Uitspoeling van zware metalen in het landelijk gebied

In opdracht van RIZA

Uitspoeling van zware metalen in het landelijk gebied

Modellering van uitspoeling op regionale schaal: modelaanpak, resultaten modelberekeningen en modelvalidatie

L.T.C. Bonten P.F.A.M. Römkens G.B.M. Heuvelink

Alterra-rapport 1044

Alterra, Wageningen, 2004

REFERAAT

Bonten, L.T.C., P.F.A.M. Römkens & G.B.M. Heuvelink, 2004. Uitspoeling van zware metalen in het landelijk gebied, modellering van uitspoeling op regionale schaal: modelaanpak, resultaten modelberekeningen en modelvalidatie. Wageningen, Alterra, Alterra-rapport 1044. 46 blz.; 26 fig.; 9 tab.; 10 ref.

Modelberekeningen zijn uitgevoerd voor de uitspoeling van de zware metalen cadmium, koper, nikkel, lood en zink uit bodems in het landelijk gebied naar het oppervlaktewater. Hierbij is gebruik gemaakt van een landsdekkende bodemschematisatie (STONE) van Nederland onderverdeeld in 6405 ruimtelijke eenheden en 500x500 m gridkaarten van zware metaalgehaltes in de bovengrond. Metaalconcentraties in het bodemvocht zijn berekend met transferfuncties voor verdeling van zware metalen over bodem en porievocht. Voor zand- en kleigronden komen de berekende concentraties redelijk overeen met metingen in het oppervlaktewater. Voor veengronden zijn gemiddeld hoger concentraties berekend dan gemeten. De mogelijke oorzaak hiervan is anaerobe vastlegging van zware metalen in de bodem in veengronden.

Trefwoorden: bodem, grondwater, modellering, oppervlaktewater, uitspoeling landbouwgronden, zware metalen,

ISSN 1566-7197

Dit rapport kunt u bestellen door €16,- over te maken op banknummer 36 70 54 612 ten name van Alterra, Wageningen, onder vermelding van Alterra-rapport 1044. Dit bedrag is inclusief BTW en verzendkosten.

© 2004 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 verveelvoudigd 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

| San                 | nenvatting  | 7  |
|---------------------|---|--|
| 1                   | Inleiding   | 9  |
| 2                   | <ul> <li>Modelaanpak</li> <li>2.1 Modelschematisatie <ul> <li>2.1.1 Ruimtelijke schematisatie</li> <li>2.1.2 Hydrologie</li> <li>2.1.3 Bodemopbouw</li> <li>2.1.4 Metaalgehaltes in de bodem</li> </ul> </li> <li>2.2 Berekening uitspoeling en concentraties <ul> <li>2.2.1 Concentraties in bodemvocht</li> <li>2.2.2 Uitspoeling (fluxen en concentraties)</li> </ul> </li> <li>2.3 Van STONE-cenheid naar afwateringseenheid</li> </ul> | 11<br>11<br>12<br>12<br>13<br>14<br>14<br>15<br>15 |
| 3                   | Resultaten en discussie   | 17   |
| 4                   | <ul> <li>Onzekerheidsanalyse</li> <li>4.1 Inleiding</li> <li>4.2 Overzicht onzekerheden</li> <li>4.3 Methode onzekerheidsanalyse</li> <li>4.4 Resultaten onzekerheidsanalyse</li> </ul>   | 23<br>23<br>23<br>25<br>27                         |
| 5                   | <ul> <li>Validatie modelberekeningen</li> <li>5.1 Validatie modelsystematiek</li> <li>5.2 Berekende uitspoeling in vergelijking met aanvoer van zware metalen</li> <li>5.3 Vergelijking berekende en gemeten concentraties</li> </ul>   | 31<br>31<br>32<br>33                               |
| 6                   | Conclusies  | 39   |
| Lite                | ratuur  | 41   |
| <b>В</b> 1ј.<br>1 ( | <i>age</i><br>Dverzicht eigenschappen geselecteerde plots voor onzekerheidsanalyse  | 43   |

## Samenvatting

In het kader van de rapportage 'Emissie registratie' is door RIZA aan ALTERRA gevraagd modelberekeningen uit te voeren om de uitspoeling van zware metalen uit bodems in het landelijk gebied op regionale schaal te kwantificeren.

Uit de resultaten van een eerder door Alterra uitgevoerd onderzoek blijkt dat uitspoeling van metalen naar het grond- en oppervlaktewater een belangrijke bijdrage levert aan de belasting van het oppervlaktewater. Veldmetingen van het bovenste grondwater geven echter aan dat regionale verschillen in uitspoeling groot kunnen zijn tengevolge van verschillen in bodemgehaltes, bodemtype en landgebruik. Om op regionale schaal voorspellingen te kunnen doe over de uitspoeling van zware metalen zijn modelberekeningen uitgevoerd waarbij Nederland is onderverdeeld in 6405 eenheden (STONE-schematisatie) met verschil in bodemtype, metaalgehaltes en hydrologie.

De berekening van de uitspoeling op regionale schaal zijn uitgevoerd in een aantal stappen op basis van verschillende bronmaterialen:

- schematisatie van zware metalen in de bovengrond op basis van de gehalten van een landelijke 500x500 m gridkaart;
- schematisatie van zware metaalgehalten in de ondergrond op basis van gehaltes in de bovengrond, diepte en bodemeigenschappen;
- berekening van de uitspoeling van zware metalen per eenheid op basis van een jaarlijkse waterbalans, schematisatie van metalen in onder- en bovengrond en metaaltransferfuncties.

De berekende uitspoeling is tevens herschaald naar een indeling van Nederland in 2439 afwateringseenheden.

De modelberekeningen voorspellen dat voor veel gebieden in Nederland de concentraties in het uitspoelende grondwater de MTR-waarde voor oppervlaktewater overschrijden. De grootste overschrijdingen zijn berekend voor veengebieden, waarbij concentraties tussen 3 en 30 maal MTR worden berekend. Voor nikkel worden ook in kleigebieden grote overschrijdingen berekend. Voor zink wordt voor vrijwel geheel Nederland een overschrijding van de MTR-waarde voorspeld.

Om de betrouwbaarheid van modelresultaten te kunnen schatten is een onzekerheidsanalyse uitgevoerd. Hieruit volgt dat onzekerheid in de hydrologie (grondwaterstand) kan leiden tot een grote onzekerheid in de resultaten van de modelberekeningen voor een individuele STONE-eenheid. Op landelijke schaal wordt er echter geen grote systematische fout in de resultaten op basis van onzekerheid in de hydrologie voorspeld. Door de grote onzekerheid kunnen de modelresultaten alleen met de nodige voorzichtigheid worden toegepast op de gehanteerde ruimtelijke schaalniveaus. De onzekerheid in de modelresultaten kan worden verminderd door opschaling naar een groter schaalniveau (bijvoorbeeld (deel)stroomgebieden).

Tenslotte zijn de modelresultaten vergeleken met meetwaarden van metaalconcentraties in oppervlaktewater. Hieruit volgt dat op landelijke schaal de uitspoeling uit zand- en kleigronden voor bijna alle metalen redelijk wordt voorspeld. Bij kleigronden is voor de meeste metalen de berekende concentratie gemiddeld lager dan de gemeten concentratie. Een mogelijke oorzaak is de belasting van het oppervlaktewater door andere bronnen dan uitspoeling.

Voor veengronden zijn de berekende concentraties in de uitspoeling naar het oppervlaktewater hoger dan de gemeten concentraties in oppervlaktewater. De grootste afwijkingen worden hier gevonden voor zink en nikkel. De reden hiervoor is waarschijnlijk anaërobe vastlegging van de metalen in de bodem, waardoor concentraties in het bodemvocht, en daarmee in het uitspoelende grondwater, sterk afnemen. De gebruikte modellen zijn afgeleid voor aërobe gronden en daarom waarschijnlijk niet toepasbaar voor anaërobe bodems. Eenvoudig toepasbare modellen voor het gedrag van metalen in anaërobe bodems en landsdekkende gegevens over de redox-toestand van bodems in Nederland zijn echter nog niet of nauwelijks beschikbaar.

## 1 Inleiding

In het kader van de rapportage 'Emissie registratie' is door RIZA aan ALTERRA gevraagd modelberekeningen uit te voeren om de uitspoeling van zware metalen uit bodems in het landelijk gebied op regionale schaal te kwantificeren.

In een voorgaand project (Römkens et al, 2003a) is de uitspoeling van zware metalen van de bodem naar het oppervlaktewater modelmatig berekend. Hierbij is de uitspoeling op nationale schaal geschat op basis van een aantal representatieve eenheden welke zijn opgeschaald naar heel Nederland. Uit de resultaten van dit voorgaande project blijkt dat uitspoeling van metalen naar het grond- en oppervlaktewater een belangrijke bijdrage levert aan de belasting van het oppervlaktewater. Veldmetingen van het bovenste grondwater (Bonten et al, 2003) geven echter aan dat regionale verschillen in uitspoeling groot kunnen zijn tengevolge van verschillen in bodemgehaltes, bodemtype en landgebruik. Om de invloed van deze variatie tot uitdrukking te laten komen in de schatting van de uitspoeling op nationale schaal is het dus gewenst om niet meer met representatieve eenheden te werken, maar met werkelijke eenheden die samen (opgeteld) Nederland beslaan.

De berekening van de uitspoeling op regionale schaal wordt uitgevoerd op basis van verschillende bronmaterialen in een aantal stappen:

- Schematisatie van zware metalen in de bovengrond op basis van de gehalten van de landelijke kaartbeelden (500 x 500 meter gridkaart). Schematisatie vindt plaats per zogenoemde STONE-eenheid.
- Schematisatie van zware metaalgehalten in de ondergrond op basis van gehaltes in de bovengrond, diepte van de bodemlaag en bodemeigenschappen pH, klei en organische stof.
- Berekening van jaarlijkse waterbalansen voor alle afzonderlijke STONE eenheden voor een gemiddeld meteorologisch jaar.
- Berekening van de uitspoeling van zware metalen per STONE-eenheid op basis van een jaarlijkse waterbalans, schematisatie van metalen in onder- en bovengrond en metaaltransferfuncties.
- Vertaling van de uitspoeling per STONE-eenheid naar de uitspoeling per afwateringseenheid.
- Onzekerheidsanalyse van de berekende uitspoeling.
- Validatie van de modelberekeningen door een vergelijking met meetgegevens van oppervlaktewateren.

In deze rapportage zijn opgenomen een beschrijving van de bovenstaande stappen plus een samenvatting van de resultaten van de modelberekeningen en onzekerheidsanalyse. Verder zijn de berekende concentraties in het lateraal uitspoelende grondwater vergeleken met metingen en concentraties in het oppervlaktewater. De volledige resultaten van de modelberekeningen zijn in digitale vorm beschikbaar.

## 2 Modelaanpak

De modelaanpak voor de berekening van de uitspoeling van zware metalen uit bodems in het landelijk gebied per afwateringseenheid is schematisch weergegeven in Figuur 2.1. Per onderdeel is tevens aangegeven in welke paragraaf het besproken wordt.



Figuur 2.1 Schematische weergave modelberekeningen

## 2.1 Modelschematisatie

## 2.1.1 Ruimtelijke schematisatie

Voor de ruimtelijke schematisatie is aangesloten bij de landsdekkende STONEschematisatie van de bodem in Nederland (Kroes et al, 2001). Hierbij is Nederland verdeeld in 6405 eenheden, waarbij elke eenheid een unieke combinatie is van bodemopbouw, neerslag en evapotranspiratie, hydrologie van de ondergrond (kwel/wegzijging) en landgebruik. Voor elk van deze eenheden zijn de belangrijkste fysische en chemische bodemeigenschappen gegeven tot een diepte van 13 m –mv. Verder is voor alle eenheden de hydrologie voor de jaren 1971 t/m 2000 berekend op basis van bodemeigenschappen en meteorologische gegevens.

