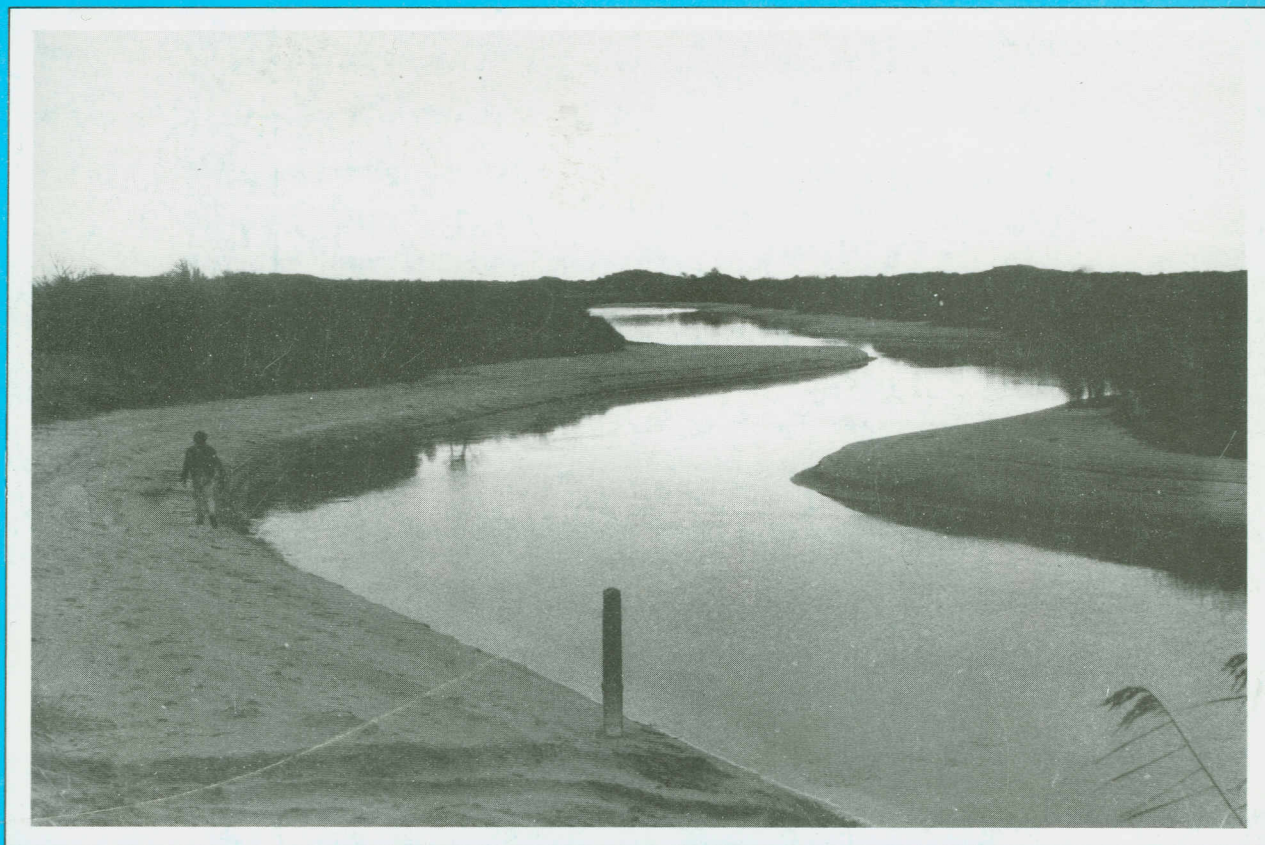


microverontreiniging en duininfiltratie



keuringsinstituut voor waterleidingartikelen kiwa n.v.

mededeling nr. 81

MICROVERONTREINIGING EN DUININFILTRATIE

KWALITEITSVERANDERINGEN VAN OPPERVLAKTEWATER BIJ
KUNSTMATIGE INFILTRATIE IN DE NEDERLANDSE KUST-
DUINEN: HYGIENISCHE ASPECTEN

Rapport van de Werkgroep Hygiënische Aspecten bij
Bodempassage

Mededeling nr. 81 van het KIWA

Eindredactie: drs. P.J. Stuyfzand

Nieuwegein, september 1984

<u>INHOUD</u>	<u>Blz.</u>
SUMMARY	7
SAMENVATTING	15
1 INLEIDING	23
1.1 Verantwoording	23
1.2 Om welke kwaliteit gaat het	24
1.3 Doel	25
1.4 Organisatorisch kader	26
1.5 Opzet van de mededeling	27
1.6 Literatuur	28
2 LOCATIE EN BESCHRIJVING VAN DE 7 BE- STUDEERDE DUININFILTRATIEGEBIEDEN	30
2.1 Locatie	30
2.2 Algemeen stroomdiagram voor systemen van duininfiltratie	32
2.3 Beschrijving van de 7 systemen van duininfiltratie met voor- en nazui- vering	34
2.3.1 Voorzuivering, herkomst oppervlakte- water en transport	35
2.3.2 Duininfiltratie	36
2.3.3 Nazuivering	51
2.4 Bemonsteringspunten	51
2.5 Literatuur	52
3 ANORGANISCHE MICROVERONTREINIGINGEN	54
3.1 Algemeen	54
3.2 Monstervoorbehandeling en analyse	56
3.3 Het aangevoerde oppervlaktewater	57
3.4 Bijgemengde wateren	60
3.4.1 Algemeen	60
3.4.2 Regenwater	61
3.4.3 Duinwater	63

		Blz.
3.5	Gevolgen van duininfiltratie	65
3.5.1	Duininfiltratie als geheel	65
3.5.2	Details van duininfiltratie	69
3.6	Ophoping in bodemslib en duinzand	71
3.6.1	Algemeen	71
3.6.2	Het Amsterdamse infiltratiegebied	72
3.6.3	Het Haagse infiltratiegebied	75
3.6.3.1	Pan 8.1 en 8.2	75
3.6.3.2	Pan 8.4.2 en 26.1	79
3.6.4	Het WMZ-infiltratiegebied te Haamstede	82
3.6.5	Synthese	84
3.7	Interpretatie	85
3.7.1	Overzicht van factoren en pro- cessen	85
3.7.2	Gevolgen van verdere voorzuivering	86
3.7.3	Effecten van verdamping en atmos- ferische depositie	87
3.7.4	Effecten van bijmenging van duin- water	90
3.7.5	Retentie	91
3.8	Duininfiltratie vergeleken met voor- en nazuivering	94
3.9	Conclusies	97
3.10	Aanbevelingen	100
3.11	Literatuur	101
4	ORGANISCHE MICROVERONTREINIGINGEN	106
4.1	Algemeen	106
4.2	Experimentele opzet	106
4.2.1	Frequentie en locatie van bemon- stering	106
4.2.2	Monstervoorbewerking	108
4.2.3	Meting	109
4.2.4	Gegevensverwerking	111
4.3	Resultaten wateranalyses	114

		Blz.
4.3.1	Organische zuren	114
4.3.2	Terpenoïden	115
4.3.3	Aldehyden en ketonen	115
4.3.4	Alcoholen	117
4.3.5	Esters	117
4.3.6	Fenolen	120
4.3.7	Ethers	121
4.3.8	Aromaten	122
4.3.9	Organische basen	126
4.3.10	Extraheerbaar organohalogeën (EOH)	127
4.3.11	Vluchtige organohalogenen	128
4.3.12	Cholinesteraseremmers	132
4.3.13	Actieve kool adsorbeerbaar organohalogeën (AOH)	134
4.3.14	XAD adsorbeerbaar organostikstof en organofosfor (XON; XOP)	135
4.3.15	Olie	136
4.3.16	Anionische detergenten	137
4.3.17	Overzicht	138
4.4	Interpretatie	142
4.4.1	Overzicht van processen	142
4.4.2	Verdunning	143
4.4.3	Verdamping	144
4.4.4	Atmosferische depositie	146
4.4.5	Algemeen	149
4.4.5.1	Binding aan slib (filtratie)	149
4.4.5.2	Experimentele gegevens	151
4.4.6	Gedrag bij bodempassage	153
4.4.6.1	Algemeen	153
4.4.6.2	Binding aan het watervoerend pakket	155
4.4.6.3	Belading van de grond	162
4.4.6.4	Microbiologische processen	167
4.4.6.4.1	Bioaccumulatie	167
4.4.6.4.2	Omzettingen	168
4.4.6.4.3	Interpretatie meetresultaten	179

4.5	Duininfiltratie vergeleken met voor- en nazuivering	184
4.5.1	GW	184
4.5.2	De DWL	190
4.5.3	Vergelijking GW en DWL	190
4.6	Conclusies	192
4.7	Aanbevelingen	201
4.8	Literatuur	203
5	MICROBIOLOGISCHE ASPECTEN	217
5.1	Inleiding	217
5.2	Micro-organismen in oppervlaktewater en hun hygiënische betekenis	217
5.3	Verwijdering van ongewenste micro-organismen bij duininfiltratie	226
5.3.1	Onderzoek door DWL	226
5.3.2	Onderzoek door PWN	239
5.4	Verwijderingsmechanismen bij langzame zandfiltratie	245
5.4.1	Biologische processen	246
5.4.2	Adsorptie	249
5.5	Conclusies	254
5.6	Aanbevelingen	256
5.7	Literatuur	257
6	ENIGE TOXICOLOGISCHE ASPECTEN	260
6.1	Inleiding	260
6.2	De ei-larvale test met forellen	261
6.2.1	Methodiek	261
6.2.2	Resultaten te Leiduin	262
6.2.3	Conclusies	263
6.3	Genotoxicologisch onderzoek met de Amestest	263
6.3.1	Methodiek en interpretatie van gegevens	264

6.3.1.1	Achtergronden	264
6.3.1.2	Uitvoering	265
6.3.1.3	De XAD-isolatieprocedures	266
6.3.2	Resultaten GW	267
6.3.2.1	Locaties van bemonstering	267
6.3.2.2	Effect voorzuivering	268
6.3.2.3	Totale effect duininfiltratie	268
6.3.2.4	Details bodempassage	271
6.3.2.5	Effect nazuivering	272
6.3.3	Resultaten overige gebieden	273
6.3.3.1	Ouddorp	273
6.3.3.2	Wijk aan Zee	273
6.3.3.3	DWL-'s-Gravenhage	275
6.3.4	Discussie	277
6.4	Conclusies	279
6.5	Aanbevelingen voor nader onderzoek	280
6.6	Literatuur	280
7	CONCLUSIES	284
7.1	Anorganische microverontreinigin- gen	284
7.2	Organische microverontreinigingen	286
7.3	Microorganismen	290
7.4	Toxicologische aspecten	292
7.5	Evaluatie	293
8	AANBEVELINGEN	295
8.1	Verder onderzoek	295
8.2	Optimalisering van de proces- voering	297
9	VEEL GEBRUIKTE BEGRIPPEN, SYM- BOLEN EN AFKORTINGEN	299
9.1	Begrippen	299
9.2	Symbolen en afkortingen	302

	Blz.
APPENDIX A: VOORZUIVERING	305
A.1 Inleiding	305
A.2 Algemeen historisch overzicht	305
A.3 Huidige taken nader beschouwd	307
A.3.1 Vermindering van verstopping	307
A.3.2 Beperking van algengroei	310
A.3.3 Vermijding van ongewenste processen in de grond	314
A.3.4 Vermindering van aanvoer en accumulatie van schadelijke stoffen en nutriënten	315
A.3.5 Bijdrage aan een zo goed mogelijke kwaliteit van teruggewonnen water	316
A.4 "Case-studies" in Nederland naar de functie van voorzuivering bij open infiltratie	320
A.4.1 Onderzoek van de DWL	320
A.4.2 Onderzoek van het PWN	324
A.4.3 Onderzoek van de LDM	325
A.4.4 RID/KIWA-onderzoek	326
A.5 Conclusies	330
A.6 Literatuur	332

CHANGES IN QUALITY OF SURFACE WATER DURING ARTIFICIAL INFILTRATION IN THE NETHERLANDS COASTAL DUNES: HYGIENIC ASPECTS

Report from the Working Group on Hygienic Aspects allied to Soil Passage

Editor: Drs. P.J. Stuyfzand

SUMMARY

One important aspect of the infiltration of surface water into the dunes is the occurrence of quality changes in the water from the hygienic viewpoint: "A reliable groundwater is prepared from hygienically unreliable surface water in an operationally reliable manner". The question in this regard is the extent to which this appears demonstrable, the factors on which this transformation depends and the future fate of the substances and organisms removed.

This report is directed toward answering these questions in relation to inorganic and organic microcontaminants, microorganisms and toxicity of the water infiltrated via ponds or canals. For this purpose, data from the following dune water supply plants were utilized: the Provincial Water Authority of North Holland (PWN), Municipal Water Works of Amsterdam (GW), the Dunes Water Supply of The Hague (DWL) and the Southwest Netherlands' Water Company Ltd. (WMZ).

INORGANIC MICROCONTAMINANTS

Although the (preliminarily purified) surface water introduced always shows low contents of inorganic microcontaminants, dune infiltration still results in a further concentration reduction of 15 - 85 % of most heavy metals and arsenic. The greatest concentration change is caused by binding to the sludge accumulated at the bottom of infiltration ponds and to the first meter of dune sand beneath the sludge. In the case of open recovery, as is the case with GW, in contrast to WMZ, PWN and DWL, a further concentration reduction takes place after soil passage by virtue of the precipitation of $\text{Fe}(\text{OH})_3$, within or on which heavy metals and arsenic can be bound.

