Het duurt even, maar de specie wordt echt schoon

Ruimere toepassingsmogelijkheden landfarming van verontreinigde baggerspecie

Bijna 20 jaar geleden is op de locatie Kreekraksluizen een experiment gestart om verontreinigde baggerspecie biologisch te reinigen met behulp van landfarming. De gereinigde baggerspecie ligt hier nog steeds en wordt nog gemonitored en dit heeft een unieke waarnemingsreeks opgeleverd. De resultaten laten zien dat biologische afbraak een doorgaand proces is en dat alle individuele polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK) en ook minerale olie componenten worden afgebroken. In het begin gaat de biologische afbraak snel en later langzamer, maar gestaag. Zelfs de zeer zwaar verontreinigde specie uit de Petroleumhaven kan biologisch worden gereinigd, waarbij herbruikbare grond wordt verkregen. Biologische sanering van PAK- en olie-verontreinigde baggerspecie middels landfarming is daarom veel breder toepasbaar dan we nu doen. Dit vraagt echter wel om aanpassing van regels.

Door Joop Harmsen en Hans Zweers

Over de auteurs:
dr. J. Harmsen is senior onderzoeker Alterra, Wageningen-UR
ing. A.J. Zweers is onderzoeker Alterra, Wageningen-UR
Beide auteurs zijn werkzaam bij het Centrum voor Water en Klimaat

DE LANDFARM KREEKRAKSLUIZEN

Op de landfarm Kreekraksluizen wordt op experimentele schaal baggerspecie, verontreinigd met polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK) en minerale olie, gereinigd. De langdurige monitoring (sinds 1990) heeft gezorgd voor een verbeterd inzicht in de afbraaksnelheid van de verontreinigingen en de risico's die gepaard kunnen gaan met de behandeling van verontreinigde baggerspecie. Resultaten tot 2004 zijn verschenen in diverse publicaties[1,2,3]. In 2008 is er een nieuwe monitoringsronde geweest die gericht was op de zeer langzame afbraak van de verontreinigingen. Nergens anders is over zo'n lange periode waargenomen.

De onderzochte species zijn afkomstig uit de Geulhaven (Rotterdam) en de haven van Zierikzee, beiden gestart in 1990, en uit de Petroleumhaven (Amsterdam) en de haven van Wemeldinge, gestart in 1994. De belangrijkste verontreinigingen, ook bepalend voor uiteindelijke toepassing, waren de biologisch afbreekbare PAK en minerale olie. De baggerspecie op de landfarms is voor een deel gedurende een korte periode intensief gelandfarmd, wat wil zeggen dat de bagger en hieruit ontstane grond is bewerkt door het om te zetten (bewerkte optie). Het grootste deel is extensief gelandfarmd, waarbij er geen activiteiten op de landfarm zijn uitgevoerd en vegetatie is ontstaan (begroeide optie) (zie ook tabel 1). Na de intensieve fase is er ook vegetatie ontstaan bij de bewerkte opties. Momenteel is de meeste vegetatie grasachtig en staan er zelfs al vlierbomen (figuur 1). In de bewerkte opties kon een laag van 1 meter baggerspecie in een jaar worden ontwaterd. In de begroeide optie