## 2.1.2 Hydrologie

Voor de berekening van de uitspoeling van zware metalen is uitgegaan van een gemiddelde jaarlijkse waterbalans op basis van een langjarig gemiddelde. Hiervoor is per STONE-eenheid de hydrologische gegevens voor de periode 1971-2000 omgerekend naar een gemiddelde jaarlijkse waterbalans per STONE-eenheid. In deze waterbalans wordt onderscheid gemaakt in laterale uitspoeling, d.w.z. naar het oppervlaktewater en verticale uitspoeling naar het diepere grondwater. Voor berekening van de verticale uitspoeling is uitgegaan van het water dat het profiel op een diepte van 5 m –mv verlaat. Bij de laterale stroming wordt onderscheid gemaakt in stroming naar 3 verschillende afwateringssystemen, namelijk greppels, sloten en kanalen. In het algemeen neemt de bijdrage van de verschillende deelstromen aan de uitspoeling naar het oppervlaktewater toe naarmate de diepte in het profiel toeneemt. Ook de verblijftijd van het water in de verschillende deelstromen is verschillend; deze neemt toe in de volgorde kanaal > sloot > greppel.

#### 2.1.3 Bodemopbouw

Voor de schematisatie van de bodemeigenschappen is aangesloten bij de STONEschematisatie. Hierin zijn gegeven: organisch stofgehalte, kleigehalte, gehalte van ijzer- en aluminiumhydroxiden en bulkdichtheid van de bodem. Voor de bovengrond (0-1 m –mv) is ook de pH gegeven per onderscheiden bodemhorizont. Voor de diepere ondergrond (1-5 m –mv) is de pH echter niet standaard beschikbaar en is de pH als volgt geschematiseerd:

- Wanneer de bodemeigenschappen van de diepere ondergrond (> 1m -mv) aansluiten bij die van het bodemprofiel is de pH is gelijk aan de pH van de bovenliggende laag,
- Wanneer de onderlaag een organisch stofgehalte groter dan 25 % heeft en dit afwijkt van de bovenliggende laag, is een lagere pH waarde genomen, en
- Wanneer de onderlaag een lutumgehalte groter dan 50 % heeft, is een hogere pH waarde genomen.

Dit is gedaan omdat uit veldmetingen is gebleken dat gronden met een hoog organisch stofgehalte (veengronden) in het algemeen een lage pH waarde hebben en gronden met een hoog lutumgehalte in het algemeen een hoge pH waarde hebben.

Voor de berekening van de concentratie opgeloste organisch koolstof (DOC) is gebruik gemaakt van de volgende transferfunctie (Römkens et al., 2004):

$$\log DOC = 2,667 + 0,70 * \log OM - 0,150 * pH + 1,52 \log(V : V) \quad (R^2 = 0,65; SE(Y) = 0,33)$$
[1]

waarbij, DOC=concentratie opgelost organisch koolstof (mg C/l); OM = organisch stofgehalte (%); pH = pH-CaCl<sub>2</sub>; (V:V) = verhouding vast-vloeistof (m:m).

#### 2.1.4 Metaalgehaltes in de bodem

De basis voor de berekeningen is het zware metaalgehalte in de bodem. Het gehalte aan metalen is op veel locaties verhoogd ten opzicht van het van nature aanwezig gehalte, door belasting van historische bronnen. Belangrijke bronnen hierbij zijn: landbouwkundige activiteiten (voornamelijk bemesting), industriële activiteiten (bijvoorbeeld atmosferische depositie afkomstig van zinkfabrieken) en verkeer (depositie van lood uit benzine). Door uit te gaan van het gehalte in de bodem wordt deze historische belasting impliciet meegenomen in de berekeningen. Het is in deze studie echter niet mogelijk om per locatie aan te geven wat de oorspronkelijk bron van het metaal in de bodem is (zie ook paragraaf 5.2).

#### Cadmium, koper, lood en zink

Voor de gehaltes in de bovenste bodemlaag van de metalen cadmium, koper, lood en zink is uitgegaan van de gehaltes zoals gepubliceerd door Brus et al. (2002). In deze rapportage zijn voor heel Nederland per 500 x 500 m gridcel zware metaalgehaltes gegeven voor de bovengrond. Voor grasland is dat de 0 tot 5 cm laag terwijl dit voor akkerbouw 0 tot 25 bedraagt. Het gehalte per gridcel is berekend door middel van regressie op basis van bodemeigenschappen en landgebruik waarbij rekening is gehouden met regionale variatie in gehaltes. Om het gehalte per STONE plot te bepalen is vervolgens het gemiddelde van alle waarden van de individuele 500 x 500 gricdellen binnen de betreffende STONE-plot eenheid berekend.

De beschikbare gegevens over metaalgehaltes in de bodem in de gebruikte database zijn 'totale'-metaalgehalten, in dit geval bepaald door middel van een Aqua-Regia extractie. Voor de uitspoelingsberekening is echter het reactief metaalgehalte nodig, in dit geval het gehalte aan metalen dat door middel van een 0,43 N HNO<sub>3</sub> extractie bepaald wordt. Totale metaalgehaltes zoals bepaald met een Aqua-Regia destructie konden vrij eenvoudig worden omgerekend naar reactieve gehaltes volgens de methode zoals beschreven in Römkens et al. (2004).

Voor de reactieve gehaltes in de ondergrond is gebruik gemaakt van regressievergelijkingen tussen reactieve gehaltes in de bovengrond, organische stofen kleigehalte, pH en diepte van de bodemlaag. In de rapportage betreffende de veldmetingen 2003 (Römkens et al., 2003b) aangaande uitspoeling van zware metalen op landbouwgronden zijn vergelijkbare regressievergelijkingen afgeleid met daarbij ook oxalaat-extraheerbaar fosfaat (P-ox) als parameter. Deze parameter oxalaat is in deze studie niet gebruikt omdat deze niet voor alle STONE-eenheden en alle bodemlagen beschikbaar is. De regressiecoëfficiënt en de standaardafwijking van de gebruikte regressievergelijkingen (dus zonder P-ox) wijkt slechts in geringe mate af van regressievergelijkingen met P-ox. De in deze studie gebruikte regressievergelijkingen zijn wel afgeleid op basis van dezelfde data als in de rapportage betreffende de veldmetingen. De gebruikte regressievergelijkingen voor berekening van zware metaalgehaltes in de ondergrond hebben de volgende vorm:

$$\log Me_{z=xam} = A_0 + A_1 \log Me_{z=0am} + A_2 \log OM + A_3 \log lutum + A_4 \cdot pH + A_5 \log z$$
<sup>[2]</sup>

waarbij,  $Me_{z=x cm}$  = het gehalte reactief metaal op diepte z=x cm (mg/kg); OM = organisch stofgehalte (%); lutum = lutumgehalte (%); pH = pH-CaCl<sub>2</sub>; z = diepte van de bodemlaag (cm -mv).

Voor de zware metalen cadmium, koper, lood en zink hebben de coëfficiënten  $A_0$  t/m  $A_5$  de volgende waarden:

| 1000    |       |       |       |                |       |       |                |       |  |  |  |
|---------|-------|-------|-------|----------------|-------|-------|----------------|-------|--|--|--|
| metaal  | $A_0$ | $A_1$ | $A_2$ | A <sub>3</sub> | $A_4$ | $A_5$ | R <sup>2</sup> | SE(Y) |  |  |  |
| cadmium | -0,15 | 0,92  | 0,42  | -0,08          | 0,05  | -0,50 | 0,62           | 0,42  |  |  |  |
| koper   | 0,21  | 0,54  | 0,37  | 0,18           | 0,10  | -0,77 | 0,70           | 0,40  |  |  |  |
| lood    | 0,36  | 0,73  | 0,38  | 0,10           | 0,08  | -0,80 | 0,82           | 0,34  |  |  |  |
| zink    | -0,06 | 0,83  | 0,42  | -0,07          | 0,11  | -0,61 | 0,73           | 0,39  |  |  |  |

Tabel 2.1 Coëfficiënten regressievergelijkingen zware metaalgehaltes in de ondergrond

#### Nikkel

Voor nikkel is afwijkende schematisatie toegepast, omdat de voornaamste bron van nikkel niet emissie door atmosferische depositie of bemesting is, maar verwering van natuurlijke mineralen. Hierdoor wordt de variatie in nikkelgehaltes in de bodem voornamelijk bepaald door variatie in bodemeigenschappen. Verder zijn nikkelgehaltes in de ondergrond nauwelijks afhankelijk van nikkelgehaltes in de bovengrond. Voor boven- en ondergrond zijn de nikkelgehaltes daarom op dezelfde manier berekend. Voor de berekening van nikkelgehaltes in boven- en ondergrond is de volgende regressie tussen nikkelgehaltes, organisch stof- en kleigehaltes en pH gebruikt:

$$\log Ni = -1,78 + 0,89 \log OM + 0,31 \log lutum + 0,19 \cdot pH \quad (R^2 = 0,84; SE(Y) = 0,27)$$
<sup>[3]</sup>

#### 2.2 Berekening uitspoeling en concentraties

#### 2.2.1 Concentraties in bodemvocht

De concentraties in het bodemvocht zijn berekend met behulp van partitierelaties tussen de gehaltes van zware metalen in de bodem, bodemeigenschappen en concentraties (Römkens et al., 2004). De gebruikte regressievergelijkingen voor berekening van de concentraties hebben de volgende algemene vorm:

$$\log Me = n \log[Me] + A_0 + A_1 \log OM + A_2 \log lutum + A_3 \log FeAlox + A_4 \cdot pH + A_5 \log[DOC]$$
<sup>[4]</sup>

waarbij, Me is het gehalte reactief metaal in de bodem (mg/kg); [Me] = concentratie metaal in het bodemvocht (mg/l); OM = organisch stofgehalte (%); lutum = lutumgehalte (%); FeAlox = gehalte oxalaat extraheerbaar ijzer en aluminium (mmol/kg); pH = pH-CaCl<sub>2</sub>; [DOC] = concentratie DOC in het bodemvocht (mg C/l). Hierbij is de waarde van het intercept ( $A_0$ ) afwijkend t.o.v. Römkens et al. (2004), omdat hier zowel de invoer (vaste fase) als uitvoer (concentratie) niet op molbasis maar op massa-basis is.

Voor de gebruikte vergelijkingen hebben de coëfficiënten n en  $A_0$  t/m  $A_5$  de volgende waarden:

|         | 55   | 1     |                | 0     |                |                |       |                |       |
|---------|------|-------|----------------|-------|----------------|----------------|-------|----------------|-------|
| metaal  | n    | $A_0$ | A <sub>1</sub> | $A_2$ | A <sub>3</sub> | A <sub>4</sub> | $A_5$ | R <sup>2</sup> | SE(Y) |
| cadmium | 0,50 | -1,30 | 0,43           | 0,12  | 0,32           | 0,25           | -0,04 | 0,78           | 0,30  |
| koper   | 0,67 | 0,79  | 0,47           | 0,12  | 0,37           | 0,12           | -0,31 | 0,67           | 0,34  |
| nikkel  | 0,62 | -0,77 | 0,68           | 0,39  | 0,06           | 0,26           | -0,08 | 0,88           | 0,27  |
| lood    | 1,11 | 1,00  | 0,61           | 0,09  | 0,65           | 0,22           | -0,43 | 0,58           | 0,63  |
| zink    | 0,75 | -1,13 | 0,38           | 0,26  | 0,23           | 0,44           | -0,13 | 0,83           | 0,39  |

Tabel 2.2 Coëfficiënten partitierelaties voor berekening concentraties van metalen in bodemvocht

## 2.2.2 Uitspoeling (fluxen en concentraties)

Voor de berekening van de laterale uitspoeling van zware metalen zijn per bodemlaag de berekende concentraties van zware metalen in het bodemvocht vermenigvuldigd met de hydrologische laterale fluxen. De metaalfluxen per bodemlaag zijn vervolgens gesommeerd tot een metaalflux per drainage-eenheid (d.w.z. kanalen, sloten en greppels).