The contents of heavy metals in algae and the sludge at the bottom of infiltration means are far higher than in the dune sands below. Nevertheless, the latter contain 7 - 50 times more metals removed from water, since the quantity of sand available is several orders of magnitude greater than the quantity of sludge and algae. Only chromium, mercury and lead do accumulate significantly in the sludge. An accumulation to several meters below the sludge has been confirmed only for zinc and possibly nickel.

Despite a decreasing quantity of inorganic microcontaminants in the introduced water, a decline of the percentage concentration reduction by the dune cannot be established except for arsenic. In the dunes near the Hague, an arsenic mobilization, analogous to orthophosphate, not spectacular in quantity but nevertheless distinct, was found in a number of observation wells between basin 13 and the main discharge drain located 60 meters away.

Both before and after dune infiltration, the contents of beryllium, cobalt, selenium and cyanide remain below the lower limit of analysis. Bromide is not removed, because its behavior resembles that of chloride.

ORGANIC MICROCONTAMINANTS

Dune infiltration leads to a concentration reduction of 60 - 100 % of many organic microcontaminants analyzed. This percentage is distinctly higher than that of the total of organic carbon compounds. Because of the limitations to which the available isolation and analytical techniques are subject, however, this principally pertains to compounds with a lipophilic to moderately polar character and a molecular weight of less than 400. Almost nothing is known of the remaining large group of substances.

Concentration reductions during dune infiltration come about through volatilization in the infiltration facilities (especially in the case of chlorinated trihalomethanes, leading to a reduction of the THM content by half), filtration or adsorption by the sludge (especially of lipophilic substances such as cholinesterase inhibitors and organochlorine pesticides), adsorption by the aquifer, microbiological breakdown (probably especially true of phosphate esters, chloro- and nitro-aromatics, toluene, benzene, anilines and cholinesterase inhibitors, among others) and chemical conversion, specifically of brominated trihalomethanes.

As a consequence of filtration and/or adsorption, lipophilic substances in particular accumulate in the sludge, a behavior shown by cholinesterase inhibitors, hexachlorobenzene and PCA's.

The concentration of organic acids, esters (primarily phthalates) and oil-like substances increased upon dune infiltration. In the dunes of GW, increases were also found with respect to aliphatics, terpenoids/sterols and aromatics (PCA's, PCB's and alkylderivatifs) and in The Hague dunes for ethers and alcohols. With the exception of aromatics and ethers, these increases are probably due to release of the substances mentioned by oxidizing peat, which occurs interbedded in dune sand. In the dunes of GW, the remobilization of organic substances accumulated in the sludge of the basin called "Oranjekom", situated after dune infiltration, may contribute.

During soil passage, the formation of new substances has been demonstrated, namely of chloroanilines, trimethylthiophosphates (from parathion), an amide and a N-substituted acetylamide.

The first two originate from organic microcontaminants introduced and the second two also from this and/or peat.

The degree of anaerobicity during soil passage also appears to play a great role in the conversion or breakdown in the case of a number of substances present at low concentrations in the introduced surface waters.

MICROORGANISMS

Dune infiltration with a hermetically closed recovery leads to a drastic reduction of undesirable bacteria (and viruses). This is not true for dune infiltration with a (partially) open recovery, as a result of recontamination, or for dune infiltration in which the closed recovery is compromised by technical difficulties with short-circuiting be-

tween inflow and outflow, however small.

In the open infiltration facilities, pre-purified surface water is once again highly contaminated with animal feces, principally those of gulls and other water birds.

Soil passage in the dunes greatly reduces the number of coliforms, fecal streptococci, sulfite-reducing clostridia and enteroviruses as well as the colony counts. Data from the PWN show that no change has taken place in this regard for the past 25 years. Approximately 2 days of underground travel time are sufficient for a practically complete removal of bacteria from the coli group and fecal streptococci. For the more resistant spores of sulfite reducing clostridia, however, 10 days or more of underground travel time are required. The reduction amounts to more than 3 log-units for the bacteria and colony counts mentioned. The removal of hygienically undesirable bacteria, which are not of fecal origin and which occur naturally in water - such as *Aeromonas hydrophila* - may take place less effectively under circumstances as yet unknown.

Biological processes like competition and mortality are principally responsible for the elimination of bacteria during soil passage.

TOXICOLOGIC ASPECTS

On the basis of studies with trout and trout eggs (mortality and growth disturbances) and with the Ames test (damage to genetic material of bacteria), it can be concluded that more toxic effects are detected before dune infiltration than afterwards. Organochlorine compounds are demonstrated in adipose tissue of trout before dune infiltration,

but not afterwards. It was found in preliminary investigations that the mutagenic effect of organic substances concentrated with XAD from water samples in the Amestest before dune infiltration exceeds that afterwards. The reduction in mutagenic activity was generally greater in the XAD pH 7 fraction (lipophilic compounds) than in the XAD pH 2 fraction (moderately hydrophilic compounds).

DUNE INFILTRATION COMPARED WITH PRELIMINARY AND POST PURIFICATION

The preparation of drinking water from surface water by dune infiltration mostly involves preliminary purification and always a subsequent purification. The preliminary purification thus comes first and the subsequent purification last in the total treatment.

The preliminary purification accounts for the greatest portion of the total concentration reduction achieved, especially of those substances which are bound to suspended matter, like many heavy metals, aromatics (PCA's, PCB's, HCB's, etc.) and bacteria.

Concerning the hygienic aspects, dune infiltration is responsible for the greatest fraction of the concentration reduction of a large number of microcontaminants and for a reduction of the toxicity. In addition, dune infiltration provides the greatest contribution to the reduction of nitrate contents, the potassium permanganate consumption, the taste and sometimes the color, as well as to a considerable dampening of quality fluctuations and to storage (see KIWA Report 82 for these aspects). One disadvantage is the accumulation of heavy metals and organic microcontaminants at less easily

reachable locations than in the case of preliminary and post purification, namely, over larger surfaces (the areas of the infiltration sites) and to somewhat greater depths (to a maximum of about 1 meter).

The subsequent purification accounts for a relatively small fraction of the total quality change achieved. Nevertheless, subsequent purification is necessary to make up for possible defects in dune infiltration, such as bacteriologic contamination, and for unavoidable implications such as iron and manganese increases.

It can be concluded that the questions posed at the beginning of this summary have been answered in this report to some degree of satisfaction. The methods of sampling and analysis, especially for organic microcontaminants, viruses and toxicity, are still undergoing rapid development. This means, among other things, that too little information is available yet, regarding components which have only recently become detectable and regarding recently developed quality parameters to make reliable statements, especially in terms of trends. One very important topic for further investigation in all disciplines involved, is the manner and effects of removal of sludge from the infiltration basins. Specifically, this layer plays a principal role in many aspects of the quality change in dune infiltration from both positive and negative viewpoints. Positive evaluations could be made for a high degree of microbiological conversion of organic microcontaminants in the sludge as well as the formation of a barrier for substances which would otherwise accumulate in the underlying, harder to reach dune sand. A negative effect may be the occurrence

of anaerobicity, so that the conversion of various organic microcontaminants takes place less effectively or leads to undesirable conversion products. Another negative factor is the risk of remobilization, both for the ecosystem linked with the infiltration basins and for the quality of the water undergoing soil passage.

Today's knowledge is definitely inadequate for balancing the desirable and undesirable effects of removal of the sludge, to say nothing of stating how frequently and to what depth a possible removal should take place.

As a good basis for further investigations, it is recommended that both soil and water be accurately and thoroughly analyzed at specified intervals. Because of the large quality fluctuations and the high costs of such investigations, this should be done at a few key locations in a multidisciplinary setting. Simulation tests in the laboratory are considered important.

Recommendations for optimizing the process control involve among other things: the removal of sludge from drainage canals and collecting basins, the hermetic closure of the recovery system, suppression of eutrophication phenomena, elimination of marked changes in management of dune infiltration, and avoidance of transport chlorination of surface water to be introduced.

SAMENVATTING

Een belangrijk aspect van het infiltreren van oppervlaktewater in de duinen is de optredende kwaliteitsverandering van het water in hygiënisch opzicht: "Van hygiënisch onbetrouwbaar oppervlaktewater wordt op bedrijfszekere wijze een betrouwbaar grondwater gemaakt". De vraag bij deze stelling is, in hoeverre dit aantoonbaar optreedt, van welke factoren deze transformatie afhangt en wat het verdere lot van de verwijderde stoffen en organismen is.

Dit rapport richt zich op een beantwoording van deze vragen met betrekking tot anorganische en organische microverontreinigingen, micro-organismen en toxiciteit van het water, dat via vijvers of kanalen geïnfiltrerd wordt. Hiertoe worden gegevens beschouwd afkomstig van de duinwaterleidingbedrijven: het Provinciaal Waterleidingbedrijf Noord-Holland (PWN), Gemeentewaterleidingen (GW), de Duinwaterleiding van 's-Gravenhage (DWL) en de N.V. Watermaatschappij Zuid-West-Nederland (WMZ).

Anorganische microverontreinigingen

Hoewel het aangevoerde (voorgezuiverde) oppervlaktewater doorgaans lage gehalten aan anorganische microverontreinigingen vertoont, leidt duininfiltratie nog tot een concentratieverlaging van 15-85 % van de meeste zware metalen en arseen.

Binding aan bodemslib in infiltratiemiddelen en aan de eerste meter onderliggend duinzand verzorgt het grootste deel van de concentratieverandering.

In geval van een open terugwinning, zoals bij GW in tegenstelling tot de WMZ, het PWN en de DWL, komt een verdere concentratieverlaging na bodempassage

op rekening van de precipitatie van $\text{Fe}(\text{OH})_3$, waarin of waaraan zware metalen en arseen gebonden kunnen worden.

De gehalten van zware metalen in algen en bodemslib in infiltratiemiddelen zijn veel hoger dan in het onderliggende duinzand. Toch bevat het laatste 7-50 maal meer uit water verwijderde metalen, omdat de hoeveelheid beschikbaar zand factoren groter is dan de hoeveelheid slib en algen. Alleen chroom, kwik en lood hopen zich in significante mate in bodemslib op. Een accumulatie tot meerdere meters onder het bodemslib is alleen voor zink en mogelijk nikkel geconstateerd.

Een in de loop der tijd verminderde procentuele concentratieverlaging van anorganische microverontreinigingen door het duin kan, behalve voor arseen, niet worden vastgesteld, ondanks een dalend gehalte ervan in de aanvoer. Bij de DWL is een qua niveau niet spectaculaire maar niettemin duidelijke arseen-mobilisatie, analoog aan die van orthofosfaat, vastgesteld in een raai waarnemingsputten tussen pan 13 en de zich op 60 meter afstand bevindende, drainerende hoofdader.

Vóór en na duininfiltratie blijven de gehalten van beryllium, cobalt, selenium en cyanide beneden de onderste analysegrens. Bromide wordt niet verwijderd als gevolg van een op chloride gelijkend gedrag.

Organische microverontreinigingen

Duininfiltratie leidt tot 60-100 % concentratieverlaging van vele, geanalyseerde organische microverontreinigingen. Dit percentage is duidelijk hoger dan dat van het totaal aan organische koolstofverbindingen. Vanwege de beperkingen, die de beschikbare isolatie- en analysetechnieken opleggen, be-

treft het echter voornamelijk verbindingen met een lipofiel tot matig polair karakter en een molecuulgewicht beneden 400. Van de resterende, grote groep van stoffen is vrijwel niets bekend.

Concentratieverlagingsen bij duininfiltratie komen tot stand door vervluchtiging in infiltratiemiddelen (vooral van gechloreerde trihalomethanen, leidend tot een halvering van THM), filtratie c.q. adsorptie door bodemslib (vooral van lipofiele stoffen als cholinesteraseremmers en organochloorpesticiden), adsorptie door het watervoerend pakket, microbiologische afbraak (waarschijnlijk vooral van onder andere fosfaatesters, chloor- en nitro-aromaten, toluen, benzeen, anilines en cholinesteraseremmers) en chemische omzetting van met name gebromeerde trihalomethanen.

Als gevolg van filtratie c.q. adsorptie accumuleren vooral lipofiele stoffen in de bodemsliblaag, hetgeen is aangetoond voor cholinesteraseremmers, hexachloorbenzeen en PCA's.

Concentratieverhogingen bij duininfiltratie zijn vastgesteld voor organische zuren, esters (voornamelijk ftalaten) en olie-achtigen. In de Amsterdamse Waterleidingduinen zijn voorts verhogingen geconstateerd ten aanzien van alifaten, terpenoïden/sterolen en aromaten (PCA's, PCB's en alkylderivaten) en in de Haagse duinen voor ethers en alcoholen.

Deze verhogingen worden, aromaten en ethers uitgezonderd, zeer waarschijnlijk veroorzaakt door afgifte van de genoemde stoffen door oxiderend veen, dat in lagen in duinzand voorkomt. Bij GW kan de remobilisatie van organische stoffen geaccumuleerd in slib van de Oranjekom hieraan bijdragen.

Tijdens bodempassage is het ontstaan aangetoond van nieuwe stoffen, namelijk chlooraniline, trimethyl-

thiofosfaat (uit parathion), een amide en een N-gesubstitueerd acetylamide. De eerste twee uit aangevoerde organische microverontreinigingen en de laatste twee ook daaruit en/of uit veen.

De graad van aerobie bij bodempassage blijkt ook in het duin bij lage concentraties in de aanvoer voor een aantal stoffen een grote rol te spelen in de omzetting c.q. afbraak.

Micro-organismen

Duininfiltratie met een hermetisch gesloten terugwinning leidt tot een drastische verlaging van ongewenste bacteriën (en virussen).