FIGUUR 1. OVERZICHTSFOTO LANDFARMS OP KREEKRAKSLUIZEN 2008

BM0509_Landfarming 7 05-10-2009 15:04:05

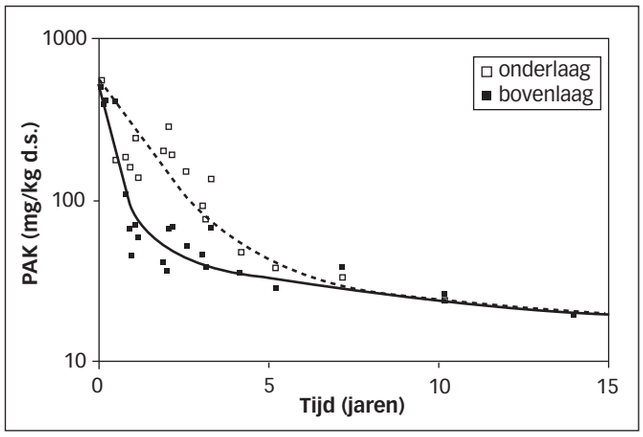
Herkomst baggerspecie en wijze behandeling	Intensief landfarmen (periode)	Extensief landfarmen sinds	Begroeiing aanwezig sinds	PAK (10 van VROM) (mg/kg d.s.)		Minerale olie (mg/kg d.s.)	
				start	2008	start	2008
Petroleumhaven							
bewerkt	'94 – '96	1996	1996	488	17	13.000	1043
begroeid		1994	1995	488	19	13.000	829
Wemeldinge							
bewerkt	'94 – '96	1996	1996	53	19	2000	370
begroeid		1994	1995	53	21	2000	254
Geulhaven	'90 – '93	1993	1993	52	1.8	8100	183
Zierikzee	'90 – '93	1993	1993	65	14	630	190

TABEL 1. ONDERZOCHTE BAGGERSPECIES OP KREEKRAKSLUIZEN

moet de vegetatie al het water verdampen en was er circa 5 jaar nodig om de gehele laag te ontwateren.
De gehalten aan PAK (10 van VROM) en minerale olie gemeten bij de start en in 2008 zijn weergegeven in tabel 1. Alle gemeten gehalten liggen nu ver onder de interventiewaarde (40 voor PAK en 5000 voor minerale olie). De gehalten in Geulhaven zijn nu van dezelfde grootteorde als de achtergrond waarde (1.5 voor PAK en 190 voor minerale olie)

AFBRAAK VAN PAK EN MINERALE OLIE

In figuur 2 is de afbraak in Petroleumhaven specie in de begroeide optie weergegeven. Er is onderscheid gemaakt in een snel (binnen 1 jaar) ontwaterde en gerijpte bovenlaag en een langzaam (ca 5 jaar) ontwaterde onderlaag. In de figuur is de som van de VROM-PAK minus naftaleen weegegeven. Het naftaleengehalte kon niet gedurende de gehele periode betrouwbaar worden gemeten, maar daalde van ca. 17 tot ca. 0,2 mg/kg d.s. De meetresultaten zijn gefit via een som van 3 eerste orde afbraken (zie 3-componenten afbraakmodel).
In de gerijpte bovenlaag is de zuurstofvoorziening en daardoor de afbraak optimaal. Diverse studies laten zien dat onder deze omstandigheden een PAK en olie afbrekende populatie aan micro-organismen ontstaat en ook actief blijft. De resultaten in deze laag kunnen worden gezien als het maximaal haalbare en de afbraakcoëfficiënt is hier ook het grootst. Door veel te bewerken zou dit resultaat in de gehele landfarm kunnen worden bereikt. In de onderlaag was de zuurstofvoorziening niet optimaal, waardoor de afbraak trager was. Als na 5 jaar ook de onderlaag gerijpt en volledig voorzien is van zuurstof gaan de afbraakcurven gelijk lopen. Dat zowel in de onderlaag als in de bovenlaag hetzelfde gehalte wordt gemeten, maakt het aannemelijk dat vervluchtiging geen rol speelt en dat PAK verdwijnt ten gevolge van biologische afbraak. De resultaten laten zien dat als er voor landfarming meer dan 5 jaar beschikbaar is, er voor een extensieve wijze van landfarming kan worden gekozen. Het effect van de extra activiteiten in de beginfase wordt gecompenseerd door de afbraak in de extra beschikbare tijd en er wordt bespaard op de kosten die anders nodig zijn voor bewerken.



FIGUUR 2 AFBRAAK PAK IN PETROLEUMHAVENSPECIE (ONBEWERKT)

ONDERLAAG $C_T = 485*E^{-0.8T} + 40*E^{-0.3T} + 28*E^{-0.025T}$

BOVENLAAG $C_T = 485*E^{-3T} + 40*E^{-0.3T} + 28*E^{-0.025T}$

In de Petroleumhavenspecie, maar ook in de andere species, werd afbraak waargenomen van alle individuele PAK, dus ook van de 6-ringen (tabel 2).