Voor de berekening van de verticale uitspoeling zijn de berekende concentraties van zware metalen in de onderste bodemlaag vermenigvuldigd met de verticale uitspoeling van grondwater. In geval van kwel (verticale inspoeling van grondwater) is de metaaluitspoeling in verticale richting op nul gesteld.

De concentraties van zware metalen per drainage-eenheid zijn berekend door de metaalfluxen per drainage-eenheid te delen door de hydrologische fluxen per drainage-eenheid.

De totale uitspoeling van zware metalen is berekend door voor iedere STONEeenheid de zware metaalfluxen te vermenigvuldigen met het oppervlak van de betreffende STONE-eenheid.

## 2.3 Van STONE-eenheid naar afwateringseenheid

De uitspoeling van alle STONE-eenheden is verdeeld over de afwateringseenheden zoals die worden gebruikt in de landelijke emissieregistratie, evenredig met het oppervlak van een bepaalde STONE-eenheid binnen een afwateringseenheid. Hierbij is gebruik gemaakt van een GIS-bestand met alle 6405 STONE-eenheden en een GIS-bestand met alle 2439 afwateringseenheden. Voor de verdeling is gebruik gemaakt van een raster van 25x25m.

De wijze van ruimtelijke schematisatie is anders bij de STONE-schematisatie dan bij de indeling in afwateringseenheden. Bij STONE-eenheden wordt uitgegaan van een raster van 250x250m, terwijl bij afwateringseenheden wordt uitgegaan van een vectorbestand. Dit heeft tot gevolg dat enkele STONE-eenheden voor een klein gedeelte ook oppervlaktewateren, stedelijke gebieden en gebied direct buiten Nederland beslaan. Voor de berekende uitspoeling leidt dit voor enkele afwateringseenheden tot een afwijkend resultaat. Ten eerste wordt voor afwateringseenheden die betrekking hebben op oppervlaktewateren ook een uitspoeling berekend, terwijl hier theoretisch geen uitspoeling plaats kan vinden (door de afwezigheid van bodem). Verder wordt een aantal afwateringseenheden niet volledig gedekt door STONEeenheden; dit betreft vooral afwateringseenheden buiten Nederland en stedelijke gebieden. Voor deze beperkte groep van afwateringseenheden (d.w.z. grote oppervlaktewateren, stedelijke gebieden en eenheden buiten Nederland) zijn de berekende uitkomsten daardoor niet correct en niet bruikbaar in het kader van de emissieregistratie.

## 3 Resultaten en discussie

In een digitaal bestand (regionalisatie uitspoeling.xls) behorende bij deze rapportage zijn per STONE-eenheid en per afwateringseenheid de volgende berekende grootheden beschikbaar:

- 1. de hydrologische fluxen (m/jr),
- 2. de totale hydrologische stromen  $(m^3/jr)$ ,
- 3. de fluxen van zware metalen  $(mg/m^2/jr)$ ,
- 4. de concentraties in het uitspoelende grondwater (mg/l) en
- 5. de totale uitspoeling van zware metalen (kg/jr).

Voor alle eenheden is onderscheid gemaakt in 3 laterale fluxen, namelijk naar greppels, sloten en kanalen en één verticale flux, gedefinieerd als de flux die op 5 m -mv in verticale richting het profiel verlaat.

In dit hoofdstuk worden de belangrijkste resultaten van modelberekeningen weergegeven en besproken

#### Concentraties per STONE-eenheid en per afwateringseenheid

In onderstaande figuren zijn de berekende concentraties weergegeven (relatief t.o.v. het MTR-niveau) van zware metalen in het lateraal uitspoelende water voor alle STONE-eenheden. Dit is het flux gewogen gemiddelde van alle drie laterale fluxen (sloten, greppels, kanalen).



Figuur 3.1 Berekende concentraties cadmium in het lateraal uitspoelend grondwater (t.o.v. VR en MTR) voor uitspoelend grondwater (t.o.v. VR en MTR) voor alle alle STONE-eenheden STONE-eenheden

Alterra-rapport 1044



Figuur 3.3 Berekende concentraties nikkel in het lateraalFiguur 3.4 Berekende concentraties lood in het lateraaluitspoelend grondwater (t.o.v. VR en MTR) voor alleuitspoelend grondwater (t.o.v. VR en MTR) voor alleSTONE-eenhedenSTONE-eenheden



Figuur 3.5 Berekende concentraties zink in het lateraal uitspoelend grondwater (t.o.v. VR en MTR) voor alle STONE-eenheden

In onderstaande figuren zijn de berekende concentraties weergegeven (relatief t.o.v. het MTR-niveau) van zware metalen in het lateraal uitspoelende water voor alle afwateringseenheden. Ook hier betreft het het fluxgewogen gemiddelde van alle drie laterale fluxen.





Figuur 3.6 Berekende concentraties cadmium in het lateraal uitspoelend grondwater (t.o.v. VR en MTR) per uitspoelend grondwater (t.o.v. VR en MTR) per afwateringseenheid

Figuur 3.7 Berekende concentraties koper in het lateraal afwateringseenheid



Figuur 3.8 Berekende concentraties nikkel in het lateraal Figuur 3.9 Berekende concentraties lood in het lateraal uitspoelend grondwater (t.o.v. VR en MTR) per uitspoelend grondwater (t.o.v. VR en MTR) per afwateringseenheid afwateringseenheid



Figuur 3.10 Berekende concentraties zink in het lateraal uitspoelend grondwater (t.o.v. VR en MTR) per afwateringseenheid

Voor alle metalen zijn de hoogste concentraties berekend voor veengebieden (veenweide-gebied, kop van Overijssel/Zuid Friesland en de Peel) en het lössgebied. Daarnaast worden voor nikkel ook hoge concentraties berekend in de kleigebieden. In kleigronden is mogelijk sprake van hogere gehaltes aan -van nature aanwezignikkel in de bodem hetgeen resulteert in hogere concentraties en (dus) uitspoeling. Opvallend zijn verder de grote normoverschrijdingen voor zink in vergelijking met andere metalen; op een aantal plaatsen zijn voor zink concentraties van meer dan 100 x MTR berekend. Deze grote normoverschrijdingen worden deels veroorzaakt aan de relatief lage MTR-waarde voor zink. Echter voor veengebieden lijken de berekende concentraties in het bodemvocht te hoog (zie ook hoofdstuk 5). Opvallend is verder dat zandgebieden met bekende hoge gehaltes aan zware metalen (o.a. de Kempen) niet als zodanig herkenbaar zijn in bovenstaande figuren. Omdat dit vooral relatief droge gebieden zijn met een lage grondwaterstand, treedt laterale uitspoeling vooral op uit diepere bodemlagen met lagere gehaltes.

Voor een aantal gebieden (o.a. grote oppervlaktewateren, grote stedelijke agglomeraties) worden geen concentraties in de laterale uitspoeling berekend voor de STONE-eenheden. Deze gebieden zijn namelijk niet opgenomen in de STONE-schematisatie. Voor afwateringseenheden wordt voor deze gebieden wel laterale uitspoeling berekend. Dit komt doordat deze afwateringseenheden vaak een grotere/andere omvang hebben dan de STONE-eenheden en daardoor overlappen met STONE-eenheden net buiten stedelijke agglomeraties c.q. grote oppervlakte-wateren.

#### Modelresultaten in vergelijking met eerdere berekeningen

Om de resultaten van deze berekeningen te vergelijken met de eerder uitgevoerde berekeningen (Römkens et al., 2003a) op basis van een beperkt aantal STONEeenheden is in Tabel 3.1 de totale laterale uitspoeling van de zware metalen weergegeven.

Tabel 3.1Berekende totale laterale uitspoeling van zware metalen uit bodems in het landelijk gebied voor heel<br/>Nederland (in 1000 kg/jr)

|                                  | 5.57    |       |        |      |       |
|----------------------------------|---------|-------|--------|------|-------|
| berekeningen                     | cadmium | koper | nikkel | lood | zink  |
| alle STONE-eenheden              | 1.6     | 24    | 110    | 30   | 1 187 |
| (dit rapport)                    | 1,0     | 24    | 110    | 59   | 1,107 |
| op basis van extrapolatie van 14 |         |       |        |      |       |
| STONE-eenheden (Römkens et       | 0,7     | 28    | 14     | 12   | 250   |
| al, 2003a)                       |         |       |        |      |       |

Uit bovenstaande tabel volgt dat voor alle metalen, met uitzondering van koper, een (veel) grotere uitspoeling wordt berekend dan in de eerdere berekeningen uitgaande van een beperkt aantal STONE-eenheden. Voor nikkel en zink is de afwijking ten opzichte van de eerdere berekeningen het grootst.

Deze grotere berekende uitspoeling heeft een aantal oorzaken. De belangrijkste oorzaak is dat bij de eerdere berekeningen gronden met GT=6 en GT=7 liefst 76% van het totale oppervlak voor hun rekening namen. In de huidige berekeningen is dit maar 47%. Omdat uitspoeling het grootst is bij gronden met een hoge grondwaterstand (lage GT) is in de eerdere berekeningen een veel lagere uitspoeling berekend. Verder is in gronden met hoge grondwaterstanden (lage GT klasse) de bijdrage van de bovengrond belangrijker in termen van de *concentratie*. Aangezien de gehalten in zowel de vaste fase als het bodemvocht hoger zijn dan in de ondergrond, neemt bij een hogere grondwaterstand niet alleen de hoeveelheid water toe die uitspoelt maar ook de gemiddelde concentratie in het uitspoelende water.

Verder wordt bij de eerdere berekeningen uitgegaan van gemiddelde bodemeigenschappen per STONE-eenheid. In de huidige berekeningen is de variatie in de bodemeigenschappen echter veel groter. Doordat het verband tussen bodemeigenschappen en concentraties niet lineair is, kan een grotere variatie in de bodemeigenschappen leiden tot een toename in de berekende concentraties en daarmee tot een toename van de berekende uitspoeling. Bijvoorbeeld: de toename van de concentratie bij een pH daling van 0,5 is groter dan de afname van de concentratie bij een pH stijging van 0,5.

Voor nikkel geldt ten slotte dat in de huidige berekeningen de schematisatie van de gehaltes niet afhankelijk is van de diepte, waardoor de gehaltes in de ondergrond hoger zijn in eerdere berekeningen. Deze hogere gehaltes leiden tot een hogere berekende uitspoeling.

## 4 Onzekerheidsanalyse

## 4.1 Inleiding

Bij de modelberekeningen van uitspoeling van zware metalen is gebruik gemaakt van een groot aantal vergelijkingen en invoerparameters. Deze vergelijkingen en invoerparameters hebben een bepaalde onzekerheid, waardoor ook de resultaten van de modelberekeningen een bepaalde onzekerheid hebben. Om een inschatting te kunnen maken van deze onzekerheid in de modelresultaten, moet eerst een overzicht worden verkregen van de gebruikte vergelijkingen en invoerparameters en de bijbehorende onzekerheden. Verder zullen sommige invoerparameters een correlatie vertonen (b.v. organisch stofgehalte en pH), waardoor ook de onzekerheden van deze parameters gecorreleerd zijn. Omdat het binnen dit project niet mogelijk is om de onzekerheid van alle vergelijkingen en parameters en de correlaties hiervan mee te nemen, is een selectie gemaakt van de belangrijkste onzekerheden in de invoer.