Dit geldt niet voor duininfiltratie met een (gedeeltelijk) open terugwinning ten gevolge van herbesmetting of voor duininfiltratie, waar de gesloten terugwinning door technische mankementen gebukt gaat onder kortsluitingen tussen aan- en afvoer, hoe klein ook.

In de open infiltratiemiddelen wordt voorgezuiverd oppervlaktewater opnieuw sterk verontreinigd met dierlijke faeces, voornamelijk van meeuwen en andere watervogels.

Bodempassage in het duin reduceert de aantallen coliformen, fecale streptococcen, sulfiet reducerende clostridia en enterovirussen, alsmede koloniegetallen zeer sterk. Gegevens van het PWN doen vermoeden, dat hierin de afgelopen 25 jaar geen verandering is gekomen. Ongeveer 2 dagen ondergrondse reistijd zijn voldoende voor een vrijwel volledige verwijdering van bacteriën van de coligroep en fecale streptococcen. Voor de resistentere sporen van sulfietreducerende clostridia zijn echter 10 dagen of meer ondergrondse reistijd nodig. De reductie bedraagt voor de genoemde bacteriën en koloniegetallen meer dan 3 log-eenheden. De verwijdering van

hygiënisch ongewenste bacteriën, die niet van fecale herkomst zijn en hun natuurlijk milieu in water vinden - zoals *Aeromonas hydrophila* - kan minder effectief verlopen onder nog onbekende omstandigheden.

Voor de eliminatie van bacteriën bij bodempassage zijn vooral biologische processen als rivaliteit en afsterving verantwoordelijk.

Toxicologische aspecten

Op basis van onderzoek met forellen en forelleneieren (sterfte en groeistoornissen) en met de Amestest (schade aan erfelijk materiaal bij bacteriën) kan geconcludeerd worden, dat vóór duininfiltratie meer toxische effecten worden waargenomen dan erna. Organochloorverbindingen zijn vóór duininfiltratie wel en erna niet in vetweefsel van forellen aangetoond. Bij oriënterende onderzoeken is geconstateerd, dat het mutagene effect van met XAD-geconcentreerde organische stoffen uit watermonsters in de Amestest vóór duininfiltratie dat erna overtreft. De verlaging van de mutagene activiteit was meestal sterker in de XAD pH 7 fractie (lipofiele verbindingen) dan in de XAD pH 2 fractie (matig hydrofiele verbindingen).

Duininfiltratie vergeleken met voor- en nazuivering

De bereiding van drinkwater uit oppervlaktewater middels duininfiltratie behelst dikwijls een voorzuivering en altijd een nazuivering. De voorzuivering staat vooraan en de nazuivering achteraan in de totale behandeling. De voorzuivering levert bijgevolg het grootste aandeel in de totaal bereikte concentratieverlaging van met name die stoffen, die slibgebonden zijn, zoals veel zware metalen, aroma's (PCA's, PCB's, HCB's etc.) en bacteriën.

Duininfiltratie eist, wat de hygiënische aspecten betreft, het grootste aandeel op in de concentratieverlaging van een groot aantal organische microverontreinigingen en in een verlaging van de toxiciteit. Daarnaast levert duininfiltratie de grootste bijdrage aan de verlaging van nitraatgehalten, het kaliumpermanganaat-verbruik, de smaak en dikwijls de kleur, alsmede aan een zeer aanzienlijke demping van kwaliteitsfluctuaties en aan voorraadvorming (zie KIWA-Meded. 82 voor deze aspecten). Een nadeel vormt de accumulatie van zware metalen en organische microverontreinigingen op minder gemakkelijk bereikbare plaatsen dan bij de voor- en nazuivering, namelijk over grotere oppervlakken (die van de infiltratiemiddelen) en tot wat grotere diepte (tot maximaal circa 1 meter).

De nazuivering heeft een relatief gering aandeel in de totaal bereikte kwaliteitsverandering.

Niettemin is nazuivering noodzakelijk ter correctie van eventuele defecten van duininfiltratie, zoals bacteriologische herbesmetting, en van onvermijdelijke implicaties, zoals een ijzer- en mangaantoe name.

Geconcludeerd kan worden, dat de vooraan in deze samenvatting gestelde vragen in dit rapport een tot op zekere hoogte bevredigend antwoord hebben gekregen. De methoden van bemonstering en analyse van vooral organische microverontreinigingen, virussen en toxiciteit maken evenwel nog een snelle ontwikkeling door. Dit houdt onder andere in, dat er van bestanddelen, die sinds kort aantoonbaar zijn, en van recent ontwikkelde kwaliteitsparameters nog te weinig gegevens voorhanden zijn om betrouwbare uitspraken te doen, vooral ten aanzien van trendmatige ontwikkelingen.

Een zeer belangrijk thema van verder onderzoek voor alle betrokken disciplines betreft de wijze en effecten van verwijdering van bodemslib uit infiltratiemiddelen.

Deze sliblaag speelt namelijk een hoofdrol in veel aspecten van de kwaliteitsverandering bij duininfiltratie, zowel in positieve als negatieve zin. Positief te beoordelen zou kunnen zijn een hoge mate van microbiologische omzetting van organische microverontreinigingen in bodemslib, alsmede de vorming van een barrière voor stoffen, die anders in het onderliggende, moeilijker bereikbare duinzand accumuleren.

Negatief is mogelijk de optredende anaerobie, waarbij de omzetting van diverse organische microverontreinigingen minder effectief geschiedt of tot ongewenste omzettingsproducten leidt. Ook negatief is het gevaar van remobilisatie zowel voor het aan het infiltratiemiddel gebonden ecosysteem als voor de kwaliteit van het water na bodempassage. De huidige kennis schiet duidelijk te kort om de gunstige en ongunstige effecten van verwijdering van bodemslib af te wegen, laat staan om aan te geven hoe vaak en tot welke diepte een eventuele verwijdering zou moeten plaatsvinden.

Voor een goede opzet van verder onderzoek wordt aanbevolen om zowel grond als water op gezette tijden nauwkeurig en uitvoerig te analyseren. Dit dient vanwege sterke kwaliteitsschommelingen en de hoge kosten van dergelijk onderzoek te geschieden op enkele sleutellocaties in multidisciplinair verband. Simulatieproeven in het laboratorium worden zinvol geacht.

Aanbevelingen voor optimalisering van de procesvoering behelzen onder andere: de verwijdering van bo-

demslib uit drainerende kanalen en verzamelbekken, het hermetisch afsluiten van het terugwinningssysteem, terugdringing van eutrofiëringsverschijnselen, het vermijden van grote wisselingen in bedrijfsvoering van duininfiltratie en vermijden van transportchlooring van aan te voeren oppervlaktewater.

1 INLEIDING

1.1 Verantwoording

Voorliggend rapport is opgesteld door de Werkgroep "Hygiënische Aspecten bij Bodempassage", opgericht op 8 juli 1979.

De samenstelling van deze Werkgroep is als volgt:

Bassie, drs. W.; N.V. Waterleidingmaatschappij Zuid-West-Nederland, lid sinds maart 1982.

Beek, ir. C.G.E.M. van; KIWA N.V., lid tot januari 1983.

Gaag, drs. M.A. van der; KIWA N.V., lid sinds oprichting, secretaris tot februari 1982.

Hoekstra, drs. A.C.; Duinwaterleiding van 's-Gravenhage, lid sinds oprichting.

Hrubec, ir. J.; Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieuhygiëne, lid sinds oprichting.

Lips, drs. H.J.M.; Provinciaal Waterleidingbedrijf van Noord-Holland, lid tot januari 1984.

Mus, ir. D.; N.V. Leidsche Duinwater Maatschappij, lid sinds maart 1982.

Olsthoorn, ir. T.N.; Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieuhygiëne (toen bij KIWA N.V.), lid en secretaris tot september 1979.

Puffelen, ir. J. van; Duinwaterleiding van 's-Gravenhage, voorzitter sinds oprichting.

Schultink, drs. L.J.; Provinciaal Waterleidingbedrijf van Noord-Holland, lid sinds februari 1984.

Smeenk, ir. J.G.M.M., Gemeentewaterleidingen, lid sinds oprichting.

Snoek, drs. O.I.; Gemeentewaterleidingen, lid sinds oprichting.

Stuyfzand, drs. P.J.; KIWA N.V. (tot 1 februari 1982: Vrije Universiteit Amsterdam, Instituut voor Aardwetenschappen), lid sinds januari 1981, secretaris sinds februari 1982.

Het rapport is opgebouwd uit bijdragen van:

- drs. P.J. Stuyfzand: "Locatie en beschrijving van de 7 bestudeerde duininfiltratiegebieden" (hoofdstuk 2);
- drs. P.J. Stuyfzand, ir. J. van Puffelen en drs. H.J.M. Lips: "Anorganische microverontreinigingen" (hoofdstuk 3);
- ir. J.G.M.M. Smeenk: "Organische microverontreinigingen" (hoofdstuk 4);
- drs. A.C. Hoekstra: "Microbiologische aspecten" (hoofdstuk 5);
- drs. M.A. van der Gaag: "Enige toxicologische aspecten" (hoofdstuk 6);
- ir. J. Hrubec & drs. P.J. Stuyfzand: "Voorzui-
vering" (Appendix A).

De bijdragen zijn geredigeerd door drs. P.J. Stuyfzand, die ook de samenvatting, inleiding, conclusies, aanbevelingen en begrippenlijst opstelde.

1.2

Om welke kwaliteit gaat het

Kwaliteitsveranderingen van oppervlaktewater (bij duininfiltratie) kunnen worden onderverdeeld in: (a) veranderingen in de zogenaamde macroparameters, dat wil zeggen hoofd- en nevenbestanddelen van water plus een aantal algemeen beschrijvende parameters (som- of groepsparameters), beide in de orde van mg/l; (b) veranderingen in anorganische microverontreinigingen; (c) veranderingen in organische microverontreinigingen; (d) microbiologische veranderingen en (e) veranderingen in toxiciteit.

In dit rapport krijgen uitsluitend die hygiënische aspecten aandacht, die vermeld zijn onder de punten b tot en met e, bij open duininfiltratie, dat wil

zeggen met hiervoor bestemde vijvers of kanalen. Macroparameters worden besproken in KIWA-mededeling nr. 82 (Stuyfzand, 1985), terwijl kwaliteitsaspecten van diepe infiltratie met putten behandeld worden in KIWA-mededeling 79 (Van Puffelen, in: Peters, 1984).

1.3

Doel

Vanuit diverse maatschappelijke groeperingen komen de laatste jaren steeds meer vragen over het nut en de noodzaak van het gebruik van duingebieden ten behoeve van de drinkwatervoorziening. De aanleiding voor de meeste van deze vragen zijn de plannen van rijksoverheid en de bedrijfstak voor uitbreiding van infiltratie van oppervlaktewater in de duinen in de komende decennia. Deze uitbreidingsplannen hebben reacties opgeroepen, vooral bij belangengroepen, die zich inzetten voor het natuurbeheer.

De overheid, met name in Zuid-Holland, heeft zich tot taak gesteld om door middel van onderzoek voldoende beleidsinstrumenten te verzamelen om de belangen van drinkwatervoorziening en natuurbeheer verantwoord af te kunnen wegen. Dit zogenaamde Integrale Onderzoek is in 1983 afgerond met een eindrapport (IODZH, 1983).

De duinwaterbedrijven hebben zich naar aanleiding van de ontstane vragen de taak gesteld de beschikbare informatie bij de bedrijven te verzamelen en te rapporteren. De KIWA-commissie "Infiltratie" fungeert daarbij onder andere als stimulerend en coördinerend lichaam.

Een zeer belangrijk aspect van het infiltreren van oppervlaktewater in de duinen is de optredende kwaliteitsverandering van het water in hygiënisch opzicht. Van hygiënisch onbetrouwbaar oppervlaktewa-

ter wordt op bedrijfszekere wijze een "betrouwbaar grondwater" gemaakt. De vraagstelling van de Commissie Infiltratie daarbij is, in hoeverre dit aantoonbaar optreedt, van welke factoren deze transformatie afhankelijk is en wat het verdere lot van de verwijderde stoffen en organismen is. Ter beantwoording van deze vraag is de Werkgroep "Hygiënische Aspecten bij Bodempassage" opgericht. Het eerste, hier aan de orde komende programmapunt van deze Werkgroep is de bestaande gegevens te inventariseren, te verzamelen, te rapporteren en te interpreteren, alsmede aan de hand van de verkregen informatie nadere voorstellen te formuleren ten aanzien van bedrijfsvoering en verder onderzoek.

1.4 Organisatorisch kader

Op 28 november 1951 werd de (eerste) Commissie Infiltratie van het KIWA geïnstalleerd in verband met een toegenomen belangstelling voor kunstmatige infiltratie. Na de rapportage door deze Commissie in 1958 is zij ter ziele gegaan.

In de zestiger jaren is vervolgens de Werkgroep Infiltratie Rivierwater in de Duinen (WIRDU) opgericht.

In 1969 bracht de WIRDU het rapport "Kwaliteitsverandering bij infiltratie in de duinen" uit (Lips et al, 1969). De WIRDU werd in 1973 omgevormd tot de huidige KIWA-Commissie Infiltratie, in verband met de meer dan regionale betekenis van het onderzoek.