De afbraak van minerale olie verliep op vergelijkbare wijze en alle species voldoen nu aan de criteria voor grootschalige toepassingen. Drie van de vier species voldoen zelfs aan de criteria voor herbruikbare grond (maximaal 500 mg/kg d.s). De samenstelling van de minerale olie verschuift en de componenten die over blijven zijn de minst vluchtige en qua toxiciteit ook de minst schadelijke[4]. Risico's voor uitspoeling waren zeer klein. Natuurlijk was de oorspronkelijke baggerspecie zeer toxisch, maar de toxiciteit nam sneller af dan de concentratie en na ca 5 jaar was de specie al niet meer toxisch. Op dat moment waren er nog wel effecten meetbaar met betrekking tot reproductie, maar ook dit effect is verdwenen[2,5].

VOORSPELBAARHEID

Biologische afbraak via landfarming kan niet succesvol zijn als het resultaat niet voorspelbaar is. Op de landfarm zelf zijn de

	ringen	jul-94	feb-97	jun-08	Afbraak(%)
fluoreen	3	56	1.9	0.46	99.2
fenantreen	3	168	6.6	2.4	98.6
antraceen	3	69	5.5	1.2	98.3
fluoranteen	3	132	9.1	2.8	97.9
pyreen	4	79	5.8	1.1	98.6
benz[a]antraceen	4	33	4.8	1.4	95.8
cryseen	4	31	7.0	1.8	94.2
benzo[b]fluoranteen	4	18	5.0	1.4	92.2
benzo[k]fluoranteen	4	9.3	2.3	0.79	91.5
benzo[a]pyreen	5	17	5.6	1.4	91.8
Indeno[1,2,3-cd]pyreen	5	11	5.8	2.0	81.8
benzo[ghi]peryleen	6	8.4	5.0	2.9	65.5
Som gemeten PAK	6	31	66	20	96.8

TABEL 2 GEHALTEN (MG/KG D.S.) EN AFBRAAK (%) VAN INDIVIDULE PAK IN PETROLEUMHAVENSPECIE (BEWERKT)

BM0509_Landfarming 8 05-10-2009 15:04:07

3 COMPONENTEN AFBRAAKMODEL

De afbraak van PAK kan worden gefit met een som van drie eerste orde afbraken. Voor minerale olie volstaan twee eerste orde afbraken

$$\frac{C_t}{C_0} = F_{snel} \cdot e^{-k\ snel \cdot t} + F_{langzaam} \cdot e^{-k\ langzaam \cdot t} + F_{zeer\ langzaam} \cdot e^{-k\ zeer\ langzaam \cdot t}$$

Met:

C_t	concentratie PAK op tijdstip t (mg/kg d.s.)
C_0	concentratie PAK op tijdstip 0 (mg/kg d.s.)
F_{snel}	fractie snel afbrekend PAK op tijdstip 0 (-)
$F_{langzaam}$	fractie langzaam afbrekende PAK op tijdstip 0 (-)
$F_{zeer\ langzaam}$	fractie zeer langzaam afbrekende PAK op tijdstip 0 (-)
k_{snel}	snelheidsconstante van de snelle afbraak (jaar^{-1})
$k_{langzaam}$	snelheidsconstante van de langzame afbraak (jaar^{-1})
$k_{zeer\ langzaam}$	snelheidsconstante van de zeer langzame afbraak (jaar^{-1})
t	tijd (jaar)

De grootte van de verschillende fracties voor PAK kunnen worden gemeten met de TENAX-methode. De snelheidsconstanten voor snel, langzaam en zeer langzaam zijn respectievelijk 3 (0,8 bij niet-optimale ontwatering); 0,3 en 0,025 jaar^{-1}. Voor minerale olie kan de snelle fractie worden vastgesteld middels een afbraak experiment op het laboratorium en zijn de snelheidsconstanten voor snelle en langzame afbraak respectievelijk 3 en 0.9 jaar^{-1}.