Eerst wordt een overzicht gegeven van alle mogelijke onzekerheden bij de berekening van de uitspoeling van zware metalen. Op basis van dit overzicht is een selectie gemaakt van onzekere parameters c.q. vergelijkingen. Vervolgens wordt ingegaan op de methode van de onzekerheidsanalyse.

## 4.2 Overzicht onzekerheden

Bij het schatten van de onzekerheid in de resultaten van de modelberekeningen moeten verschillende typen onzekerheden onderscheiden worden:

- 1. onzekerheid in de modelstructuur;
- 2. onzekerheid in de modelparameters;
- 3. onzekerheid in de invoergegevens.

#### ad 1. onzekerheid in de modelstructuur

Onzekerheid in de modelstructuur ontstaat doordat de gebruikte modelvergelijkingen geen correcte beschrijving van de werkelijkheid geven. Voor de uitspoelingsberekeningen zijn de volgende punten van belang:

- de gebruikte regressievergelijkingen zijn geen correcte beschrijving van de werkelijkheid (m.a.w. het model geeft geen perfecte weergave van de data waarop het is gebaseerd). De onzekerheid tengevolge hiervan komt tot uitdrukking in de restvariantie van de regressievergelijkingen (SE(Y) in de tabellen van hoofdstuk 2);
- de gebruikte regressievergelijkingen zijn afgeleid voor aërobe bodems. In anaërobe bodems, voornamelijk veengronden, kunnen de werkelijke metaalconcentraties vaak lager zijn dan de berekende concentraties door vorming van zeer slecht oplosbare metaalverbindingen;
- de gebruikte modellen en regressievergelijkingen zijn gebaseerd op niet-lineaire vergelijkingen. Hierdoor kan er een systematische afwijking ontstaan bij het gebruikmaken van gemiddelde waardes van invoerparameters. Alleen middeling in

de ruimte (bodemparameters en hydrologie) is hierbij van belang. Middeling in de tijd (hydrologie) speelt hierbij geen rol, doordat gebruik wordt gemaakt van de gemiddelde hydrologische fluxen per bodemlaag en niet van een gemiddeld hydrologische situatie, waardoor ook uitspoeling bij hogere en lagere grondwaterstanden dan gemiddeld wordt meegenomen.

#### ad 2. onzekerheid in de modelparameters

Voor de uitspoelingsberekeningen gaat het hierbij voornamelijk om de onzekerheid in de regressieparameters. Echter, door het grote aantal experimentele waarden waarmee de regressievergelijkingen zijn afgeleid, zijn deze onzekerheden in het algemeen klein ten opzichte van de restvariantie van de regressievergelijkingen.

#### ad 3. onzekerheid in de invoergegevens

De onzekerheid in invoergegevens is sterk afhankelijk van het oppervlak (de ruimtelijke *support*) en tijdsperiode (de temporele *support*) waarover de invoerparameters zijn gemiddeld. Bij de uitspoelingsberekeningen is een ruimtelijke support gehanteerd ter grootte van het oppervlak van de STONE-eenheid (25-21000 ha) In verticale richting is het bodemprofiel geschematiseerd in laagjes met een dikte van 5 cm. Voor de hydrologie is een temporele support van 30 jaar gebruikt. Voor de afzonderlijke invoerparameters geldt het volgende:

- bodemeigenschappen (OM, klei, pH, Fe/Al-ox): De bodemeigenschappen die zijn gebruikt in de modelberekeningen zijn gebaseerd op metingen van bodemeigenschappen en de onderscheiden bodemtypen die ten grondslag liggen aan de 1:50.000 Bodemkaart van Nederland. Door middeling over de oppervlakte binnen een STONE-eenheid wordt verwacht dat de onzekerheid in de getalswaarden van de bodemeigenschappen relatief gering is en dat de gebruikte waarden een goede schatting zijn van de gemiddelde waarde van de bodemeigenschappen per STONE-eenheid. Voor de ondergrond (>1 m -mv) is de waarde voor pH echter geschat op basis van pH in de bovengrond en klei- en organisch stofgehalte van de ondergrond. De onzekerheid van pH voor de ondergrond is daarom relatief groot. Omdat het grootste deel van de uitspoeling optreedt in de bovenste lagen (hier zijn de concentraties van zware metalen het hoogst) zal de invloed van deze onderzekerheid op de totale uitspoeling klein zijn.
- metaalgehalten van de bovengrond: De metaalgehalten die gebruikt zijn in de modelberekeningen zijn gemiddelde waarden op basis van een landelijk overzicht met metaalgehaltes in 500x500 m eenheden. Door middeling over het oppervlak binnen een STONE-eenheid wordt verwacht dat de onzekerheid in de gebruikte metaalgehaltes relatief gering is.
- hydrologie: De hydrologische invoerparameters zijn de fluxen per bodemlaag en het vochtgehalte van iedere bodemlaag. Een probleem bij bepaling van de onzekerheid in de uitspoeling ten gevolge van onzekerheid in de hydrologie, is dat de onzekerheid van de hydrologische fluxen voor de afzonderlijke bodemlaagjes niet gelijk is. Voor bodemlagen in de buurt van de gemiddelde grondwaterstand zal de onzekerheid groot zijn, voor lagen ver verwijderd van de gemiddelde grondwaterstand juist laag. Een fout in de gemiddelde grondwaterstand leidt tot een grote afwijking van de hydrologische fluxen van bodemlaagjes ter hoogte van deze grondwaterstand. Een praktisch aantrekkelijke manier om rekening te

houden met variabele onzekerheid in hydrologische invoerparameters is uit te gaan van de onzekerheid in de gemiddelde grondwaterstand over 30 jaar en hieruit een onzekerheid in de fluxen af te leiden. Correlaties tussen fluxen van verschillende lagen worden op deze wijze automatisch meegenomen.

• De toevallige afwijking tussen de gemodelleerde grondwaterstand en de gemeten gemiddelde grondwaterstand voor een STONE-eenheid bedraagt ca. 30 cm, waarbij ook afwijkingen tussen daadwerkelijke en gemodelleerde waarden tot 1 meter zijn waargenomen (mond. J. Kroes, Alterra). Een systematische afwijking tussen gemodelleerde en gemeten waarden is niet waargenomen.

Correlatie tussen bodemeigenschappen en tussen bodemeigenschappen en hydrologie zijn in de praktijk moeilijk vast te stellen en worden niet meegenomen in de onzekerheidsanalyse.

## 4.3 Methode onzekerheidsanalyse

In eerste instantie is gekozen om een onzekerheidsanalyse uit te voeren met alleen hydrologie als onzekere invoer. Hier is voor gekozen omdat verwacht wordt dat de onzekerheid van de hydrologische invoer de grootste invloed heeft op de berekende uitspoeling. Hydrologie is een belangrijke invoer van het uitspoelingsmodel en is daarnaast behept met een vrij grote onzekerheid. Zoals hierboven al aangegeven wordt de onzekerheid in de afzonderlijke hydrologische fluxen afgeleid uit de onzekerheid in de gemiddelde grondwaterstand per STONE-eenheid.

Binnen dit project is het niet mogelijk om voor alle 6405 STONE-eenheden een onzekerheidsanalyse uit te voeren. Er is voor gekozen de analyse uit te voeren voor een beperkt aantal representatieve plots met een verschillende bodemopbouw, waardoor een indicatie wordt verkregen van de onzekerheid voor alle 6405 eenheden.

De volgende zeven bodemtypes met bijbehorende plotnummers zijn geselecteerd:

- kalkrijke veengrond (plotnr. 593);
- kalkarme veengrond (plotnr. 487);
- kleigrond (plotnr. 166);
- natte kalkrijke zandgrond (plotnr. 3214);
- natte kalkarme zandgrond (plotnr. 1111);
- droge kalkrijke zandgrond (plotnr. 954);
- droge kalkarme zandgrond (plotnr 2931).

Een overzicht van de bodemeigenschappen, GT-klasse en gemiddelde grondwaterstand van deze geselecteerde plots is gegeven in Bijlage 1.

Zoals eerder vermeld bedraagt de toevallige afwijking tussen de gemodelleerde grondwaterstand in STONE en de werkelijke gemiddelde grondwaterstand voor een STONE-eenheid ca. 30 cm. Voor de onzekerheidsanalyse is dit vertaald naar een verdeling van de onzekerheid in de grondwaterstand waarbij de kans op een afwijking kleiner dan 30 cm van de gemodelleerde grondwaterstand 50% bedraagt. Dit komt

dan overeen met normale verdeling van de onzekerheid in de gemodelleerde gemiddelde grondwaterstand met een standaardafwijking van 42 cm. De kans op een grondwaterstand die meer dan 1 meter afwijkt van de gemiddelde gemodelleerde grondwaterstand is dan 1.2%. Deze systematiek is slechts een grove schatting van de onzekerheid en geeft daarmee uiteindelijk enkel een indicatie van de onzekerheid in de modelresultaten. Verder geldt dat bij de schatting van de onzekerheid in de grondwaterstand geen onderscheid is gemaakt tussen bodemtypen en landgebruikvormen. Bijvoorbeeld, het kan worden verwacht dat voor locaties met een sterk gereguleerd grondwaterniveau (polderpeil) de onzekerheid in de gemiddelde grondwaterstand kleiner zal zijn dan die in eenheden waar het grondwater niet gereguleerd wordt.

De berekeningen van hoe onzekerheid in de grondwaterstand doorwerkt naar onzekerheid in flux (en vervolgens naar uitspoeling van zware metalen) zijn uitgevoerd met de Monte-Carlo methode (Heuvelink, 1998). Hiertoe zijn 100 trekkingen uit de kansverdeling van de gemiddelde grondwaterstand gedaan; het aantal van 100 trekkingen is gekozen als een compromis tussen nauwkeurigheid en numerieke rekenlast. Bij elke getrokken gemiddelde grondwaterstand wordt de fluxen vanuit de afzonderlijke bodemlagen herverdeeld over de bodemlagen. Bijvoorbeeld, bij een 20 cm lagere grondwaterstand zullen de oorspronkelijke fluxen vanuit een bepaalde bodemlaag worden toegekend aan een bodemlaag die 20 cm lager in het profiel ligt. Door deze herverdeling worden correlaties tussen onzekerheid van fluxen in laag i en onzekerheid van fluxen in laag j automatisch meegenomen.

trekkingen met een lagere grondwaterstand dan de Voor gemiddelde grondwaterstand zijn er voor de laagjes bovenin het profiel geen hydrologische fluxen bekend. Bij de uitspoelings-berekeningen op basis van deze lagere grondwaterstand wordt er dan van uitgegaan dat in deze lagen geen laterale stroming plaatsvindt. De verticale stroming is voor al deze lagen gelijk. Bij een hogere grondwaterstand geldt hetzelfde, maar dan voor laagjes onderin het profiel. In beide gevallen is de invloed op de totale laterale flux gering, omdat laterale fluxen in de onverzadigde zone (d.w.z. boven in het profiel) nul zijn, en laterale fluxen onderin het profiel verwaarloosbaar klein zijn. Een uitzondering vormen STONE-eenheden met een grondwaterstand nabij maaiveldhoogte. Voor deze eenheden zal een verhoging van een grondwaterstand leiden tot een lagere totale laterale flux, omdat een gedeelte van het grondwater direct zal afstromen via het maaiveld. Bij de berekeningen van de metaalfluxen is daarom vooraf gecontroleerd of de totale hydrologische fluxen niet sterk afwijken van de oorspronkelijk berekende waarden.

De Monte-Carlo onzekerheidanalyse levert voor elk van de 100 trekkingen uit de kansverdeling van de gemiddelde grondwaterstand bijbehorende uitspoelingsfluxen en bijbehorende concentraties van zware metalen naar het oppervlaktewater op. Van deze 100 uitkomsten wordt het gemiddelde en de standaardafwijking berekend. Het gemiddelde is een maat voor de gemiddelde uitspoeling (welke kan afwijken van de uitspoeling zoals berekend bij de gemiddelde grondwaterstand), de standaardafwijking een maat voor de onzekerheid hierin. Voor een aantal zware metalen zijn frequentieverdelingen van concentraties en fluxen gemaakt.

