op uw redox!

Het redox milieu bepaalt bij oever- en duininfiltratie in grote lijnen welke stoffen tijdens bodempassage verdwijnen of oplossen. Deze kennis kan uitgebaat worden door: (a) bij nieuwe bodempassage-systemen doelgericht voor een specifieke locatie (ook watervoerende laag) te kiezen om de gewenste kwaliteitsverbetering te realiseren; en (b) de waterkwaliteitsbewaking te richten op stoffen die in het specifieke redox milieu mobiel zijn en minder aandacht te besteden aan stoffen die langdurig door een redox barrière worden tegengehouden (tabel I).

Combinaties van bodempassage en (directe) zuivering

Zowel bodempassagesystemen als directe zuivering van oppervlaktewater kennen voor- en nadelen. Oever- en duininfiltratie kunnen niet zonder aanvullende zuivering. Daarnaast kan (directe) zuivering ook baat hebben bij bodempassage, vooral dankzij de volgende eigenschappen van bodempassage:

- volledige verwijdering van zwevende stof (bij oeverinfiltratie zonder voorzuivering en met gratis slibruiming door de rivier);
- volledige eliminatie van pathogenen, wat chloring overbodig maakt;



Afb. 5. - Concentraties van diverse macroparameters en vele organische microverontreinigingen in Rijn- en duininfiltraat (resp. meetlocaties OEI-1 en KIO-3) zijn anno 1995 een stuk lager dan 10-20 jaar geleden, dankzij tal van saneringsmaatregelen. Weergegeven zijn enkele macroparameters, sporenelementen en o.a. navolgende organische microverontreinigingen: mecoprop (MCPP), ortho-chlooraniline (MCA), 1,3,3-trimethyloxydool (TMO), som van chlooralkylethers (CAE), som van dichloorbenzeen-isomeren (DCB) en diacetonglucose (DAG).

- sterke afvlakking van temperatuurs- en kwaliteitsfluctuaties; en
- ondergrondse voorraadvorming, zodat calamiteiten in oppervlaktewater overbrugd kunnen worden, pieken in waterbehoefte gemakkelijk op te vangen zijn en de voorraad beschermd is tegen bijvoorbeeld radioactieve fall-out en algenbloei. Aanbevolen wordt om de volgende combinaties op haalbaarheid te toetsen:
 - diepinfiltratie van de overcapaciteit van een directe zuivering en terugwinning tijdens piekverbruik;
 - bijpolijsten van hyperfiltraat door menging met een deel infiltraat;
 - membraanfiltratie van oeverfiltraat; en
 - menging van ijzerrijk, anaëroob infiltraat of grondwater met zuurstofhoudend oppervlaktewater vóór de eerste zuiveringstrap, zodat zich een soort gratis vlokmiddel ontwikkelt.

Verkorting van bodempassage riskant?

Bij het overwegen van verkorting van ondergrondse reistijden of afstanden tijdens bodempassage (bijv. bij een stijgende waterbehoefte), moet men zich realiseren dat er 4 belangrijke voordelen

van bodempassage op het spel staan: 100% eliminatie van pathogene micro-organismen, vèrgaande verwijdering van gevaarlijke radionucliden als jodium-131 en strontium-90, vèrgaande verwijdering van vele organische microverontreinigingen, en sterke afvlakking van fluctuaties in kwaliteit en temperatuur. De minimaal noodzakelijke afstand of reistijd moet afhankelijk gesteld worden van de bodemeigenschappen en kwaliteit van het oppervlaktewater. Transportmodellen, waaronder het voor dit onderzoek ontwikkelde INFOMI 3.1 [Dijkhuis & Stuyfzand, 1997] kunnen hierbij goede diensten bewijzen.

Als kwaliteit oppervlaktewater extreem goed, dan meer innemen

Selectieve inname kan bij kunstmatige aanvulling ook aan de positieve kant benut worden: meer inname als de kwaliteit van het oppervlaktewater extreem goed is. Dit vergt in sommige opzichten minder en in andere juist meer van de voorzuivering, maar leidt tot een beter drinkwaterproduct. Het extra bergend vermogen moet meestal in de diepere ondergrond gezocht worden, en vergt dus diepinfiltratie.

10. Stimuli voor de politiek

Het onderzoek levert extra stimuli op voor saneringsmaatregelen ter verbetering van de oppervlaktewaterkwaliteit. Enerzijds toont het duidelijk aan dat de behaalde successen veel vrucht afwerpen ook in

• *Vervolg op pagina 562.*

grondwater. Normen voor landbouw vanuit grondwaterbescherming. CLM-rapport 181, Utrecht.