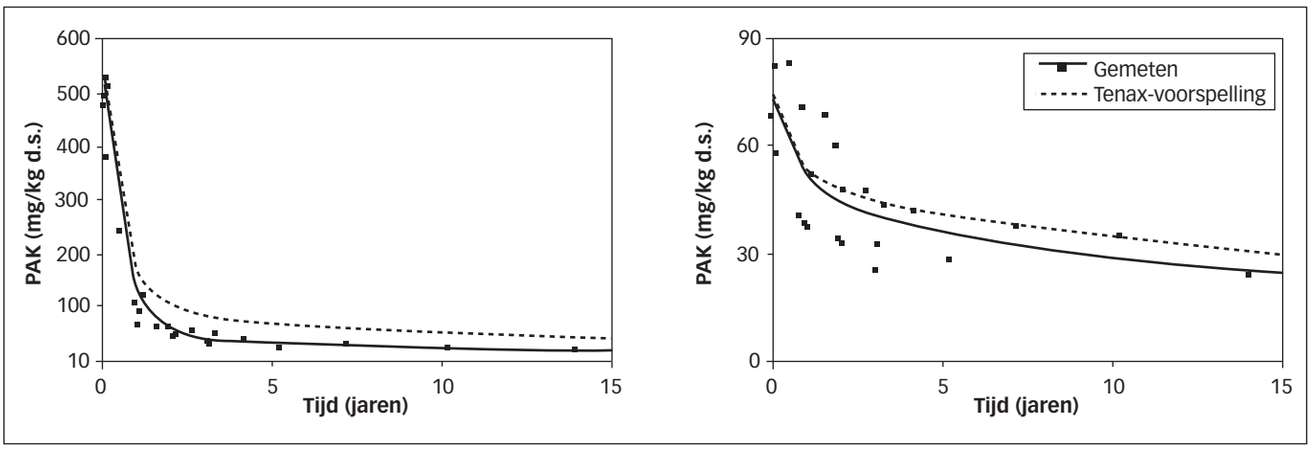
resultaten pas na een zestal jaren duidelijk, na afbraak van de snelle en langzame fractie. De langzame afbraak wordt verklaard met de biologische beschikbaarheid. Een deel (fractie) van de verontreiniging is direct bereikbaar voor micro-organismen en daardoor snel 'beschikbaar' voor afbraak. Een ander deel zit geadsorbeerd op moeilijker bereikbare plekken en moet desorberen en vervolgens diffunderen naar micro-organismen. Dit deel komt langzaam of zelfs zeer langzaam beschikbaar voor afbraak.
De resultaten van de Tenax-methode[6] worden gezien als een goede voorspeller van de afbraak van PAK. De methode toegepast bij 20 °C geeft de snelle fractie en door vervolgens verder te desorberen bij 60 °C wordt ook de langzaam fractie verkregen. Het residue is de zeer langzaam desorbeerbare fractie. De methode is toegepast op de oorspronkelijke species van de Petroleumhaven en Wemeldinge en op monsters genomen in 2004 (Tabel 3).

Toepassing van de gemeten fracties in het 3-componenten afbraakmodel levert vervolgens een voorspelling, die in figuur 3 wordt vergeleken met de metingen. De voorspelling volgt de afbraakcurve goed in het eerste jaar. Hierna breekt er iets meer af dan wordt voorspeld. Het verschil in voorspelling en meting kan worden verklaard door de veranderingen van de organische stof waaraan PAK is geadsorbeerd. Het organisch stof gehalte neemt af en ook de samenstelling van de organische stof verandert van een type behorende bij een waterbodem naar een type behorende bij een begroeide bodem.

Met de resultaten van de Tenaxmetingen uit 2004 wordt voorspeld dat er in de gevormde grond op de Petroleumhaven- en Wemedingevelden tussen 2004 en 2008 nog ca 20 % van de in 2004 aanwezig PAK kan worden afgebroken. De metingen passen in dit beeld.