De onzekerheidsanalyse zoals hierboven beschreven kan in principe worden uitgevoerd voor alle STONE-eenheden. Aggregatie van deze resultaten naar grotere of andere ruimtelijke eenheden (zoals afwateringseenheden) is echter niet mogelijk, omdat de correlaties tussen onzekerheden voor naburige STONE-eenheden niet zijn meegenomen in de analyse.

#### 4.4 Resultaten onzekerheidsanalyse

#### Hydrologische fluxen

In onderstaande tabel zijn voor de zeven geselecteerde eenheden de invloed van de onzekerheid in de grondwaterstand op de laterale fluxen weergegeven.

Tabel 4.1 Onzekerheidsanalyse voor laterale fluxen (in m/jr) voor zeven STONE-eenheden. Gemiddelde en standaardafwijking bij Monte-Carlo simulatie, waarde in oorspronkelijke modelberekening en verhouding tussen gemiddelde waarde en oorspronkelijke waarde.

| bodemtype           | plot nr. | gemiddelde | standaard<br>afwijking | model waarde | gemiddeld/<br>model |
|---------------------|----------|------------|------------------------|--------------|---------------------|
|                     |          | (m/jr)     | (m/jr)                 | (m/jr)       | (-)                 |
| kalkrijk veen       | 593      | 0,616      | 0,026                  | 0,642        | 0,96                |
| kalkarm veen        | 487      | 0,421      | 0,021                  | 0,434        | 0,97                |
| klei                | 166      | 0,399      | 0,013                  | 0,410        | 0,97                |
| nat kalkrijk zand   | 3214     | 0,488      | 0,014                  | 0,499        | 0,98                |
| nat kalkarm zand    | 1111     | 0,533      | 0,055                  | 0,575        | 0,93                |
| droog kalkrijk zand | 954      | 0,188      | 0,0015                 | 0,189        | 1,00                |
| droog kalkarm zand  | 2931     | 0,0687     | 0,0061                 | 0,0747       | 0,92                |

Voor plotnummers 487 (kalkarm veen) en 1111 (nat kalkarm zand) zijn in Figuur 4.1 de frequentieverdelingen van de resultaten van Monte-Carlo simulaties weergegeven.



Figuur 4.1 Frequentie-verdelingen van laterale fluxen naar het oppervlaktewater voor kalkarm veen en kalkarm zand; Monte-Carlo simulatie (punten) en oorspronkelijke modelwaarden (lijnen: stippellijn is zandgrond, doorgetrokken lijn is veengrond)

Uit Figuur 4.1 en Tabel 4.1 volgt dat variatie in de laterale fluxen ten gevolge van variatie in de grondwaterstand relatief gering is. De standaard afwijking is maximaal

10% van de gemiddelde waarde. Verder geldt dat voor de alle plots de gemiddelde laterale flux kleiner of gelijk is dan de oorspronkelijke modelwaarden. Zoals eerder opgemerkt wordt dit veroorzaakt doordat bij trekkingen van een hogere grondwaterstand een deel van het water oppervlakkig afstroomt en niet meer bijdraagt aan de laterale stroming. Zoals verwacht worden de grootste absolute afwijkingen tussen gemiddelde laterale flux en oorspronkelijke modelwaarden berekend voor natte gronden. In relatieve zin kan de afwijking voor droge gronden wel groter zijn dan voor natte gronden. De afwijkingen tussen kalkrijke en kalkarme gronden berusten louter op verschillen in hydrologie tussen de geselecteerde eenheden.

De gemiddelde laterale flux is echter niet meer dan 8% lager dan de oorspronkelijke waarde. De invloed van deze afwijking in de waterbalans op de berekende uitspoeling is dan ook klein.

#### Metaaluitspoeling en metaalconcentraties

In onderstaande tabel zijn de gemiddelde concentraties en fluxen van zware metalen voor laterale uitspoeling, met bijbehorende standaardafwijkingen, weergegeven voor de Monte-Carlo simulatie van variatie in de grondwaterstand.

Tabel 4.2 Onzekerheidsanalyse van concentraties (in  $\mu g/l$ ) en fluxen (in  $mg/m^2/jr$ ) van zware metalen in lateraal uitspoelend grondwater voor zeven STONE-eenheden. Gemiddelden en standaardafwijkingen bij Monte-Carlo simulatie van grondwaterstand.

| bodemtype           | plot nr. | Cd                  | Cu              | Ni                | Pb              | Zn              |
|---------------------|----------|---------------------|-----------------|-------------------|-----------------|-----------------|
|                     |          |                     | gem. conc       | entraties ± st.d  | ev (µg/l)       |                 |
| kalkrijk veen       | 593      | $0.15 \pm 0.07$     | $4.7 \pm 3.0$   | $7.2 \pm 2.2$     | $4.2 \pm 0.9$   | $51 \pm 21$     |
| kalkarm veen        | 487      | $4.4 \pm 1.4$       | $9.0 \pm 5.3$   | $76.2 \pm 2.4$    | $26.2 \pm 9.2$  | $5417 \pm 1421$ |
| klei                | 166      | $0.0014 \pm 0.0004$ | $0.77 \pm 0.34$ | $1.17 \pm 0.15$   | $0.75\pm0.18$   | $0.53 \pm 0.11$ |
| nat kalkrijk zand   | 3214     | $0.006 \pm 0.003$   | $0.93\pm0.57$   | $1.67 \pm 0.24$   | $1.61\pm0.70$   | $2.1 \pm 0.7$   |
| nat kalkarm zand    | 1111     | $1.0 \pm 0.8$       | $9.7 \pm 7.2$   | $5.2 \pm 1.1$     | $17.2 \pm 8.8$  | $263 \pm 169$   |
| droog kalkrijk zand | 954      | $0.015 \pm 0.013$   | $0.60\pm0.67$   | $1.39 \pm 0.34$   | $1.51\pm0.90$   | $2.1 \pm 1.2$   |
| droog kalkarm zand  | 2931     | $1.4 \pm 1.0$       | $17.7 \pm 12.8$ | $5.17\pm0.59$     | $11.0\pm4.2$    | $210\pm122$     |
|                     |          |                     | gem. fluxe      | en ± st.dev (mg   | $(/m^2/jr)$     |                 |
| kalkrijk veen       | 593      | $0.044 \pm 0.013$   | $1.10 \pm 0.54$ | $4.39 \pm 0.35$   | $2.60 \pm 0.50$ | $31 \pm 12$     |
| kalkarm veen        | 487      | $1.86 \pm 0.50$     | $3.8 \pm 2.0$   | $32.8 \pm 2.4$    | $11.1 \pm 3.3$  | $2312 \pm 494$  |
| klei                | 166      | $0.0005 \pm 0.0001$ | $0.29 \pm 0.12$ | $0.468 \pm 0.046$ | $0.30 \pm 0.07$ | $0.21 \pm 0.04$ |
| nat kalkrijk zand   | 3214     | $0.0030 \pm 0.0015$ | $0.44 \pm 0.26$ | $0.813\pm0.096$   | $0.78 \pm 0.32$ | $1.02 \pm 0.31$ |
| nat kalkarm zand    | 1111     | $0.43 \pm 0.30$     | $4.1 \pm 2.8$   | $2.74\pm0.54$     | $8.9 \pm 4.2$   | $134 \pm 81$    |
| droog kalkrijk zand | 954      | $0.0026 \pm 0.0022$ | $0.11\pm0.11$   | $0.262\pm0.064$   | $0.29\pm0.17$   | $0.39 \pm 0.23$ |
| droog kalkarm zand  | 2931     | $0.038\pm0.024$     | $0.46 \pm 0.30$ | $0.354\pm0.051$   | $0.75\pm0.29$   | $14.2\pm8.1$    |

Uit Tabel 4.2 volgt dat variatie in metaal-fluxen en metaalconcentraties in uitspoelend grondwater, tengevolge van variatie in de grondwaterstand, veel groter is dan de variatie in de hydrologie (Tabel 4.1). Dit wordt veroorzaakt doordat bij een veranderende grondwaterstand het neerslagoverschot, en daarmee ook de hydrologische fluxen, nagenoeg gelijk blijven. Laterale uitspoeling van zware metalen vindt bij een andere grondwaterstand echter plaats uit andere bodemlagen waarin de gehaltes en concentraties van deze zware metalen ook anders zijn. Dit leidt dan tot een grote variatie in de concentratie en fluxen van zware metalen in het lateraal uitspoelende grondwater. Verder volgt uit Tabel 4.2 dat de onzekerheid in de flux van uitspoelende zware metalen voor zandgronden veel groter is dan voor veengronden. Dit wordt veroorzaakt door de grotere afhankelijkheid van de bodemeigenschappen als functie van de diepte bij zandgronden in vergelijking met veengronden. In zandgronden neemt het organisch stofgehalte sterk af -en pH toemet toenemende diepte, terwijl dit voor veengronden nauwelijks het geval is. Uitspoeling bij een veranderende grondwaterstand leidt bij zandgronden dan ook tot uitspoeling uit bodemlagen met andere bodemeigenschappen.

Dit wordt nogmaals geïllustreerd in onderstaande figuren, waar frequentieverdelingen van de concentraties en fluxen van koper en zink zijn weergegeven voor een kalkarme veengrond en een kalkarme natte zandgrond (in principe de twee meest uitspoelinggevoelige gronden).

100%

veengrond



90% 80% (kalkarm) 70% 60% 50% percentage 40% 30% 20% 10% 0% 0.01 0.1 10 Zn-conc (mg/l)

Figuur 4.2 Frequentie-verdelingen van zinkfluxen naar het oppervlaktewater; Monte-Carlo simulatie (punten) en oorspronkelijke modelresultaten (lijnen: stippellijn is zandgrond, doorgetrokken lijn is veengrond)



Figuur 4.3 Frequentie-verdelingen van zinkconcentraties in lateraal uitspoelend grondwater; Monte-Carlo simulatie (punten) en oorspronkelijke modelresultaten (lijnen: stippellijn is zandgrond, doorgetrokken lijn is veengrond) 100%



oorspronkelijke modelresultaten (lijnen: stippellijn is zandgrond, doorgetrokken lijn is veengrond)

Figuur 4.4 Frequentie-verdelingen van koperfluxen naar Figuur 4.5 Frequentie-verdelingen van koperconcentraties het oppervlaktewater; Monte-Carlo simulatie (punten) en in lateraal uitspoelend grondwater; Monte-Carlo simulatie (punten) en oorspronkelijke modelresultaten (lijnen: stippellijn is zandgrond, doorgetrokken lijn is veengrond)

Tabel 4.2 en bovenstaande figuren laten zien dat de onzekerheid van de uitspoeling voor een individuele STONE-eenheid erg groot kan zijn (verschillen tussen de hoogste en laagste waarde tot een factor 100). Voor een schatting van de totale uitspoeling op nationale schaal zal de onzekerheid mogelijk kleiner zijn ten gevolge van middeling van de uitspoeling. Van belang is wel een mogelijke systematische afwijking van de gemiddelde waarde van de Monte-Carlo simulaties ten opzichte van de oorspronkelijke modelwaardes. In Tabel 4.3 is voor de zeven geselecteerde STONE-eenheden de verhouding weergegeven tussen de oorspronkelijke modelwaardes van de concentraties van zware metalen en de gemiddelde waarde van Monte-Carlo simulaties.

Deze tabel geeft aan of een de onzekerheid in de hydrologie leidt tot een mogelijke onder- of overschatting van de modelberekeningen. Een waarde in de tabel groter dan 1 wijst op een mogelijke overschatting door het model en kleiner dan 1 op een mogelijk onderschatting door het model.