Corré, W. J. (1995). *Denitrificatie in poldergronden*. AB-DLO rapport 41, Haren.

Heidemij/CLM (1996). *Naar een regionaal mineralenbeleid in West-Nederland*. Basisnotitie.

Hofhuis, Y. en Jans, J. H. (1996). *Afwijken van de nitraatrichtlijn?*, Milieu en Recht, april 1996: 76-79.

IN (1995). *Integrale notitie mest- en ammoniakbeleid*. Ministerie van VROM en LNV.

Meinardi, C. R. and Eertwegh, G. A. P. H. van den (1995). *Onderzoek aan drainwater in de kleigebieden van Nederland. Deel I: resultaten van het veldonderzoek*. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu. RIVM rapport 714901007.

Meinardi, C. R. and Eertwegh, G. A. P. H. van den (1997). *Onderzoek aan drainwater in de kleigebieden van Nederland. Deel II: interpretatie van de gegevens*. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (in druk).

Remmers, J. (1995). *Economische schade als gevolg van verzuring en vermesting door de landbouw*. Stichting Natuur en Milieu, Utrecht.

Ruijgh, E. F. W., Gerrits, H. J., Leeuw, A. M. de en Menke, M. A. (1993). *Analyse van de nutriëntenbelasting van het Veen Meer vanuit de omliggende polders*. Waterloopkundig Laboratorium, Delft.

Verweij, W. en Heij, B. J. (red.) (1994). *Milieu-rapportage 1993; I, Integrale rapportage stikstof*. RIVM-rapport 482533001. Bilthoven.

● ● ●

Microverontreinigingen bij oeverinfiltratie

• Slot van pagina 559.

bodempassagesystemen, en anderzijds laat het zien dat er toch nog behoefte is, ook bij oever- en duininfiltratie, aan verdere verbetering gelet op de vele aangetroffen organische microverontreinigingen (zie Intermezzo 2).

Verantwoording

Voorliggend onderzoek maakt deel uit van het gezamenlijk onderzoeksprogramma van de waterleidingbedrijven in Nederland, dat wordt uitgevoerd door Kiwa NV Onderzoek en Advies. Het project is uitgevoerd met een financiële bijdrage en met medewerking van de volgende waterleidingbedrijven waar het veldonderzoek bovendien plaatsvond: NV WZHO, WMO NV, NV PWN en NV DZH.

Literatuur

Dijkhuis, L. G. en Stuyfzand, P. J. (1997). *INFOMI 3.1: een 1-D transportmodel voor microverontreinigingen in een waterloop en in de bodem na infiltratie*. Kiwa-rapport SWI 96.219, in druk.

Genderen, J. van, Noij, Th. H. M. en Leerdam, J. A. van (1994). *Inventarisatie en toxicologische evaluatie van organische microverontreinigingen*. RIWA-rapport dec. 1994.

Kooij, D. van der (red.) (1985). *Drinkwater uit oevergrondwater*. KIWA Meded. 89.

Stuyfzand, P. J. (red.) (1984). *Microverontreiniging en duininfiltratie*. KIWA Meded. 81, 336 p.

Stuyfzand, P. J. (1986). *Macroparameters bij duininfiltratie; kwaliteitsveranderingen van opperlaktewater bij kunstmatige infiltratie in de Nederlandse kustduinen*. KIWA-Meded. 82, 336 p.

Stuyfzand, P. J. en Lüers, F. (1996). *Gedrag van milieugevaarlijke stoffen bij oeverinfiltratie en kunstmatige infiltratie; effecten van bodempassage gemeten langs stroombanen*. Kiwa-Meded. 125, 272 p.

Van Dijk-Looyard (1993). *Herziening normen Waterleidingbesluit*. Kiwa-rapport SWO 93.340, 244 p.