TOEPASSING

Rijkswaterstaat Zeeland heeft op basis van de resultaten van de beginfase van dit onderzoek besloten om de specie uit de haven van Wemeldinge biologisch te gaan reinigen. De eerste portie van 10.000 m^3 kon na intensieve landfarming al in 1999 worden toegepast in een geluidswal bij de A58. Dit is een toepassing waarbij het mogelijk is dat zuurstof blijft toetreden en de reiniging zich zal voortzetten.
De specie uit de Petroleumhaven is ook biologisch reinigbaar en bovendien herbruikbaar. De regelgeving is echter niet in lijn met deze conclusie. De maximale hoeveelheid PAK die volgens SIKB[7] in te landfarmen specie mag zitten is 80 mg/kg d.s. PAK en 5000 mg/kg d.s. minerale olie. Hogere gehalten zijn toegestaan als via een proefbewerking of biodegradatieproef kan worden aangetoond, dat kan worden voldaan aan de waarden voor herbruikbare grond. Dit vereist in dit geval echter een proef van 14 jaar, wat weinig zinvol lijkt voor de praktijk. Een tweede moge-



FIGUUR 3 VOORSPELDE EN WAARGENOMEN AFBRAAK VAN PAK IN PETROLEUMHAVEN- EN WEMELDINGESPECIE.

BM0509_Landfarming 9 05-10-2009 15:04:07

	Snel (%)	Langzaam (%)	Zeer langzaam (%)
Petroleumhavenvers	77.4 ± 9.1	12.9 ± 5.4	9.8 ± 4.1
Wemeldingevers	24.3 ± 2.5	18.3 ± 1.6	57.5 ± 4.1
Petroleumhaven2004	3.2 ± 1.1	15.2 ± 3.2	81.6 ± 12.3
wemeldinge2004	2.3 ± 0.8	13.8 ± 5.1	83.9 ± 15.1

TABEL 3 RESULTATEN VAN DE TENAX EXTRACTIES, SOM PAK

lijkheid voor toestemming is het in de praktijk bewezen rendement van de betreffende bewerkingsinrichting. Dit zou perspectiefvol zijn voor de locatie Kreekraksluizen als landfarmlocatie Met dit onderzoek zijn immers rendementen van 96% voor PAK en 92% voor minerale olie aangetoond. Als gevolg hiervan zouden vrijwel alle met PAK en olie verontreinigde species in aanmerking komen voor biologische reiniging op deze locatie. Een rendement bij de ene specie is echter geen bewijs voor de andere specie, omdat de biobeschikbaarheid beperkend kan zijn. De gemeten biobeschikbaarheid zou daarom het belangrijkste criterium moeten zijn in het SIKB-protocol.

Bij de sanering van 178.000 m^3 specie in de Petroleumhaven is niet biologisch gesaneerd[8]. Er is gebruik gemaakt van zandscheiding en de organisch rijke, en dus ook PAK en olie bevattende specie, is vervoerd naar het depot Averijhaven in IJmuiden. Een tijdelijke oplossing, omdat dit depot binnen enkele jaren wordt ontmanteld en de specie vermoedelijk wordt verscheept naar het definitieve depot 'De Slufter'. PAK en oliegehalten zullen niet verder dalen en eeuwigdurende nazorg zal noodzakelijk zijn. Bij een deel van de specie is gedurende een korte tijd landfarmen toegepast waarbij een deel van de verontreiniging is afgebroken, maar de specie is uiteindelijk gestort.

Met de kennis van nu, was biologische sanering een reële optie geweest. De baggerspecie had bijvoorbeeld gereinigd kunnen worden in combinatie met de teelt van energiegewassen (wilg, koolzaad) zoals sinds 1997 wordt toegepast op Oostwaardhoeve[9]) bij Slootdorp (Figuur 4). Ook hier zou worden voldaan aan toepassingswaarden in het Besluit Bodemkwaliteit, omdat bij teelt van gewassen er een goed geaereerde bodem ontstaat. Op Oostwaardhoeve is voldoende ruimte beschikbaar en de kosten zouden uitgaande van ca 150.000 m3 specie ongeveer 8 € per m^3 zijn. Ter vergelijking, het storten in de Averijhaven koste ook ca. 8 € per m^3 (15,90 € per ton droge stof) en er is 156.000 m^3 gestort. De zandscheiding toegepast bij 43.500 m^3 en vervolgens storten van het residu koste 13 -15 € per m^3 waarbij 22.000 m^3 herbruikbaar zand is verkregen. Hierboven op komen straks nog de kosten voor transport naar de uiteindelijke bestemming (ca. 9 € per m^3) (gegevens M. Reus, De Vries en van de Wiel, Schagen). Transport is natuurlijk ook nodig voor op Oostwaardhoeve behandelde specie, maar dit is transport naar een nuttige toepassing en de gereinigde bagger is dan een grondstof.