Tabel 4.3 Onzekerheidsanalyse van concentraties van zware metalen in lateraal uitspoelend grondwater voor zeven STONE-eenheden. Verhouding tussen oorspronkelijke modelwaardes en gemiddelde waardes van Monte-Carlo simulatie.

| bodemtype           | plot nr. | nr concentraties (model waarde / gemiddelde waarde) |      |      |      |      |  |
|---------------------|----------|---|------|------|------|------|--|
|                     |          | Cd  | Cu   | Ni   | Pb   | Zn   |  |
| kalkrijk veen       | 593      | 1,10  | 1,10 | 1,07 | 1,05 | 1,09 |  |
| kalkarm veen        | 487      | 1,01  | 1,03 | 0,98 | 1,00 | 1,00 |  |
| klei                | 166      | 1,18  | 1,28 | 1,00 | 1,11 | 1,12 |  |
| nat kalkrijk zand   | 3214     | 1,08  | 1,16 | 1,01 | 1,08 | 1,05 |  |
| nat kalkarm zand    | 1111     | 0,75  | 0,78 | 1,07 | 0,95 | 0,85 |  |
| droog kalkrijk zand | 954      | 0,63  | 0,55 | 0,88 | 0,72 | 0,74 |  |
| droog kalkarm zand  | 2931     | 0,93  | 0,91 | 1,08 | 1,09 | 1,01 |  |

Uit bovenstaande tabel volgt dat voor de meeste plots en de meeste metalen de afwijking tussen de gemiddelde waarde van de Monte-Carlo simulaties en de modelwaarde relatief gering is (< 10 %). Een uitzondering vormen cadmium, koper en zink in nat kalkarm zand en droog kalkrijk zand. Hierbij is de gemiddelde berekende concentratie van de onzekerheidsanalyse beduidend groter dan de oorspronkelijk modelwaarde. Op landelijke schaal betekent dit dat de daadwerkelijke uitspoeling voor deze gronden en metalen mogelijk groter is dan wat volgt uit de oorspronkelijke modelberekeningen. Voor kleigronden geldt het tegenovergestelde. De gemiddelde concentraties (in het bijzonder van cadmium, koper en zink) zijn hierbij beduidend lager dan de oorspronkelijke modelwaarden, waardoor de daadwerkelijke uitspoeling hier mogelijk lager is dan de oorspronkelijke modelberekeningen aangeven.

## 5 Validatie modelberekeningen

#### 5.1 Validatie modelsystematiek

De uitspoelingsberekeningen zijn uitgevoerd met hydrologische gegevens zoals deze zijn berekend voor het STONE 2.0-model. Het STONE model is ontwikkeld om de uitspoeling van nutriënten naar grond- en oppervlaktewater landsdekkend te kunnen berekenen. Uitgebreide validatie van verschillende aspecten van het STONE-model zijn binnen het STONE-project reeds uitgevoerd. Voor de uitspoelingsberekeningen zijn hierbij twee onderdelen van deze reeds eerder uitgevoerde validatie van belang:

- 1. een onderzoek naar het minimum schaalniveau waarop de STONE-hydrologie geldig is. In principe is dit dan ook het minimum schaalniveau waarop uitspoelingsberekeningen voor reactieve stoffen als metalen geldig zijn;
- 2. een vergelijking van modelresultaten met meetgegevens van nutriëntenuitspoeling. Hierbij zijn vooral de resultaten voor fosfaat van belang, omdat fosfaat, evenals zware metalen, niet afgebroken wordt in de bodem en sterke sorptie vertoont aan bodembestanddelen.

#### ad 1.

Uit onderzoek naar het schaalniveau waarop de hydrologie van STONE geldig is (Kroes, 2002), is gekeken naar berekende waarden van de gemiddelde (hoogste) grondwaterstand en de gemiddelde waterafvoer in vergelijking met meetwaarden voor verschillende schaalniveaus. Uit deze vergelijking volgt dat modelresultaten alleen mogen worden toegepast voor een ruimtelijke schaal groter dan 25 km<sup>2</sup>. Dit betekent dat de modelresultaten niet direct mogen worden toegepast op het niveau van een individuele STONE-eenheid; de mediane grootte van een STONE-eenheid bedraagt slechts 2,9 km<sup>2</sup>. Opschaling van de resultaten naar grotere eenheden is dus noodzakelijk. Opschaling van de modelresultaten naar een indeling in afwaterings-eenheden is een stap in de goede richting. Echter, de berekeningsresultaten op het niveau van afwateringseenheden moeten nog steeds met de nodige voorzichtigheid worden bekeken, aangezien de mediane grootte van een afwateringseenheid 8,9 km<sup>2</sup> bedraagt.

#### ad 2.

Omdat fosfaat qua gedrag in de bodem sterke overeenkomsten vertoont met zware metalen, kunnen modelresultaten voor fosfaat een aanwijzing geven voor de kwaliteit van de modelberekeningen voor zware metalen.

Zowel op stroomgebiedniveau als op landelijk niveau zijn de modelresultaten voor de uitspoeling van fosfaat vergeleken met meetwaarden (Tiktak, 2003). Op stroomgebiedniveau zijn de gemiddelde berekende fosfaatconcentraties voor de periode 1991-2000 vergeleken met meetwaarden voor vier stroomgebieden. Uit deze vergelijking volgde dat de gemeten concentraties een factor 1,2 tot 3 lager zijn dan de meetresultaten. Dit verschil wordt toegekend aan retentie van fosfaat in oeverzones en kleinere oppervlaktewateren. Voor sommige stroomgebieden is er mogelijk sprake van gebiedsvreemd water. Op landelijk niveau is een vergelijking gemaakt tussen berekende waarden en meetwaarden van de gemiddelde fosfaatconcentraties per landschapsregio (rivierengebied, laagveengebied, etc.). De meetwaarden zijn afkomstig van 219 locaties in gebieden die voor het overgrote deel door landbouw zijn beïnvloed (bron: CIW). De berekende concentraties zijn gemiddeld iets hoger dan de gemeten waarden, maar komen in het algemeen redelijk overeen met de gemeten waarden.

## 5.2 Berekende uitspoeling in vergelijking met aanvoer van zware metalen

In Tabel 5.1 is de jaarlijkse immissie van zware metalen naar de bodem weergegeven. Hierbij is bij de berekening van de netto belasting rekening gehouden met aanvoer via mest, kunstmest, atmosferische depositie (en enkele kleinere bronnen) en afvoer met het gewas.

Deze gegevens laten zien dat op basis van de in dit rapport berekende uitspoeling accumulatie van koper en lood optreedt. Optreedt. Voor koper, nikkel en lood is de belasting gedurende de laatste jaren sterk afgenomen (voor meer detail: www.cbs.nl), waarbij vooral voor nikkel en in mindere mate voor cadmium en zink de huidige belasting van de bodem is gedaald tot rond of beneden de berekende uitspoeling.

| metaal  | jaar    | mest minus  | overige   | atmosferische | e. totale netto | uitspoeling   |
|---------|---------|-------------|-----------|---------------|-----------------|---------------|
|         | ,       | afvoer door | bronnen1) | depositie     | belasting       | (deze studie) |
|         |         | gewas       |           | L             | 0               | · · · ·       |
| cadmium | 1990    | 5           | <1        | 1             | 6               |               |
|         | 1995    | 2           | <1        | 1             | 3               |               |
|         | 2002 2) | 1           | <1        | 1             | 2               | 1,6           |
| koper   | 1990    | 740         | 50        | 50            | 840             |               |
| -       | 1995    | 640         | 30        | 20            | 690             |               |
|         | 2002 2) | 390         | 15        | 20            | 425             | 24            |
| nikkel  | 1990    | 3           | 8         | 84            | 122             |               |
|         | 1995    | 4           | 0         | 96            | 136             |               |
|         | 2000 2) | 48          | 4         | 30            | 82              | 110           |
| lood    | 1990    | 20          | 50        | 335           | 595             |               |
|         | 1995    | 10          | )9        | 159           | 268             |               |
|         | 2000 2) | 7           | 50        | 18            | 75              | 39            |
| zink    | 1990    | 1200        | 200       | 180           | 1580            |               |
|         | 1995    | 1340        | 100       | 100           | 1540            |               |
|         | 2002 2) | 770         | 110       | 80            | 960             | 1187          |

 Tabel 5.1
 Belasting van de landbouwgrond door zware metalen (in 1000 kg/jr).

<sup>1)</sup> overige organische meststoffen, zuiveringsslib, bestrijdingsmiddelen, jacht

bronnen: Emissies naar de bodem, 1990-2001. In: Milieu- en Natuurcompendium, RIVM-MNP, CBS en Stichting DLO, <a href="http://www.rivm.nl">http://www.rivm.nl</a>, 1 november 2002.

<sup>2)</sup> Cijfers voor 2000/2002 op basis van nieuwe berekeningsmethode (bron: Delahaye et al., 2003).

Het zware metaalgehalte dat diende als basis voor de berekeningen is echter voornamelijk bepaald door de historische belasting van de bodem. De verhoudingen tussen de verschillende historische bronnen die ten grondslag liggen aan de verhoogde gehaltes in de bodem zal voor veel locatie daarom anders zijn dan weergegeven is in Tabel 5.1. Bijvoorbeeld in de Kempen zijn de verhoogde gehaltes vooral bepaald door atmosferische depositie van zinkfabrieken en in het centraal veenweidegebied is er sprake van toemaakdekken met stedelijk afval.

#### 5.3 Vergelijking berekende en gemeten concentraties

Voor de validatie van de uitspoelingsberekeningen zijn de gemodelleerde concentraties zware metalen in de het lateraal uitspoelende water vergeleken met meetwaarden van concentraties in het oppervlaktewater. De meetresultaten zijn afkomstig uit de CIW-enquete. De gegevens in deze database zijn verzameld en aangeleverd door de verschillende waterbeheerders. Voor de zware metalen zijn in deze database de meetresultaten van 1558 meetpunten opgenomen, die in de periode 1985 t/m 2002 een of meerdere keren zijn bemonsterd. Om tot een vergelijking tussen gemeten en berekende waarden te komen, zijn de gemeten concentraties per monsterpunt gemiddeld in de tijd en gemiddeld per STONE- of afwateringseenheid. Bij het berekenen van gemiddelde waarden zijn ook meetresulaten meegenomen, waarbij is aangegeven dat er sprake is van een onder- of overschrijding van de waarneembaarheidsgrens. In totaal zijn voor 642 STONE-eenheden en 601 afwateringseenheden meetgegevens beschikbaar.

In onderstaande figuren zijn de berekende concentraties in het lateraal uitspoelende grondwater uitgezet tegen de gemiddelde gemeten concentraties in het oppervlaktewater.

Bij deze vergelijking tussen gemeten en berekende concentraties moeten een aantal kanttekeningen worden geplaatst. Voor een aantal oppervlaktewateren, vooral de grote oppervlaktewateren, zal de kwaliteit in belangrijke mate beïnvloed worden door instroom van gebiedsvreemd water. Deze instroom van gebiedsvreemd water kan leiden tot zowel een betere als een slechter waterkwaliteit (dwz lagere of hogere concentraties van metalen), afhankelijk van de concentraties in het instromende water. Voor de vergelijking was het echter niet mogelijk om onderscheid te maken tussen wateren met voornamelijk gebiedseigen en voornamelijk gebiedsvreemd water. Voor een aantal meetpunten zal er daarom nauwelijks een relatie zijn met de berekende uitspoeling. Verder zal het oppervlaktewater ook worden belast door andere bronnen dan uitspoeling, zoals lozingen, riooloverstorten, RWZI's. Deze extra belasting kan leiden tot een verhoging van de concentraties van zware metalen in het oppervlaktewater.