Op 8 juni 1979 is op initiatief van deze Commissie de Werkgroep Hygiënische Aspecten bij Bodempassage geïnstalleerd. De samenstelling van de Werkgroep is reeds in paragraaf 1.1 gegeven. In grote lijnen is de taak van deze Werkgroep het bevorderen, begeleiden en vooral coördineren en rapporteren van on-

derzoek naar het gedrag van stoffen, die via kunstmatig geïnfiltreerd water in de bodem worden gebracht en die voor de gezondheid van de drinkwaterconsument van belang zijn. Het merendeel van de onderzoeken is en wordt uitgevoerd door de in de Werkgroep participerende bedrijven en instellingen:

- Duinwaterleiding van 's-Gravenhage (DWL);
- Gemeentewaterleidingen (GW);
- Provinciaal Waterleidingbedrijf van Noord-Holland (PWN);
- N.V. Leidsche Duinwater Maatschappij (LDM);
- N.V. Watermaatschappij Zuid-West-Nederland (WMZ);
- Keuringsinstituut voor Waterleidingartikelen KIWA N.V. (KIWA);
- Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieuhygiëne (RIVM).

Het voorliggende onderzoek is gefinancierd door het PWN, GW, LDM, DWL, WMZ en in het kader van het KIWA-speurwerkproject "Kwaliteitsaspecten van kunstmatige infiltratie" door de Vereniging van Exploitanten van Waterleidingbedrijven in Nederland (VEWIN).

1.5 Opzet van de mededeling

Alvorens in te gaan op de kwaliteitsveranderingen van oppervlaktewater bij duininfiltratie worden in hoofdstuk 2 de 7 bestudeerde infiltratiegebieden beschreven. Detail informatie wordt hier verstrekt onder andere met betrekking tot de processtappen van voor- en nazuivering en procesvoering van duininfiltratie met tal van hydrologische gegevens, voor elk infiltratiegebied afzonderlijk.

In appendix A wordt de voorzuivering nader beschouwd. De huidige taken ervan, een algemeen his-

torisch overzicht en een evaluatie van de functie bij 3 duinwaterleidingbedrijven en tijdens een experimentele studie krijgen hierin aandacht.

Veel gebruikte begrippen als voor- en nazuivering, duininfiltratie, ondiep en diep duinwater, reinwater, etc. worden in een aparte lijst (hoofdstuk 9) omschreven. Hierbij sluit een lijst van veel gebruikte symbolen en afkortingen aan.

Achtereenvolgens worden in hoofdstuk 3 tot en met 6 de anorganische microverontreinigingen, organische microverontreinigingen, microbiologische aspecten en enige toxicologische aspecten behandeld. Naast duininfiltratie krijgen ook de voor- en nazuivering aandacht.

Conclusies zijn samengevat in hoofdstuk 7. Aanbevelingen voor nader onderzoek en een optimalisering van de procesvoering volgen tenslotte in hoofdstuk 8.

1.6

Literatuur

Commissie Infiltratie, 1958: "Overzicht naar de stand van zaken medio 1956 van de voor de drinkwatervoorziening verkregen resultaten door infiltratie van oppervlaktewater".

Rapport nr. 1 van de Commissie Infiltratie van het KIWA, 53 p; tevens in Water (41) p. 355-358 en Water (42), p. 6-8, 22-25 en 33-38.

IODZH, 1983: "Eindrapport Stuurgroep Integraal Onderzoek Drinkwatervoorziening Zuid-Holland".

RID/PWS-Zuid-Holland, 187 p.

Lips, H.J.M., Bulten, B. & Puffelen, J. van, 1969; "Kwaliteitsveranderingen bij infiltratie in de duinen".

Rapport Werkgroep Infiltratie Rivierwater in Duinen (WIRDU), 60 p.

Peters, J.H. (ed), 1984; "Ervaringen met diepinfiltratie in Nederland".

KIWA-mededeling nr. 79, in voorbereiding.

Stuyfzand, P.J., 1985; "Kwaliteitsveranderingen van oppervlaktewater bij kunstmatige infiltratie in de Nederlandse kustduinen: Macroparameters".

KIWA-mededeling nr. 82, in voorbereiding met 5 begeleidende deelrapporten (KIWA SWE-366 tot en met 370).

LOCATIE EN BESCHRIJVING VAN DE 7 BESTUDEERDE DUIN-
INFILTRATIEGEBIEDEN

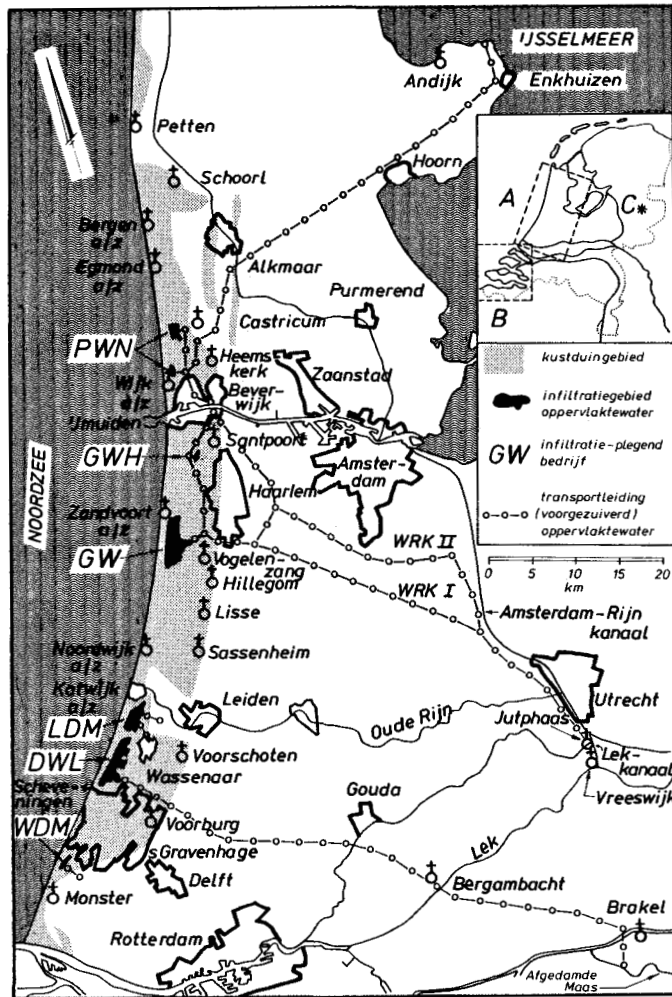
In dit hoofdstuk wordt achtereenvolgens ingegaan op de locatie der infiltratiegebieden (par. 2.1), een algemeen stroomdiagram voor de systemen van duininfiltratie (par. 2.2), een beschrijving van de 7 bestudeerde systemen van duininfiltratie met vóór- en nazuivering (par. 2.3) en de locatie en aard van in deze studie betrokken bemonsteringspunten (par. 2.4). Veel aanvullende informatie is besloten in de deelrapporten 1-5 (Stuyfzand, 1983, 1984a-d) en het bijbehorende basisrapport "Macroparameters" (Stuyfzand, 1985).

2.1

Locatie

Gaande van noord naar zuid zijn de volgende infiltratiegebieden onderzocht (zie fig. 2.1): (1) het infiltratiegebied ten westen van Castricum, Noord-Holland (fig. 2.3; kaartblad* 19C), onder beheer van het Provinciaal Waterleidingbedrijf van Noord-Holland (PWN); (2) het infiltratiegebied ten noorden van Wijk aan Zee, Noord-Holland (fig. 2.4; kaartblad* 19C), onder beheer van het PWN; (3) het infiltratiegebied ten zuiden van Zandvoort aan Zee, Noord-Holland (fig. 2.5; kaartblad* 24H), onder beheer van Gemeentewaterleidingen Amsterdam (GW); (4) het infiltratiegebied ten zuiden van Katwijk aan Zee, Zuid-Holland (fig. 2.6; kaartblad* 30E) onder beheer van de N.V. Leidsche Duinwater Maatschappij (LDM); (5) het infiltratiegebied ten noorden van Scheveningen, Zuid-Holland (fig. 2.7; kaartbladen* 30E en 30G), onder beheer van de Duinwaterleiding

* Topografisch, 1 : 25.000



Figuur 2.1 - Ligging van gebieden met kunstmatige infiltratie via hiervoor bestemde vijvers of kanalen in (A) het kustduingebied van Noord- en Zuid-Holland, (B) de provincies Zeeland en Zuid-Holland en (C) Enschede

van 's-Gravenhage (DWL); (6) het infiltratiegebied ten noord-oosten van Ouddorp, op Goeree, Zuid-Holland (fig. 2.8; kaartbladen* 36G + H), onder beheer van de N.V. Watermaatschappij Zuid-West-Nederland (WMZ); en (7) het infiltratiegebied bij Haamstede op Schouwen, Zeeland (fig. 2.9; kaartblad* 42B) onder beheer van de WMZ.

Hier niet bestudeerd zijn de tevens in fig. 2.1 weergegeven infiltratiegebieden ten noord-westen van Haarlem (Gemeentelijk Waterbedrijf Haarlem, GWH), ten zuiden van Den Haag (Westlandsche Drinkwaterleiding Maatschappij N.V., WDM), bij St. Jansteen en Clinge in Zeeuws-Vlaanderen (WMZ) en aan de noord-westrand van Enschede (Openbare Nutsbedrijven Enschede, ONE).

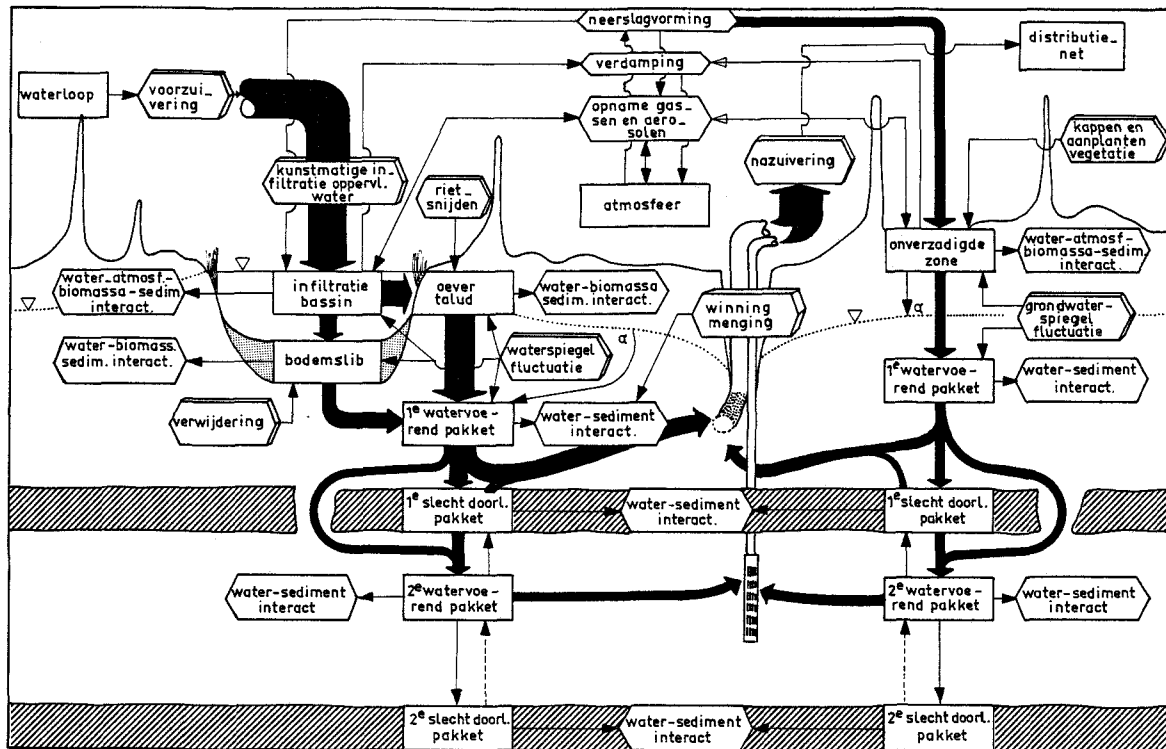
2.2 Algemeen stroomdiagram voor systemen van duininfiltratie

In welke compartimenten een wèl en een nièt kunstmatig geïnfiltreerde waterdruppel achtereenvolgens belanden, langs welke weg dit geschiedt, welke processen van invloed zijn op de samenstelling ervan en waar beide gemengd worden, is voor de bestudeerde duininfiltratiegebieden geschematiseerd in fig. 2.2.

Enkele belangrijke punten uit dit stroomdiagram zijn:

(1) te onderscheiden zijn 12 compartimenten, waarin het water korter of langer vertoeft, te weten: specifiek voor het regenwater de atmosfeer en onverzadigde zône en specifiek voor kunstmatig geïnfiltreerd oppervlaktewater de waterloop van her-

* Topografisch, 1 : 25.000



Figuur 2.2 - Stroomdiagram voor systemen van duin-infiltratie. Als rechthoeken zijn weergegeven de compartimenten waarin het water korter of langer vertoeft, als zeshoeken niet of moeilijk beïnvloedbare processen, die de kwaliteitsverandering mede bepalen, en als zwaarder uitgevoerde zeshoeken de beïnvloedbare processen

komst, het infiltratiebassin, oever talud en bodemslib. Voor beide watersoorten zijn dit het 1e en eventueel 2e watervoerende pakket, eventueel het 1e en/of 2e slecht doorlatende pakket en bij winning, het distributienet. Niet aangegeven in fig. 2.2 is een verzamelbekken of -kanaal, waar het (terug)gewonnen water bij een aantal bedrijven (zie tabel 2.2) in uitstroomt, alvorens in de nazuivering te belanden;

(2) niet of moeilijk beïnvloedbare processen, die de kwaliteitsverandering veroorzaken, zijn voor beide watersoorten achtereenvolgens de water-atmosfeer-biomassa-sediment interactie en water-sediment interactie;

(3) beïnvloedbare processen, die de kwaliteitsverandering mede bepalen, zijn specifiek voor regenwater het kappen of aanplanten van vegetatie en specifiek voor kunstmatig geïnfiltreerd oppervlaktewater de voorzuivering, het al of niet verwijderen van oevervegetatie (bijvoorbeeld riet) en bodemslib. Voor beide watersoorten zijn dit het induceren van grondwaterspiegelfluctuaties (slechts ten dele beïnvloedbaar), de menging, winning (de hoeveelheid ervan bepaalt de verblijftijd van water ondergronds) en nazuivering.