● ● ●

Realisatie pompstation Eemdijk

NV Waterleidingbedrijf Midden Nederland (WMN) heeft op 18 juni 1990 bij Gedeputeerde Staten van Utrecht een vergunningaanvraag ingediend voor een nieuwe grondwaterwinning te Bunschoten. De onttrekkingshoeveelheid waarvoor vergunning wordt aangevraagd bedraagt ten hoogste 5 miljoen m³ per jaar. Op 11 juni 1992 is de gevraagde vergunning door de provincie Utrecht afgegeven. De vergunningsaanvraag staat in nauw verband met de grondwaterproblematiek in het Gooi. In het grondwaterplan van Noord-Holland van 1986 is aangegeven dat de grondwaterwinningen in dit gebied sterk moeten worden verminderd, meer concreet dat de drinkwaterwinningen 'Westerveld' en 'Grindweg' met een totale vergunningscapaciteit van 5,2 miljoen m³ per jaar voor 1993 moeten worden gesloten. Dit beleid heeft als consequentie dat op korte termijn vervangende winningsmogelijkheden moeten worden gerealiseerd. Na uitvoerig onderzoek is gekozen voor de ontwikkeling van een nieuwe grondwaterwinning in de poldermalen in de gemeente Bunschoten.

Over de bestemming van het water dat te Bunschoten wordt onttrokken is bestuurlijk overleg gepleegd tussen de provincies Noord-Holland en Utrecht. Daarbij is afgesproken dat de volledige capaciteit (5 miljoen m³/jaar) de eerste vijf jaar na de inbedrijfsname van pompstation Eemdijk geheel ten goede kan komen aan de drinkwatervoorziening in het Gooi. Daarna kan het water deels gebruikt gaan worden voor de drinkwatervoorziening in Utrecht (3,75 miljoen m³/jaar) en het Gooi (1,25 miljoen m³/jaar). In de plannen was voor de levering van drinkwater aan het Gooi een transportleiding voorzien tussen het pompstation Eemdijk van WMN en het pompstation Huizen van PWN.

Het oorspronkelijke plan voor het ontwerp van pompstation Eemdijk (maart 1992) is voornamelijk bepaald geweest door de afspraken over de drinkwaterleveringen, de voorwaarden uit de winvergunning en de toen aanwezige kennis en inzichten over de toekomstige waterverdeling.

Realisatie pompstation Eemdijk

Problemen met betrekking tot het verkrijgen van een bouwvergunning voor het pompstation Eemdijk heeft naast een aanzienlijke vertraging geleid tot diverse aanpassingen van het ontwerp. Daarnaast is vijf jaar na dato de situatie veranderd en ontwikkelingen en nieuwe inzichten maken de geldigheid van oorspronkelijke uitgangspunten en afspraken over de drinkwaterlevering discutabel.

De levering van de volledige capaciteit (5 miljoen m³/jaar) gedurende de eerste vijf jaar na de inbedrijfsname van pompstation Eemdijk aan PWN is niet meer noodzakelijk gezien het feit dat de realisatie van antiverdrogingsprojecten door PWN en de realisatie van ps Eemdijk dezelfde tijdslijn hebben. Dit voorjaar zijn de afspraken over de levering naar PWN afgerond. PWN wenst een levering van 1,25 Mm³ per jaar vanuit het WMN pompstation Laren naar pompstation Laarderhoogt over een transportleiding die tevens dienst kan doen als een substantiële en wederzijdse leveringszekerheidsmaatregel. De levering aan PWN en de sterke reductie van de winplaats Laren in het kader van de verdrogingsproblematiek in het Gooi heeft WMN doen besluiten om de volledige capaciteit van pompstation Eemdijk blijvend in te zetten voor de voorzieningsgebieden Hilversum, Baarn, en Soest.

De gewijzigde inzet van het pompstation Eemdijk heeft tevens gevolgen voor het ontwerp. Een van de meest in het oogspringende wijzigingen is de reductie van de reinwaterberging. In de oorspronkelijke opzet was een berging voorzien van 2 maal 2000 m³. Met de huidige inzet van het pompstation Eemdijk bleek een halvering van de reinwaterberging mogelijk. Ondanks het feit dat de bouwvergunning volgens oorspronkelijk ontwerp in mei van dit jaar door de gemeente Bunschoten is afgegeven heeft WMN toch besloten een wijziging van de bouwvergunning aan te vragen. Naast een (beperkte) kostenbesparing in de sfeer van investeringen en exploitatielasten zal de bebouwing ongeveer 5 meter minder ver het achterland insteken, een maatregel die het open karakter van het landschap in de Westpolder zeker ten goede zal komen.

De voorbereidingen voor de realisatie zijn op dit moment in volle gang en de verwachting is dat in het najaar van 1997 met de bouw gestart zal worden. De inbedrijfsname van het pompstation Eemdijk staat gepland voor het voorjaar van 1999. (Persbericht WMN)