#### Gemeten concentraties per STONE-eenheid:

In onderstaande figuren zijn de berekende concentraties in het lateraal uitspoelende grondwater per STONE-eenheid uitgezet tegen de gemiddelde gemeten concentraties in het oppervlaktewater. Hierbij is onderscheid gemaakt tussen de bodemtypen zand, klei en veen.





Figuur 5.1 Gemeten versus berekende concentraties per STONE-eenheid van cadmium in het oppervlaktewater (in µg/l)



Figuur 5.3 Gemeten versus berekende concentraties per STONE-eenheid van nikkel in het oppervlaktewater (in STONE-eenheid van lood in het oppervlaktewater (in µg/l)

Figuur 5.2 Gemeten versus berekende concentraties per STONE-eenheid van koper in het oppervlaktewater (in µg/ l)



Figuur 5.4 Gemeten versus berekende concentraties per  $\mu g/l$ 



Figuur 5.5 Gemeten versus berekende concentraties per STONE-eenheid van zink in het oppervlaktewater (in  $\mu g/l$ )

In Tabel 5.2 is de gemiddelde afwijking van berekende concentraties in het lateraal uitspoelende grondwater ten opzichte van de meetwaarden in het oppervlaktewater weergegeven.

Tabel 5.2 Gemiddelde afwijking berekende concentraties ten opzichte van gemeten concentraties (geometrisch gemiddelde van berekend/gemeten; waarde =1 betekent: geen afwijking)

| 0          | 0    |      | 0    |      |       |
|------------|------|------|------|------|-------|
|            | Cd   | Cu   | Ni   | Pb   | Zn    |
| zand       | 0,41 | 0,34 | 0,67 | 1,27 | 1,26  |
| klei       | 0,13 | 0,44 | 1,39 | 0,67 | 0,79  |
| veen       | 1,29 | 1,97 | 4,37 | 2,42 | 11,87 |
| alle plots | 0,33 | 0,60 | 1,44 | 1,14 | 1,88  |

Figuren 5.1-5.5 en Tabel 5.2 laten zien dat bij zandgrond de berekende concentraties gemiddeld redelijk overeenkomen met de meetgegevens. Voor cadmium, koper en nikkel vindt een onderschatting plaats, voor lood en zink worden de concentraties gemiddeld iets overschat. Bij kleigrond wordt voor alle metalen, met uitzondering van nikkel, gemiddeld een lagere concentratie berekend dan gemeten. De onzekerheidsanalyse (zie tabel 4.3) laat reeds zien dat op basis van de huidige berekeningen de uitspoeling voor deze metalen mogelijk wordt onderschat. Daarnaast zullen de daadwerkelijke concentraties in het oppervlaktewater hoger zijn door belasting vanuit andere bronnen dan uitspoeling.

Voor veengronden worden voor alle metalen de concentraties overschat. Anaërobe omstandigheden welke vooral voorkomen bij veengronden zijn een mogelijke oorzaak van de te hoge concentraties bij deze veengronden. Onder anaërobe condities kunnen zware metalen worden vastgelegd in de vorm van zeer slecht oplosbare sulfiden, met als gevolg zeer lage concentraties in het bodemvocht en daarmee ook lage concentraties in het uitspoelende grondwater. Voor de meest mobiele metalen, m.n. zink, zal dit het effect het grootst zijn.

Deze hoge berekende concentraties betekent ook dat voor veengronden de vrachten waarschijnlijk worden overschat.

In Tabel 5.3 is de standaard deviatie van de afwijking tussen berekende en gemeten concentraties weergegeven. Dit is een maat voor de onzekerheid in de concentraties ten gevolge van onzekerheid in model en modelparameters (zie ook hoofdstuk 4).

| (sumaana acriate van berokena zemeten, waarde -1 betokent, gen spretang) |     |     |     |     |     |  |  |  |  |
|--|-----|-----|-----|-----|-----|--|--|--|--|
|  | Cd  | Cu  | Ni  | Pb  | Zn  |  |  |  |  |
| zand   | 3,3 | 3,3 | 3,1 | 4,0 | 3,5 |  |  |  |  |
| klei   | 5,5 | 2,4 | 4,6 | 3,4 | 8,2 |  |  |  |  |
| veen   | 4,8 | 3,1 | 2,6 | 3,2 | 5,0 |  |  |  |  |
| alle plots   | 5,9 | 3,4 | 4,0 | 3,9 | 8,1 |  |  |  |  |

Tabel 5.3 Spreiding van afwijking tussen berekende concentraties ten opzichte van gemeten concentraties (standaard deviatie van berekend÷gemeten; waarde =1 betekent: geen spreiding)

In hoofdstuk 4 is al aangegeven dat spreiding in de modelresultaten grotendeels veroorzaakt wordt door onzekerheid in de hydrologische fluxen. De grootte van de spreiding in de concentraties zoals weergegeven in Tabel 5.3 komt overeen met de grootte van de spreiding van de concentraties zoals weergegeven in Figuren 4.2-4.5.

#### Gemeten concentraties per afwateringseenheid:

In onderstaande figuren zijn de berekende concentraties in het lateraal uitspoelende grondwater per afwateringseenheid uitgezet tegen de gemiddelde gemeten concentraties in het oppervlaktewater. Voor afwateringseenheden kan geen onderscheid worden gemaakt in verschillende bodemtypen.





Figuur 5.6 Gemeten versus berekende concentraties per afwateringseenheid van cadmium in het oppervlaktewater (in  $\mu g/l$ )

Figuur 5.7 Gemeten versus berekende concentraties per afwateringseenheid van koper in het oppervlaktewater (in  $\mu g/l$ )





Figuur 5.8 Gemeten versus berekende concentraties per afwateringseenheid van nikkel in het oppervlaktewater (in  $\mu g/l$ )



afwateringseenheid van lood in het oppervlaktewater (in  $\mu$ g/l)

Figuur 5.9 Gemeten versus berekende concentraties per

Figuur 5.10 Gemeten versus berekende concentraties per afwateringseenheid van zink in het oppervlaktewater (in  $\mu g/l$ )

Bovenstaande figuren laten zien dat spreiding in de berekende concentraties kleiner is in geval van afwateringseenheden dan bij STONE-eenheden. Deze kleinere spreiding wordt veroorzaakt door aggregatie van STONE-eenheden tot grotere afwateringseenheden, waardoor er middeling (en dus een afvlakking van hoge en lage waarden) van de resultaten van de modelberekeningen optreedt.

#### 6 Conclusies

#### Modelberekeningen

Op basis van modelberekeningen van de uitspoeling van de zware metalen cadmium, koper, nikkel en lood wordt voorspeld dat voor veel gebieden in Nederland de concentraties in het uitspoelende grondwater de MTR-waarde voor oppervlaktewater overschrijden. De grootste overschrijdingen zijn berekend voor veengebieden, waarbij concentraties tussen 3 en 30 maal MTR worden berekend. Voor nikkel worden ook in kleigebieden grote overschrijdingen berekend. Modelberekeningen voor de uitspoeling van zink laten zien dat voor vrijwel geheel Nederland de MTRwaarde worden overschreden. Voor veen- en kleigebieden worden soms overschrijdingen van meer dan 100 maal MTR berekend.

#### Onzekerheidsanalyse

Teneinde een inschatting te kunnen maken van de betrouwbaarheid van modelresultaten is een onzekerheidsanalyse uitgevoerd. Deze analyse toonde aan dat onzekerheid in de hydrologie (grondwaterstand) kan leiden tot een grote onzekerheid in de resultaten van de modelberekeningen voor een individuele STONE-eenheid. Op landelijke schaal wordt er geen grote systematische fout in de resultaten op basis van onzekerheid in de hydrologie voorspeld.

Ook uit eerder onderzoek is gebleken dat de onzekerheid van berekeningen op het niveau van STONE-eenheden en van afwateringseenheden erg groot is. De modelresultaten kunnen alleen met de nodige voorzichtigheid worden toegepast op de gehanteerde ruimtelijke schaalniveaus. De onzekerheid in de modelresultaten kan worden verminderd door opschaling naar een groter schaalniveau (bijvoorbeeld (deel)stroomgebieden).

#### Vergelijking modelberekeningen en meetwaarden

Vergelijking van modelresultaten met meetwaarden van metaalconcentraties in oppervlaktewater laat zien dat op landelijke schaal de uitspoeling uit zand- en kleigronden voor bijna alle metalen redelijk wordt voorspeld. De gemiddelde relatieve afwijking tussen gemeten en berekende concentraties is kleiner dan twee. Bij kleigronden is voor de meeste metalen de berekende concentratie gemiddeld lager dan de gemeten concentratie. Een mogelijke oorzaak is de belasting van het oppervlaktewater door ander bronnen dan uitspoeling.

Voor veengronden zijn de berekende concentraties in het lateraal uitspoelende bodemwater echter hoger dan de gemeten concentraties in oppervlaktewater. De grootste afwijkingen worden hier gevonden voor zink en nikkel. Dit wordt mogelijk veroorzaakt door anaërobe vastlegging van de metalen in de bodem, waardoor concentraties in het bodemvocht, en daarmee in het uitspoelende grondwater, sterk afnemen. De gebruikte modellen zijn afgeleid voor aërobe gronden en daarom mogelijk niet toepasbaar voor anaërobe bodems. Zowel eenvoudig toepasbare modellen voor het gedrag van metalen in anaërobe bodems als landsdekkende gegevens over de redox-toestand van bodems in Nederland zijn niet of nauwelijks beschikbaar. In een parallel lopend onderzoek worden door Alterra veldmetingen verricht naar gedrag en uitspoeling van zware metalen in veengronden. De resultaten van dit veldonderzoek geven mogelijk meer inzicht in de in dit modelonderzoek geconstateerde afwijkingen (resultaten beschikbaar eind 2004).

## Literatuur

Bonten, L.T.C., R.P.J.J. Rietra & P.F.A.M. Römkens, 2003. Zware metalen in het bovenste grondwater onder landbouwgronden op zand. H2O, 23, 30-32.

Brus, D.J., J.J. de Gruijter, D.J. Walvoort, F. de Vries, P.F.A.M. Römkens & W. de Vries, 2002. Landelijke kaarten van de kans op overschrijding van kritieke zware metaalgehaltes in de bodem van Nederland. Wageningen, ALTERRA. Rapport 124.

Delahaye, R., P.K.N. Fong, M.M. van Eerdt, K.W. van der Hoek & C.S.M. Olsthoorn, 2003. *Emissie van zeven zware metalen naar landbouwgrond*. Voorburg, Centraal Bureau voor de Statistiek.

Heuvelink, G.B.M., 1998. Error Propagation in Environmental Modelling with GIS. London, Taylor & Francis.

Kroes, J.G., P.J.T. van Bakel, J. Huygen & T. Kroon, 2001, *Actualisatie van de hydrologie voor STONE 2.0.* Wageningen, ALTERRA. Rapport 298.

Kroes, J.G., P.J.T. van Bakel, J. Huygen, H.Th.L. Massop & R. Pastoors, 2002, *Regional validation of a nation wide application of a comprehensive 1D hydrological model.* proc. 5th Intern. Symp. on Spatial Accuracy Assessment, eds. G.J. Hunter and K. Lowell, Melbourne, 83-93.

Römkens, P.F.A.M., L.T.C. Bonten, R.P.J.J. Rietra, J.E. Groenenberg, A.C.C. Plette, & J. Bril, 2003a, *Uitspoeling van zware metalen uit landbouwgronden*. Wageningen, ALTERRA. Rapport 791, Lelystad, RIZA. Rapport 2003.018.

Römkens, P.F.A.M., L.T.C. Bonten, R.P.J.J. Rietra & J. Bril, 2003b, Uitspoeling van zware metalen uit landbouwgronden. Validatie van modelberekeningen. Wageningen, ALTERRA. intern rapport.