De verschillende aard van de processen en het grote aantal compartimenten maken, dat het onderhavige onderzoek een veelheid van aspecten bevat. De belangrijkste hiervan zijn van hydro(geo)logische, procestechnologische, limnologische, biogeochemische en hydrogeochemische aard.

2.3 Beschrijving van de 7 systemen van duininfiltratie met vóór- en nazuivering

Ter bevordering van de overzichtelijkheid en vergelijkbaarheid wordt in deze paragraaf de aangekondigde informatie grotendeels in tabellen ondergebracht. Een uitvoeriger tekstuele uitleg en meer details met betrekking tot 5 van de 7 infiltratiegebieden afzonderlijk zijn in het desbetreffende deelrapport macroparameters te vinden. Daarvoor in de plaats wordt men hier op saillante verschillen gewezen in de systemen van duininfiltratie, alsmede in de toegepaste voor- en nazuivering.

2.3.1 Voorzuivering, herkomst oppervlaktewater en transport

De voorzuivering wordt gedefinieerd als de voorbehandeling van het oppervlaktewater vóór intrede in de eigenlijke infiltratiemiddelen in het duingebied. Zij geschiedt overal bij het innamepunt, behalve bij de LDM, waar dit in een speciaal bekken in het duingebied plaatsvindt. De hoofddoelstelling van voorzuivering is het bijdragen tot een optimaal functioneren van het infiltratiesysteem ten aanzien van het bereiden van water van gewenste kwaliteit op een veilige, betrouwbare en economisch verantwoorde wijze, met zoveel mogelijk beperking van ongewenste effecten op het milieu. In appendix A wordt hierop nader ingegaan door opsplitsing en nadere beschouwing van de huidige taken van voorzuivering. Tevens wordt hierin een algemeen historisch overzicht van voorzuivering gegeven, terwijl de functie van voorzuivering bij open infiltratie wordt beschreven aan de hand van een viertal "case-studies" in Nederland.

Zoals uit tabel 2.1 blijkt, zijn er nogal wat verschillen in start van infiltratie, herkomst, voorzuivering en transport van het kunstmatig geïnfiltreerde water in de 7 bestudeerde gebieden. Dit bevordert de onderlinge vergelijkbaarheid van kwaliteitsveranderingen bij duininfiltratie geenszins. Als meest op elkaar gelijkend kan de situatie bij het PWN, GW en de DWL van 1957 tot 1974 worden aangemerkt, en daarna die van het PWN en GW.

Uit tabel 2.1 volgt tevens, dat alleen al door een verandering van watersoort of voorzuivering de kwaliteit van het te infiltreren water in 6 van de 7 gebieden niet constant is geweest.

inf. gebied param.	PWN		GW		LDM		DNL		N.V.		WMZ		
start infiltratie	Castricum	Wijk aan Zee	Zandvoort	Katwijk	Scheveningen	Ouddorp	Haamstede						
	15-8-1957	1975	20-4-1957	1-4-1940	29-11-1955	18-5-1955	1-7-1978						
herkomst kunstmatig geïnfiltreerde water	Lekkanaal te Jutphaas# (WRK) en van 1974 tot juni 1981 circa 10 % IJsselmeerwater van Andijk (Andijk-rein)	Lekkanaal te Jutphaas# (WRK); sinds 18-6-1981 IJsselmeerwater van Andijk (WRK III)	Lekkanaal te Jutphaas# (WRK)	tot 1972 zij-sloot van Valkenburgse Watering, daarna tevens een zijarm van Wassenaarse Watering, beide in verbinding met Oude Rijn	tot 15-3-76 Lek te Berg-ambacht, daarna Afgedamde Maas te Brakel α	tot 23-6-72 Oude Nieuw-landse Watering (polderwater), daarna tevens Haringvliet 2 km O. van Volkerak-sluizen η	Haringvliet 2 km ten oosten van Volkerak-sluizen						
processtappen voorzuivering*:	WRK I	Andijk-rein	WRK I	WRK III	WRK tot '74-8	WRK na '74-8	Zuid	Noord	Lek-water	Maas-water	Pol-der-vliet-water	Haringvliet-water	Haringvliet-water
zeving	2		1		-	-	-	-	-	-	-	-	-
breekpuntchloring	3		-		-	-	-	-	-	-	-	-	-
FeSO ₄ -dosering	4		-		-	-	-	-	-	1 β	-	-	-
opslag	1		5		-	-	-	-	-	(2)	-	-	-
beluchting	zie		zie		-	-	-	-	1	-	-	-	-
sedimentatie	-		3		1;5	1	2		2	-	-	-	-
snelfiltratie	7		4		1	2	-	-	3	4	-	-	-
FeCl ₃ -dosering	GW		GW		-	3 γ	-	-	-	-	-	-	-
FeClSO ₄ -dosering	-		-		-	-	1		-	-	-	-	-
CaHCO ₃ -dosering	5		-		-	-	-	-	-	-	-	-	-
vlokvorming	6		2		-	4	-	-	-	-	-	-	-
NaOH-dosering	-		-		-	6 ε	-	-	-	-	-	-	-
act.koolfiltratie m	8		-		-	-	-	-	-	-	-	-	-
transportchloring	9 f		-		2 g	7 h	-	-	4 i	3;5 j	-	1 k	1 k
traject gesloten transportleiding	Jutph.+ verdeelv.+ Castricum (WRK I)	Andijk+ Cas-tricum	Jutph.+ verdeelv.+ Wijk a Z. (WRK I)	Andijk+ Wijk aZ (WRK III)	Jutphaas + verdeelv. (WRK I)	oude inlaat	inlaat vlieg-veld → noord	Berg-amb.+ Scheveningen	Brakel+ Berg-amb.+ Scheveningen	ON-wete-ring+ Ouddorp inf. gebied	Scheel-hoek+ Ouddorp	Scheelhoek+ Ouddorp+ Haamstede	
lengte in km	81	51	75	56	54	1.5	3	45	74	0.5	11.5	37	
open transport-leiding(en)	verdeelv. GW	-	verdeelv. GW	-	toevoersloten in duin-gebied	-	-	-	-	-	-	-	-
lengte in km	0.05	-	0.05	-	3.5-6.0	-	-	-	-	-	-	-	-

* = de nummering geeft de volgorde aan; # = thans Nieuwegein; α = in 1976 en 1977 nog met respectievelijk weinig en zeer weinig Lekwater bijgemengd; β = 10 mg/l Fe als FeSO₄, na 1980 5 mg/l; γ = 3 mg/l Fe als FeCl₃; δ = 10 mg/l Fe als FeClSO₄; ε = 10-15 mg/l; f = 0,08 mg/l ClO₂; g = 3 mg/l; h = 3 mg/l, vanaf 1976 beneden 10 °C geen; i = 3 mg/l, vanaf 1976 1,5 doch beneden 8 °C geen; j = 0,5 mg/l doch beneden 8 °C geen; k = 1 mg Cl₂/l, doch beneden 10 °C geen; m = vanaf 1978/79; n = gemiddeld over 1973-1978; 37 % polder- en 63 % Haringvlietwater. Tijdens de maanden mei tot en met september is het % Haringvlietwater circa 95 %

Tabel 2.1 - Overzicht van gegevens betreffende de start van infiltratie, herkomst, huidige voorzuivering en transport van het kunstmatig geïnfiltreerde water, van de 7 bestudeerde infiltratiegebieden

2.3.2 Duininfiltratie

Onder duininfiltratie wordt verstaan wat er in zijn totaliteit na het gesloten transport tot in het duingebied met het kunstmatig te infiltreren oppervlaktewater gebeurt, totdat het in de eerste nazuiveringstrap belandt. Dit betekent, dat achtereenvolgens het transport in de toevoersloten bij GW, het verblijf in infiltratiemiddelen en ondergronds, de terugwinning en het verblijf in leiding, kanaal of verzamelkom gerekend worden tot duininfiltratie.

Diverse aspecten van het systeem van duininfiltratie zijn gerubriceerd in tabel 2.2 met betrekking tot de 7 bestudeerde gebieden. Benadrukt wordt, dat het hier het systeem in zijn totaliteit betreft. De systemen vertonen op alle punten min of meer grote verschillen onderling, behalve ten aanzien van de periodiciteit sinds 1972 (alle continu). De systemen zijn in de loop der tijd op praktisch alle punten wel veranderd, hetgeen meer in detail in de betreffende deelrapporten macroparameters is vermeld. Het meest hieronder lijdt het infiltratiesysteem te Ouddorp van de WMZ, waardoor de interpretatie van kwaliteitsgegevens hier aanzienlijk bemoeilijkt is. Voor de situering van de infiltratiegebieden met terugwinningsmiddelen wordt naar fig. 2.3-2.9 verwezen. Voor de in tabel 2.2 opgenomen hydrologische aspecten en de geohydrologische profielen in fig. 2.10-2.15 dient ter toelichting hoofdstuk 4 van het basisrapport "Macroparameters" te worden geraadpleegd. In-serie-schakeling van infiltratiemiddelen komt veel voor bij het PWN, GW, LDM en de WMZ-Ouddorp. Bij de DWL worden bijna alle infiltratiemiddelen daarentegen via afzonderlijke vertakkingen van een pijpleiding gevoed (zie Bosch, 1965).

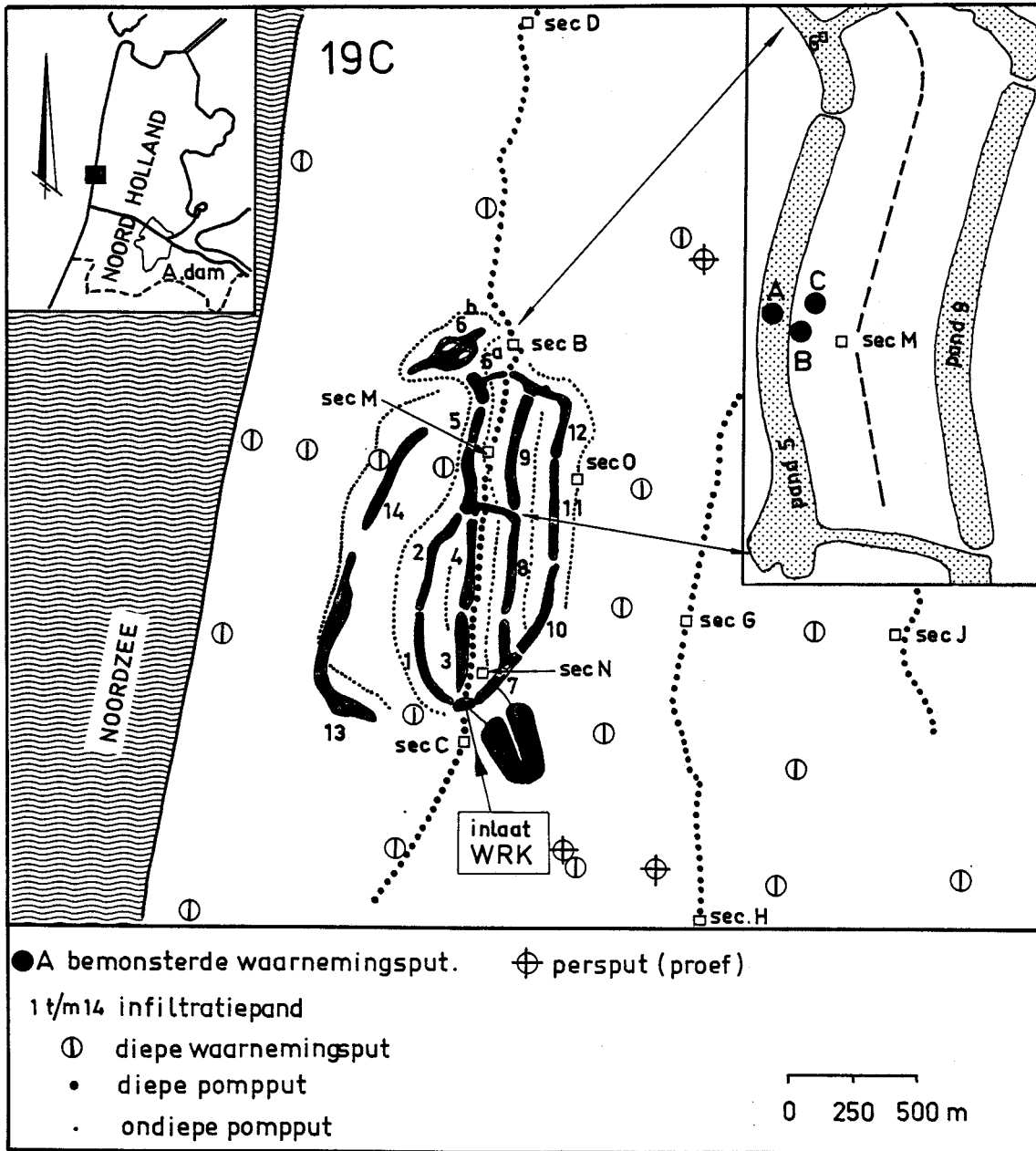
Onderscheiden worden in tabel 2.2 (a) infiltratiegeulen (GW; zie fig. 2.17) of panden (PWN), (b) infiltratiekanalen (WMZ-Ouddorp) en (c) infiltratiepannen (DWL; zie fig. 2.18) of vijvers (LDM en WMZ-Haamstede). De eerste zijn vele honderden meters lange, gegraven geulen met een breedte van 25-30 m, een geringe diepte (0,8-1 m) en tamelijk flauw oplopende oeverwaluds. Infiltratiekanalen onderscheiden zich hiervan door een hogere lengte/breedteverhouding en steiler oplopende oeverwaluds. De onder punt c genoemden zijn zeer grillig van