Qua resultaat en duurzaamheid, maar ook financieel gezien is landfarming een goede optie, zelfs voor Petroleumhavenspecie. Een punt van discussie is nog: 'Mag het' en ook 'Willen we het'. 'Mag het' is zoals al is vermeld een kwestie van regelgeving. Uitgaande van de Ladder van Lansink verdient landfarmen en hergebruik de voorkeur boven storten in een depot en willen we het dus ook. De vergunning voor een locatie als Oostwaardhoeve moet echter toereikend zijn en het landfarmen van dit type sterk verontreinigde baggerspecie mag niet leiden tot weerstand in de omgeving. De recente discussie over zandwinputten heeft ons weer eens geleerd dat er geen vragen moeten zijn over risico's bij toepassing van baggerspecie. Dit vereist voorlichting, communicatie en zorgvuldige besluitvorming, maar vooral duidelijkheid.

FIGUUR 4. REINIGING VAN BAGGERSPECIE IN COMBINATIE MET DE TEELT VAN KOOLZAAD VOOR BIODIESEL (FOTO OOSTWAARDHOEVE)

Er is in Nederland een ontwikkeling in gang gezet waarbij de uitvoerende partijen (meestal private sector) meer en meer vrijheid krijgen om zelf te bepalen wat gedaan moet worden met vrijkomende baggerspecie, vanzelfsprekend binnen wettelijke kaders. In het bovenstaande kan wat dat betreft, een oproep aan die partijen worden gelezen om minder te gaan storten en verwerkingsmethoden die de specie ook schoonmaken serieus in overweging te nemen.

DANKWOORD

Dit onderzoek is uitgevoerd binnen diverse programma's van LNV en Rijkswaterstaat.

LITERATUUR

1. Poorter, L.R.M. de, J. Harmsen en J. van Peperstraten, 2001. Landfarming: van verontreinigde baggerspecie naar bruikbare grond. RIZA rapport 2001.011.
2. Harmsen, J., 2004. Landfarming of polycyclic aromatic hydrocarbons and mineral oil contaminated sediments. PhD-thesis Wageningen Universiteit (http://library.wur.nl/wda/dissertations/dis3662.pdf).
3. Harmsen, J., W.H. Rulkens, R.C. Sims P.E. Rijtema and A.J. Zweers, 2007. Theory and application of landfarming to remediate PAHs and mineral oil contaminated soils and sediments, J. Env. Quality, 36, 1112-1122.
4. Verbruggen, E.M.J., M. Beek, J. Pijnenburg en T.P. Traas, 2008. Ecotoxicological environmental risk limits for Total Petroleum Hydrocarbons in the basis of internal lipid concentrations. Environmental Toxicology and Chemistry, 27, 12, 2436–2448.
5. Harmsen, J., W.H. Rulkens, H.J.P. Eijsackers and R.C. Sims, 2005. Risk assessment for contaminated sediments treated on a landfarm. In: B.C. Alleman and M.E. Kelley, In Situ and On-Site Bioremediation—2005. Proceedings of the Eighth International In Situ and On-Site Bioremediation Symposium (Baltimore, Maryland, June 6-9, 2005), Battelle Press, Columbus, OH). Paper F-29.
6. Cornelissen, G., P.C.M. van Noort, J.R. Parsons, H.A.J. Govers, 1997. Temperature dependence of slow adsorption and kinetics of organic compounds in sediments. Environ. Sci. Technol. 31, 454-460.
7. SIKB, 2008. Landfarming, ontwatering, rijping en zandscheiding van baggerspecie. SIKB-protocol 7511. SIKB, Gouda.
8. Wevers, H,H.A.G., N.J. Berg. T.H.P. Cnudde en R.P. Barkhuis, 2008. Vissen durven het weer aan in de Petroleumhaven. Land+Water, 11, 17-19.
9. Vermeulen, G.D., J. Harmsen en A. Ursem, 2005. baggerreiniging en Wilgenteelt. Bodem, 2, 66-68.

BM0509_Landfarming 10 05-10-2009 15:04:08