Römkens, P.F.A.M., J.E. Groenenberg, L.T.C. Bonten, W. de Vries & J. Bril, 2004, *Derivation of partition relationships to calculate Cd, Cu, Ni, Pb and Zn solubility and activity in soil solution samples.* Wageningen, ALTERRA. Report 305.

Tiktak, A., A.H.W. Beusen, L.J.M. Boumans, P. Groenendijk, B.J. de Haan, R. Portielje, C.G.J. Scholten & J. Wolf, 2003. *Toets van STONE versie 2.0; Samenvatting en belangrijkste resultaten*. Bilthoven, RIVM. Rapport 718201007.

# Bijlage 1 Overzicht eigenschappen geselecteerde plots voor onzekerheidsanalyse

## STONE-eenheid 593

gemiddeld grondwaterstand: 0,39 cm -mv

| GT-klasse: |      |      | 2     |          |     |             |
|------------|------|------|-------|----------|-----|-------------|
| van        | tot  | OM   | klei  | Fe_ox    | pН  | bulkgewicht |
| (cm)       | (cm) | (%)  | (%)   | (meq/kg) |     | (kg/l)      |
| 0          | 5    | 34,8 | 4,76  | 284,9    | 5,3 | 0,56        |
| 5          | 15   | 34,8 | 4,76  | 259,8    | 5,2 | 0,56        |
| 15         | 20   | 49,8 | 4,217 | 167,9    | 5,4 | 0,512       |
| 20         | 25   | 49,8 | 4,719 | 190,6    | 5,5 | 0,512       |
| 25         | 35   | 53,3 | 2,055 | 162      | 5,5 | 0,242       |
| 35         | 50   | 42,8 | 2,288 | 179,3    | 5,7 | 0,257       |
| 50         | 60   | 81,3 | 0,748 | 211      | 6,2 | 0,209       |
| 60         | 75   | 38,2 | 2,472 | 122      | 6   | 0,264       |
| 75         | 100  | 34,4 | 2,362 | 60,1     | 5,5 | 0,229       |
| 100        | 200  | 0,09 | 9,991 | 141      | 5,5 | 1,7         |
| 200        | 400  | 0,1  | 1,998 | 127      | 5,5 | 1,7         |
| 400        | 500  | 0,1  | 0,899 | 134      | 5,5 | 1,7         |

# STONE-eenheid 487

| gemidd | leld grondv | vaterstand: | 0,35 cm - | -mv      |     |             |  |  |
|--------|-------------|-------------|-----------|----------|-----|-------------|--|--|
| GT-kla | sse:        |             | 1         | 1        |     |             |  |  |
| van    | tot         | OM          | klei      | Fe_ox    | pН  | bulkgewicht |  |  |
| (cm)   | (cm)        | (%)         | (%)       | (meq/kg) |     | (kg/l)      |  |  |
| 0      | 5           | 77,9        | 2,011     | 127      | 2,9 | 0,44        |  |  |
| 5      | 15          | 86          | 1,568     | 93       | 2,7 | 0,423       |  |  |
| 15     | 20          | 82,7        | 1,436     | 98       | 2,9 | 0,43        |  |  |
| 20     | 25          | 82,7        | 2,093     | 98       | 2,9 | 0,43        |  |  |
| 25     | 35          | 68          | 4,032     | 64       | 3   | 0,223       |  |  |
| 35     | 50          | 60,3        | 1,072     | 55       | 3,1 | 0,232       |  |  |
| 50     | 60          | 64,7        | 0,953     | 45       | 3,1 | 0,227       |  |  |
| 60     | 75          | 49          | 1,428     | 44       | 3,4 | 0,248       |  |  |
| 75     | 100         | 25          | 1,5       | 28       | 3,9 | 0,243       |  |  |
| 100    | 200         | 95          | 0,045     | 49       | 4   | 0,4         |  |  |
| 200    | 400         | 70          | 0,27      | 118      | 4   | 1,1         |  |  |
| 400    | 500         | 30          | 0,63      | 49       | 4,7 | 1,5         |  |  |

#### STONE-eenheid 166

| GT-klasse:  |             | 6         |             |                   |     |                       |
|-------------|-------------|-----------|-------------|-------------------|-----|-----------------------|
| van<br>(cm) | tot<br>(cm) | OM<br>(%) | klei<br>(%) | Fe_ox<br>(meq/kg) | pН  | bulkgewicht<br>(kg/l) |
| 0           | 5           | 3,5       | 24,511      | 113               | 7,5 | 1,33                  |
| 5           | 15          | 3,6       | 24,775      | 113               | 7,5 | 1,325                 |
| 15          | 20          | 3,4       | 25,406      | 111               | 7,5 | 1,328                 |
| 20          | 25          | 3,3       | 25,819      | 112               | 7,5 | 1,328                 |
| 25          | 35          | 2,8       | 24,592      | 109               | 7,5 | 1,355                 |
| 35          | 50          | 2,1       | 23,398      | 112               | 7,5 | 1,388                 |
| 50          | 60          | 1,8       | 21,8        | 105               | 7,7 | 1,412                 |
| 60          | 75          | 2         | 19,992      | 112               | 7,8 | 1,419                 |
| 75          | 100         | 1,9       | 16,873      | 109               | 7,8 | 1,449                 |
| 100         | 200         | 0,1       | 7,492       | 185               | 7,8 | 1,7                   |
| 200         | 400         | 0,1       | 2,997       | 204               | 7,8 | 1,7                   |
| 400         | 500         | 0,1       | 1,498       | 107               | 7,8 | 1,7                   |

gemiddeld grondwaterstand: 1,05 cm –mv GT-klasse: 6

#### STONE-eenheid 3214

gemiddeld grondwaterstand: 0,61 cm –mv CT klasse: 2

| GT-klasse: |      | 2    |       |          |     |             |
|------------|------|------|-------|----------|-----|-------------|
| van        | tot  | OM   | klei  | Fe_ox    | pН  | bulkgewicht |
| (cm)       | (cm) | (%)  | (%)   | (meq/kg) |     | (kg/l)      |
| 0          | 5    | 2    | 3,038 | 21       | 7,3 | 1,457       |
| 5          | 15   | 2    | 3,038 | 21       | 7,3 | 1,457       |
| 15         | 20   | 2    | 2,94  | 21       | 7,3 | 1,457       |
| 20         | 25   | 1,8  | 2,651 | 21       | 7,3 | 1,465       |
| 25         | 35   | 1,8  | 2,75  | 34       | 7,3 | 1,536       |
| 35         | 50   | 1,3  | 2,27  | 32       | 7,4 | 1,559       |
| 50         | 60   | 1    | 2,376 | 21       | 7,7 | 1,573       |
| 60         | 75   | 0,8  | 2,48  | 24       | 7,8 | 1,581       |
| 75         | 100  | 0,8  | 2,579 | 30       | 7,1 | 1,58        |
| 100        | 200  | 0,09 | 0,899 | 208      | 7,1 | 1,7         |
| 200        | 400  | 0,09 | 0,899 | 325      | 7,1 | 1,7         |
| 400        | 500  | 0,09 | 0,999 | 255      | 7,1 | 1,7         |

## STONE-eenheid 1111

| GT-kla | .sse: |      | 4     |          |     |             |
|--------|-------|------|-------|----------|-----|-------------|
| van    | tot   | OM   | klei  | Fe_ox    | pН  | bulkgewicht |
| (cm)   | (cm)  | (%)  | (%)   | (meq/kg) |     | (kg/l)      |
| 0      | 5     | 2,1  | 2,545 | 26,4     | 3,9 | 1,453       |
| 5      | 15    | 2,4  | 2,538 | 22,4     | 3,9 | 1,441       |
| 15     | 20    | 2,9  | 2,913 | 26,4     | 4,2 | 1,423       |
| 20     | 25    | 1,5  | 2,857 | 43,2     | 3,9 | 1,477       |
| 25     | 35    | 1,5  | 2,561 | 47,5     | 3,9 | 1,55        |
| 35     | 50    | 0,8  | 2,678 | 35       | 4,5 | 1,582       |
| 50     | 60    | 0,8  | 2,48  | 25,4     | 4,3 | 1,581       |
| 60     | 75    | 0,8  | 2,282 | 24,7     | 4,6 | 1,581       |
| 75     | 100   | 0,4  | 2,39  | 28,2     | 4,6 | 1,598       |
| 100    | 200   | 0,09 | 0,899 | 208      | 4,6 | 1,7         |
| 200    | 400   | 0,09 | 0,899 | 325      | 4,6 | 1,7         |
| 400    | 500   | 0,09 | 0,999 | 255      | 4,6 | 1,7         |

## gemiddeld grondwaterstand: 0,31 cm -mv

## STONE-eenheid 954

gemiddeld grondwaterstand: 1,19 cm –mv GT-klasse: 6

| GI-klasse: |      | 6   |       |          |     |             |
|------------|------|-----|-------|----------|-----|-------------|
| van        | tot  | OM  | klei  | Fe_ox    | pН  | bulkgewicht |
| (cm)       | (cm) | (%) | (%)   | (meq/kg) |     | (kg/l)      |
| 0          | 5    | 2   | 3,038 | 21       | 7,3 | 1,457       |
| 5          | 15   | 2   | 3,038 | 21       | 7,3 | 1,457       |
| 15         | 20   | 2   | 2,94  | 21       | 7,3 | 1,457       |
| 20         | 25   | 1,8 | 2,651 | 21       | 7,3 | 1,465       |
| 25         | 35   | 1,8 | 2,75  | 34       | 7,3 | 1,536       |
| 35         | 50   | 1,3 | 2,27  | 32       | 7,4 | 1,559       |
| 50         | 60   | 1   | 2,376 | 21       | 7,7 | 1,573       |
| 60         | 75   | 0,8 | 2,48  | 24       | 7,8 | 1,581       |
| 75         | 100  | 0,8 | 2,579 | 30       | 7,1 | 1,58        |
| 100        | 200  | 0,1 | 7,492 | 185      | 7,1 | 1,7         |
| 200        | 400  | 0,1 | 2,997 | 204      | 7,1 | 1,7         |
| 400        | 500  | 0,1 | 1,498 | 107      | 7,1 | 1,7         |
|            |      |     |       |          |     |             |

## STONE-eenheid 2931

| GT-kla | .sse: |      | 6     |          |     |             |
|--------|-------|------|-------|----------|-----|-------------|
| van    | tot   | OM   | klei  | Fe_ox    | pН  | bulkgewicht |
| (cm)   | (cm)  | (%)  | (%)   | (meq/kg) | -   | (kg/l)      |
| 0      | 5     | 2,1  | 2,545 | 64       | 3,9 | 1,453       |
| 5      | 15    | 2,4  | 2,538 | 59,4     | 3,9 | 1,441       |
| 15     | 20    | 2,2  | 2,738 | 65       | 3,9 | 1,449       |
| 20     | 25    | 1,5  | 2,857 | 72,9     | 3,9 | 1,477       |
| 25     | 35    | 1,5  | 2,561 | 71,9     | 3,9 | 1,55        |
| 35     | 50    | 0,8  | 2,381 | 34,7     | 4,3 | 1,582       |
| 50     | 60    | 0,8  | 2,48  | 56,3     | 4,3 | 1,581       |
| 60     | 75    | 0,8  | 2,282 | 30,1     | 4,6 | 1,581       |
| 75     | 100   | 0,4  | 2,39  | 33,5     | 4,6 | 1,598       |
| 100    | 200   | 1    | 14,85 | 399      | 4,6 | 1,7         |
| 200    | 400   | 0,09 | 0,999 | 211      | 4,6 | 1,7         |
| 400    | 500   | 0,09 | 0,999 | 184      | 4,6 | 1,7         |

gemiddeld grondwaterstand: 1,13 cm -mv