inf. gebied param.	PWN Castricum	PWN Wijk aan Zee	GW Zandvoort	LDM Katwijk	DWL Scheveningen	WMZ Ouddorp	WMZ Haamstede
configuratie van het infiltratiegebied ¹	14 panden, 400 m bij 30 m elk, 1 m diep zie fig. 2.3	11 panden, 500 m bij 15 m elk, 0,85 m diep zie fig. 2.4	40 geulen, 500-800 m bij 25-40 m elk, 0,8 m diep zie fig. 2.5	ca. 15 vijvers grillig van vorm en ca. 7 geulen; gemiddelde diepte = 1,8 m zie fig. 2.6	24 pannen, zeer grillig van vorm; gemiddelde diepte = 1,5 m zie fig. 2.7	2 kanalen van 1500 m, 1 van ca. 700 m lengte, alle 10 m breed, 1,5 m diep zie fig. 2.8	2 pannen, grillig van vorm; gemiddelde diepte = 1,5 m zie fig. 2.9
afstand tot kustlijn ^e mediaan hiervan	450-1200 m 900 m	300-850 m 550 m	800-2400 m 1400 m	600-2000 m 1100 m	350-1900 m 700 m	400-1150 m 700 m	520-620 m 1150-1370 m 570 en 1260 m
periodiciteit infiltratie	continu	continu	continu	tot 1963 discontinu ² , daarna continu	continu	tot 1972 discontinu ² , daarna continu	continu
mechanische verwijdering bodemslib	1-2 x/j tot 1972 f	geen	1 x/3 j tot 1974 g	1½ x/j	zelden (incidenteel)	zelden	geen
tot. natte opp. 1	1,8 · 10 ⁵ m ²	0,8 · 10 ⁵ m ²	8 · 10 ⁵ m ²	5 · 10 ⁵ m ²	10 · 10 ⁵ m ²	0,4 · 10 ⁵ m ²	0,2 · 10 ⁵ m ²
hoeveelheid geïnfiltr. (10 ⁶ m ³ /j)	20,3 * 16,6 **	5,4**	53,0 * 46,3 **	13,7 * 19,4 **	43,5 * 45,4 **	1,2 * 2,1 **	1,2**
te infiltreren kolom opp.water**	0,25 m/d	0,18 m/d	0,16 m/d	0,11 m/d	0,12 m/d	0,14 m/d	0,16 m/d
modale afstand* ondergronds (m)	circa 70	circa 40	81	circa 90	circa 65	100	70-150**
modale verblijftijd ondergronds*	70 d	40 d	90 d	70 d	70 d	135 d	70 d**
modale stroomsnelheid (m/d)*	1,00	1,00	0,90	1,29	0,93	0,74	ca. 1,5**
bijmenging regenwater ¹	0,9 %	1,2 %	1,4 %	2,1 %	1,8 %	1,5 %	1,4 %
bijmenging ondiep duinwater*	2 %	4 %**	13 ± 2 %	circa 11 %	circa 8 %	18 %**	7 %**
bijmenging diep duinwater*	< 16 %* < 26 %**	16 %**	8 %* 0,7 %**	13 %* 8 %**	11 %* 6,5 %**	30 %* 14 %**	50 %**
betrokken watervoerende pakketten (WVP) zie figuur 2.10-2.16	1e WVP=MV (=3 m+NAP) tot 5 m -NAP; 2e WVP=20-35 m-NAP	1e WVP = MV (= 6,3 m+NAP) tot 8 m-NAP	1e WVP= MV tot 5 m-NAP	1e WVP = MV tot 2 m-NAP	1e WVP = MV tot 6 m-NAP 2e WVP = 10-40 à 80 m-NAP	1e WVP = MV tot 2 m-NAP	1e WVP = MV tot 10 m-NAP
betrokken slecht of matig doorlatende lagen/pakketten (SDP) (respectievelijk (MDP) zie figuur 2.10-2.16	veen op 0-1 m+NAP (zie fig. 2.1); 1e SDP = van 5 tot 20 m-NAP	1e SDP = van 8 tot 19,5 m-NAP	veen op 1-3 m+NAP (zie fig. 2.1); 1e SDP = van 5 tot 23 m-NAP	1e SDP (veenhoudend) van 2-4 m-NAP	- veen op ± NAP + - SDP 1a van 2-4 m-NAP + - SDP 1b van 6-10 m-NAP	1e SDP van 2-4 m-NAP	veen op 1 m-NAP aan oostkant Driehoek; 1e SDP van 10-15 m-NAP
terugwinning geïnfiltrerd water d.m.v.:	750 pompputten in 1e WVP en 1e SDP en 50 pompputten in 2e WVP zie fig. 2.3	504 pompputten in 1e WVP zie fig. 2.4	kanalen en drains op 0-1 m+NAP zie fig. 2.5	69 pompputten in 1e WVP, drains op NAP en kanalen zie fig. 2.6	drain op NAP (afnemend) en pompputten in 1e en 2e WVP (toenemend) zie fig. 2.7	drains op NAP zie fig. 2.8	35 pompputten in 1e WVP zie fig. 2.9
open verzamelbekken vóór nazuivering	nee	nee	ja	westelijk: nee oostelijk: ja	ja	nee	nee

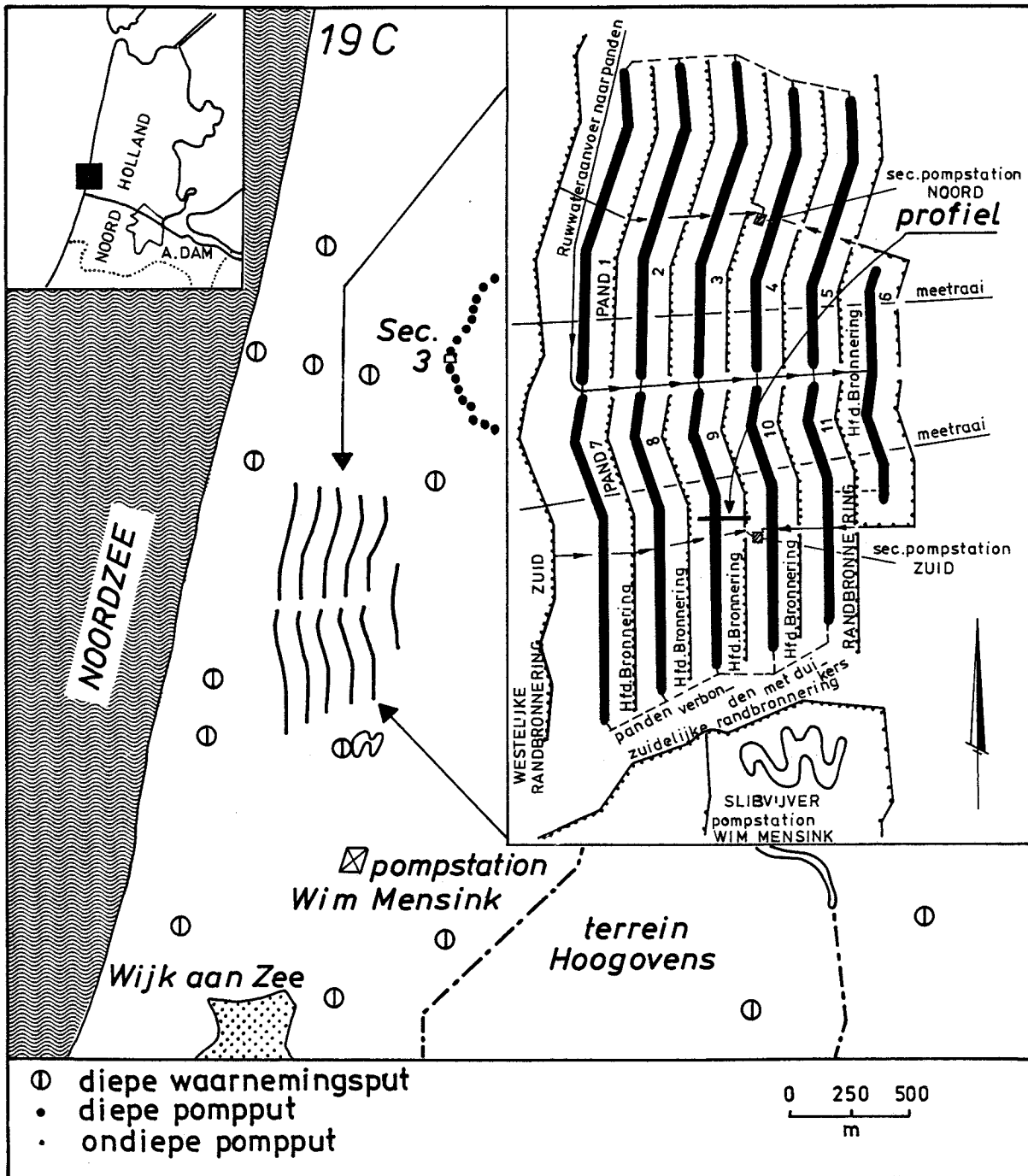
* = gemiddeld over 1969-1978; ** = gemiddeld over 1979-1981; ¹ = sinds 1965 (GW), 1972 (PWN-Castricum), 1975 (PWN-Wijk aan Zee en DWL), 1976 (LDM) en 1978 (WMZ); ² = alleen 's-winters infiltratie; a = gemiddelde 1969-1975; b = alleen Sec.M; + = zie fig. 2.1; WVP = watervoerend pakket; SDP = slecht doorlatend pakket; MDP = matig doorlatend pakket; MV = maaiveld; e = kortste afstand van infiltratiemiddelen tot de voet van de zeereep; f = daarna niet meer; g = daarna niet meer, behalve in 1982

Tabel 2.2 - Overzicht van gegevens betreffende het systeem van duininfiltratie van de 7 bestudeerde infiltratiegebieden

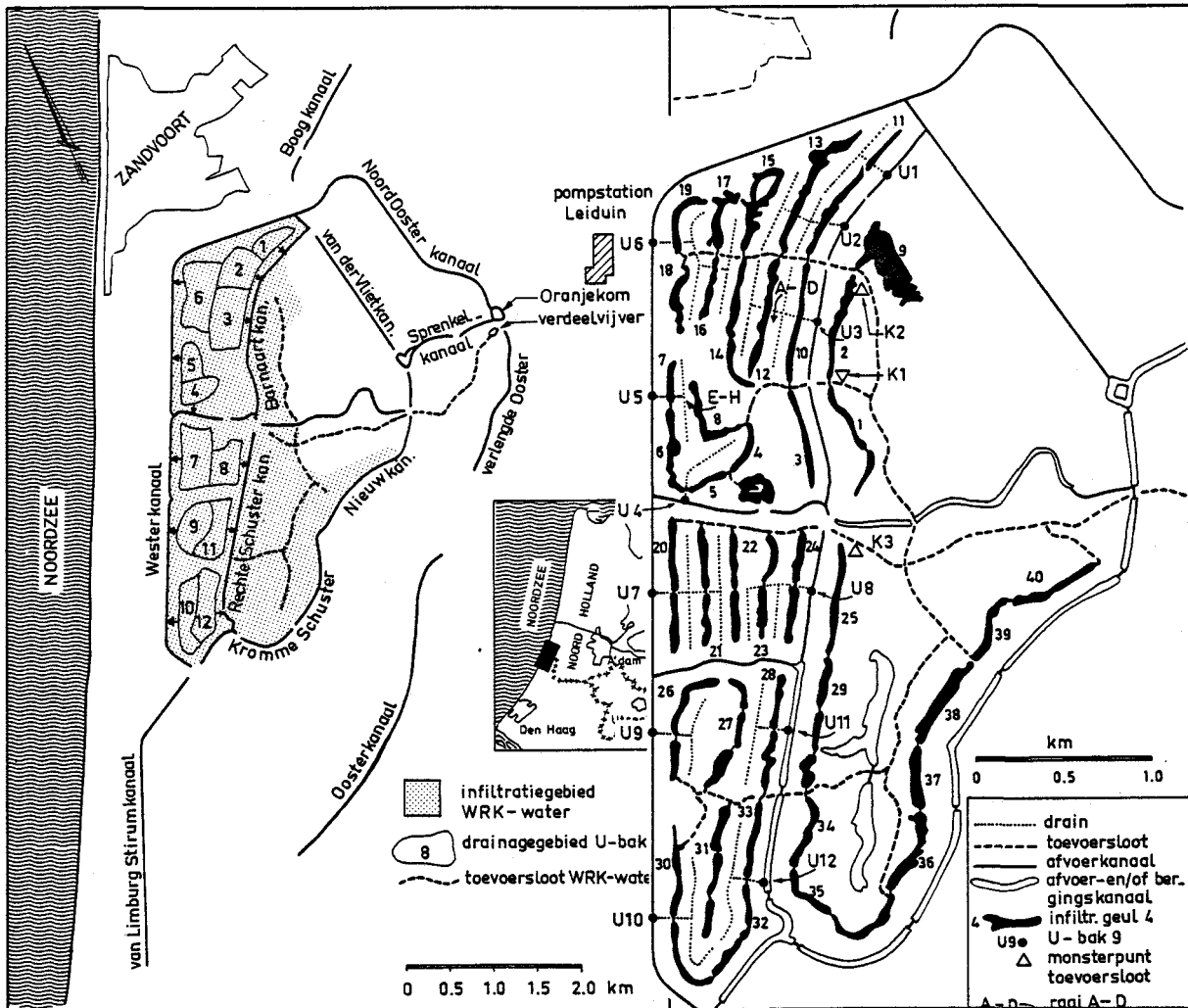
vorm en diepte (1-4 m), dikwijls omdat het vroeger duinpannen waren.



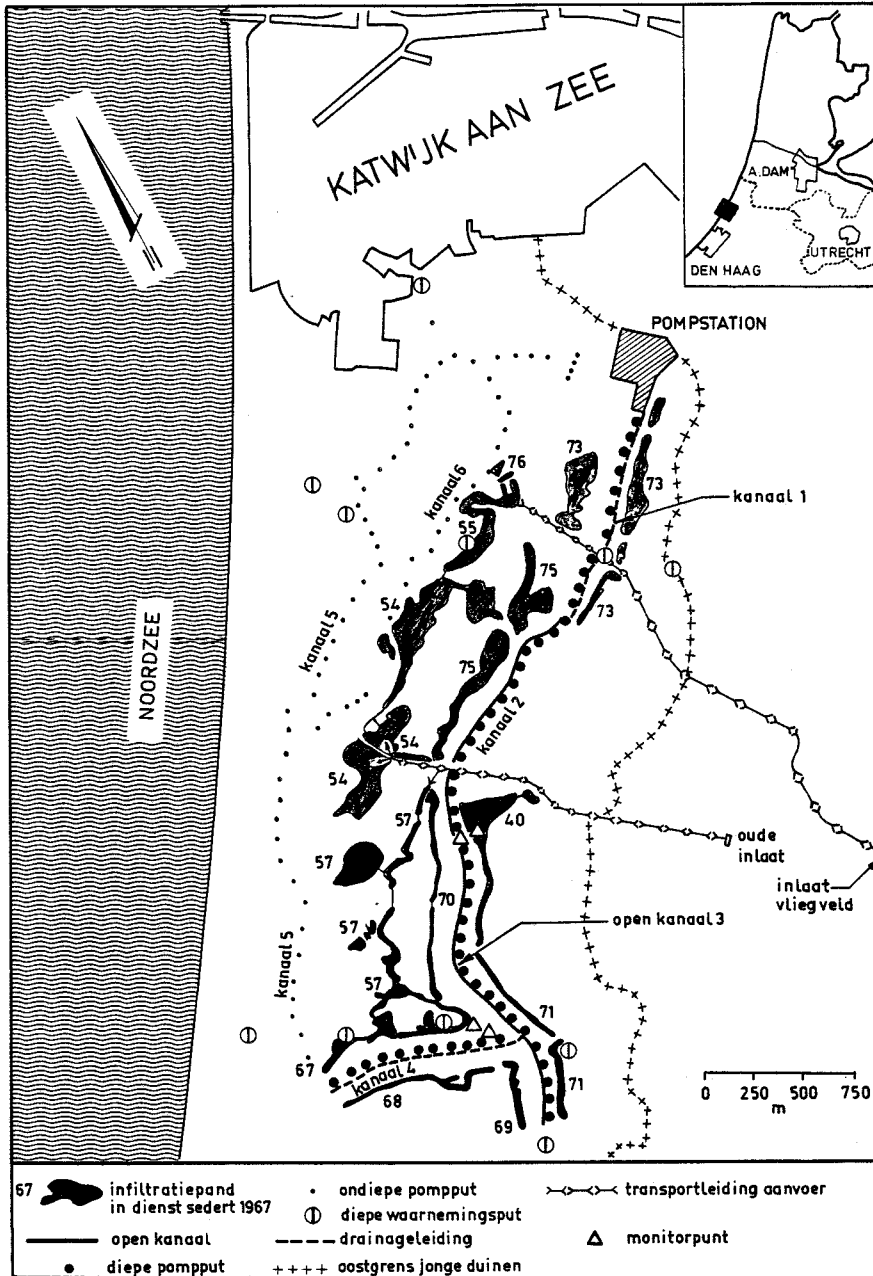
Figuur 2.3 - Ligging van het rivierwater-infiltratiegebied ten westen van Castricum (onder beheer van het PWN) en van pand 5, Sec.M en bemonsterde putten in detail



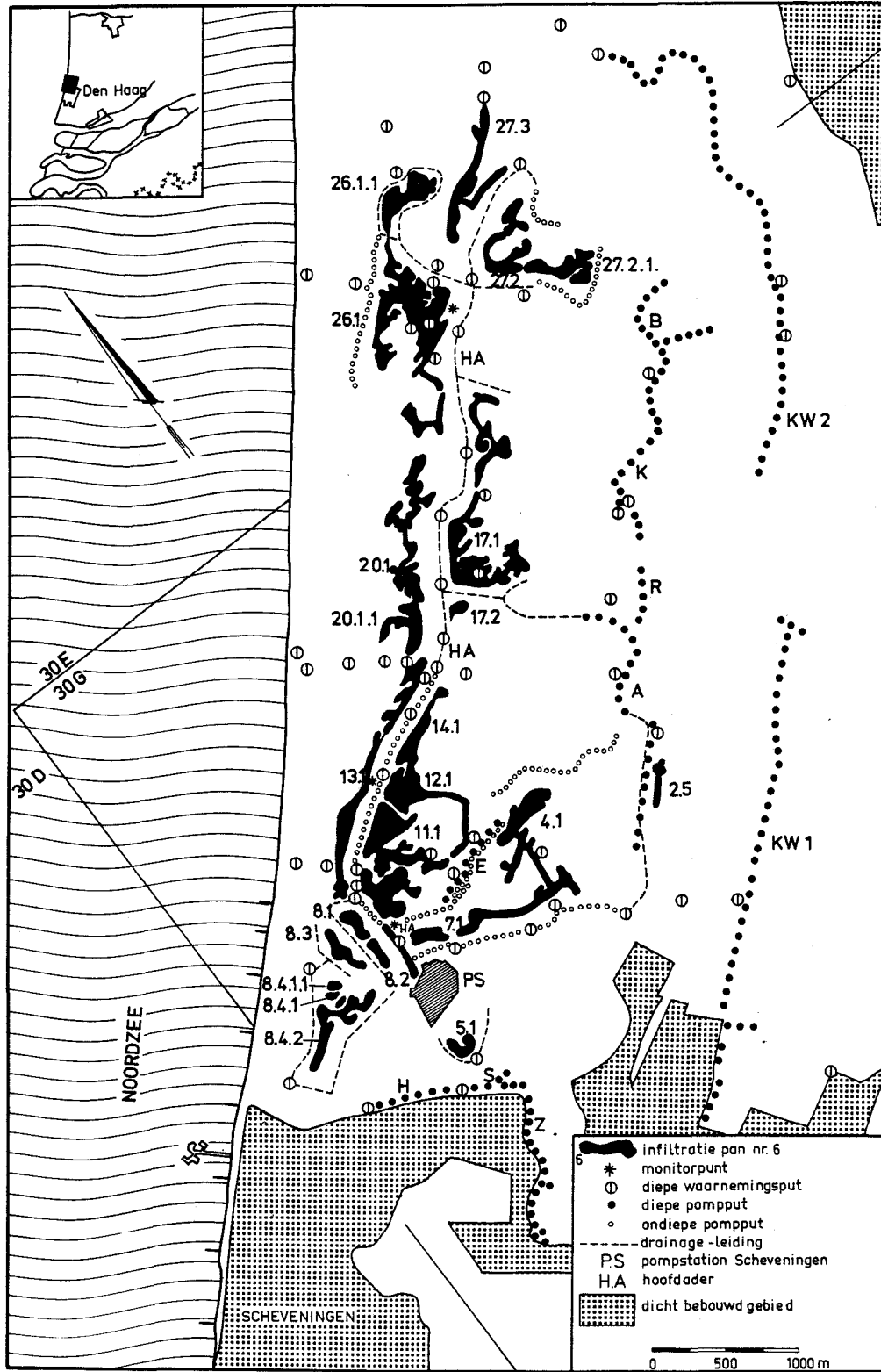
Figuur 2.4 - Ligging van het rivierwater-infiltratiegebied ten noorden van Wijk aan Zee (onder beheer van het PWN)



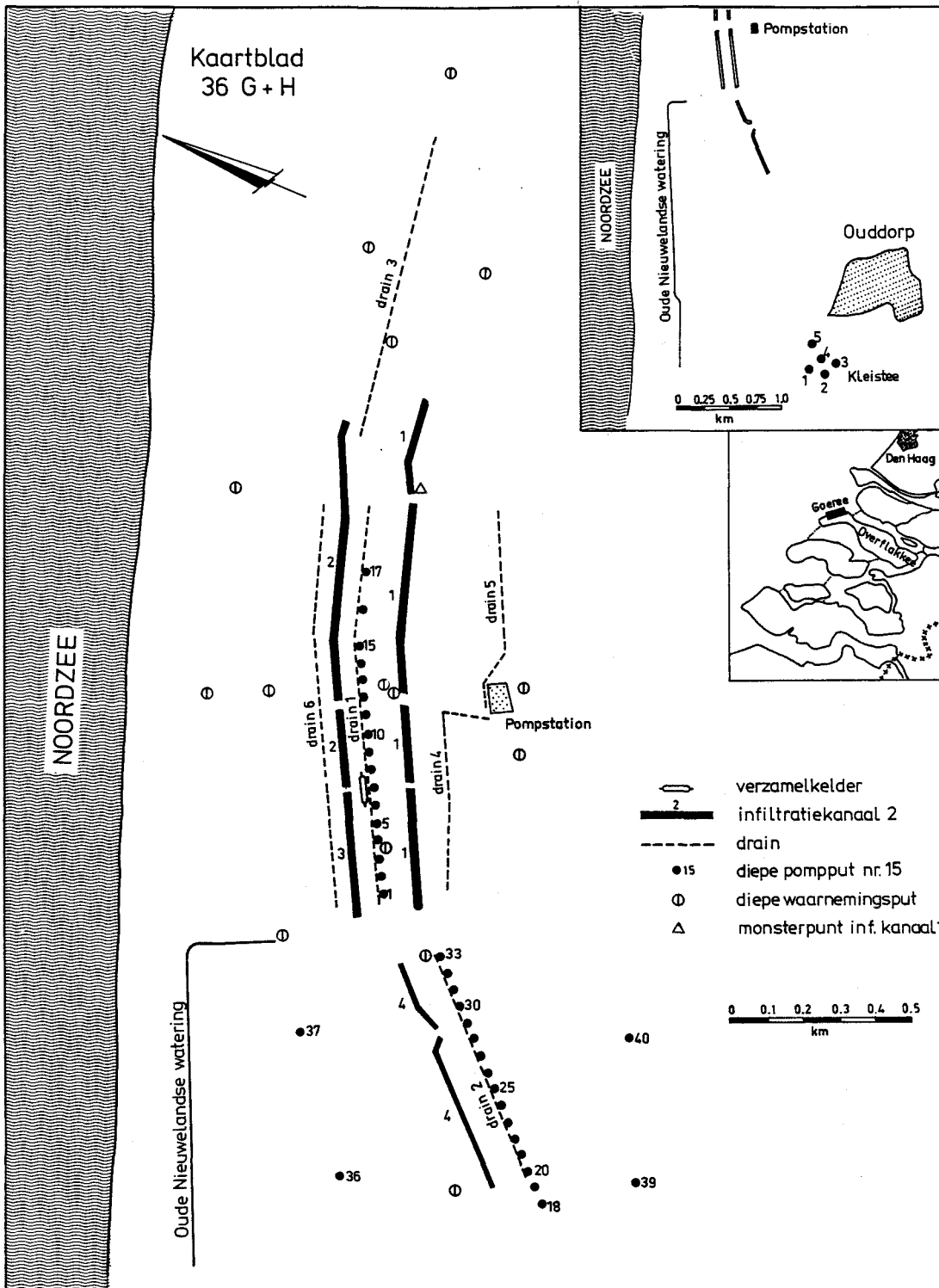
Figuur 2.5 - Ligging van het rivierwater-infiltratiegebied ten zuiden van Zandvoort (onder beheer van GW), met onder andere de verdelvijver, toevoersloten, infiltratiegeulen, drains, U-bakken, kanalen en Oranjekom aangegeven



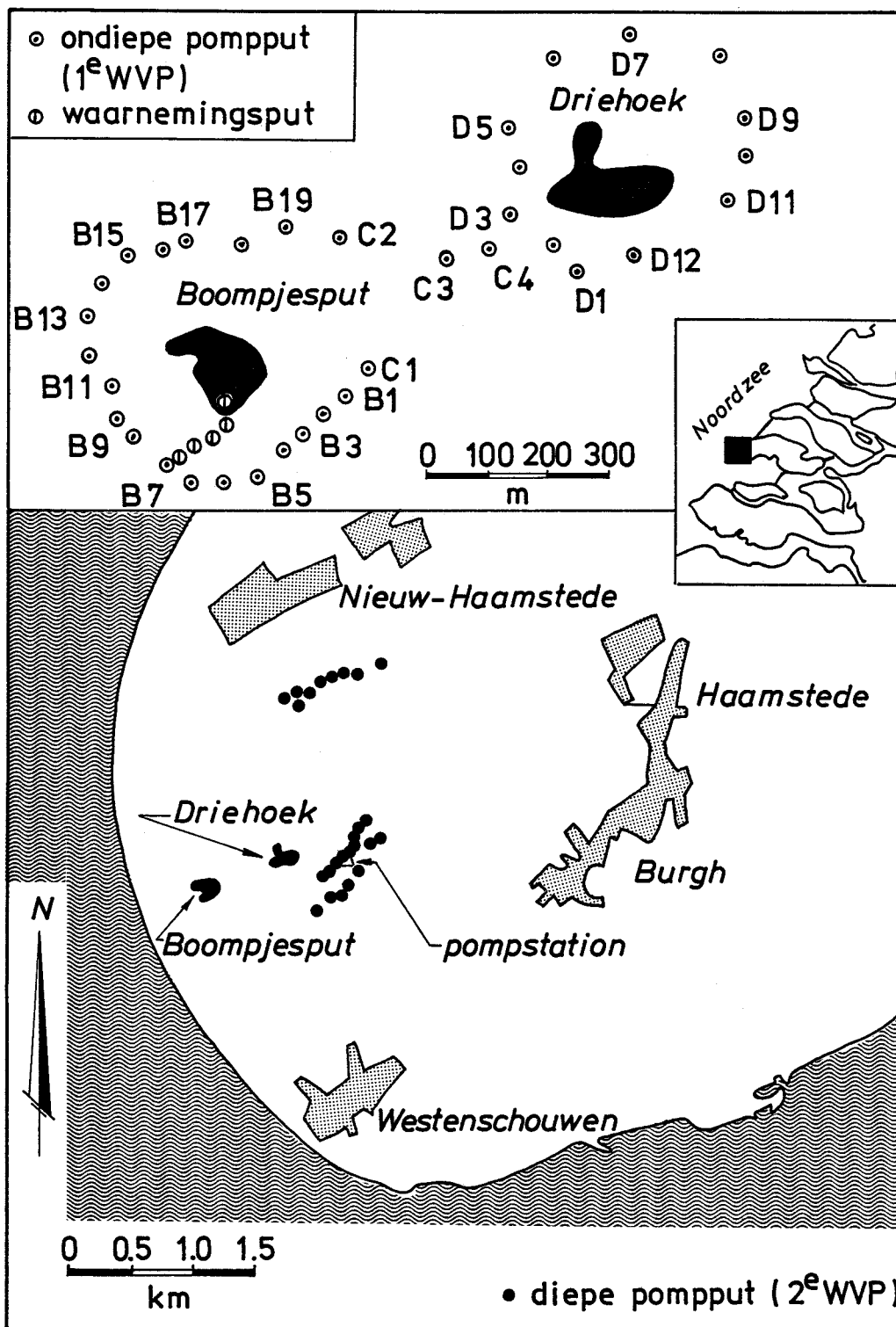
Figuur 2.6 - Ligging van het waterwingebied van de LDM ten zuiden van Katwijk aan Zee, met onder andere de infiltratiepanden, winningsmiddelen en bemonsteringspunten aangegeven



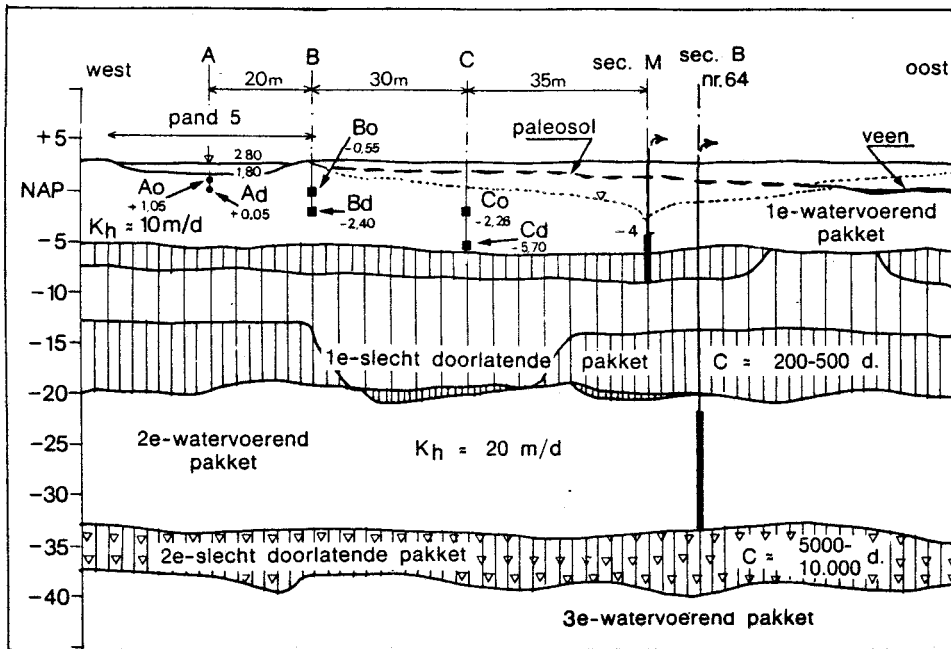
Figuur 2.7 - Ligging van het waterwingebied van de DWL ten noorden van Den Haag, met onder andere de pannen, winningsmiddelen en bemonsteringspunten bij pan 13 en 26 en bij de HA aangegeven



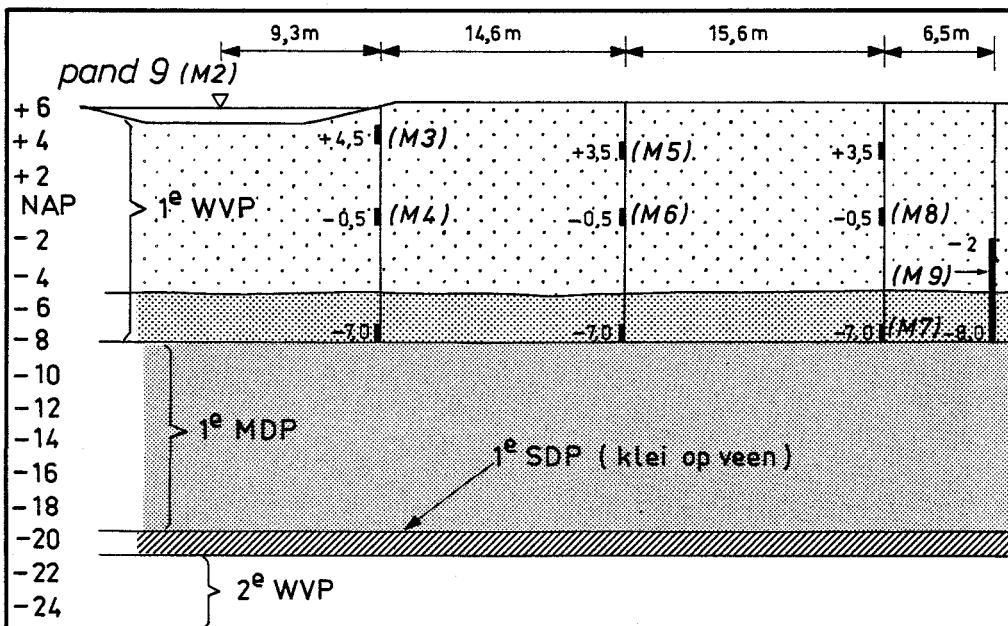
Figuur 2.8 - Ligging van het waterwingebied van de WMZ ten noord-westen van Ouddorp op Goeree, met onder andere de infiltratiekanalen en winningsmiddelen aangegeven



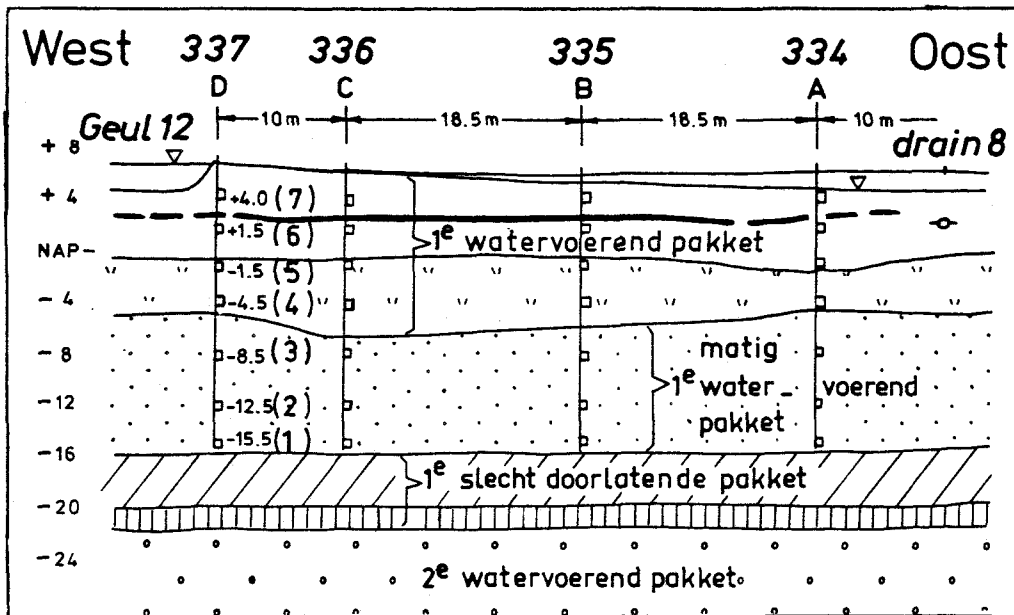
Figuur 2.9 - Ligging van het Haringvlietwater - infiltratiegebied bij Haamstede (onder beheer van de WMZ)



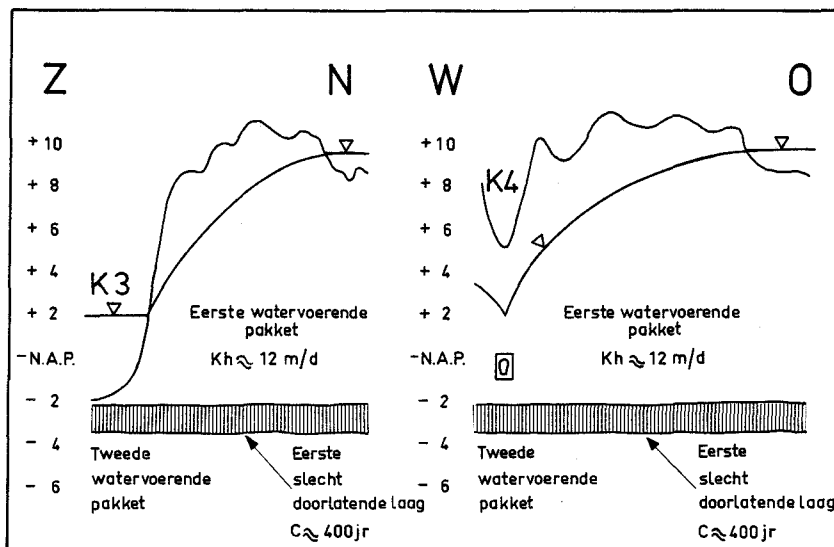
Figuur 2.10 - (Geo)hydrologisch profiel loodrecht op pand 5 en Sec.M met de positie van waarnemings- en pomputten (infiltratiegebied PWN-Castricum)



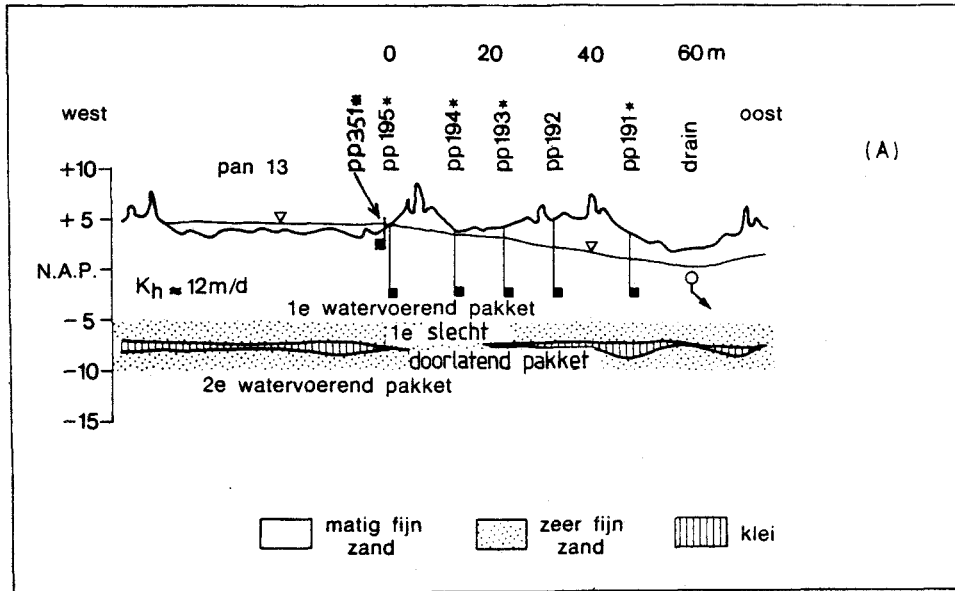
Figuur 2.11 - (Geo)hydrologisch profiel loodrecht op pand 9 en de oostelijk ervan gelegen hoofdbronnering met de positie van waarnemings- en pomputten (infiltratiegebied PWN-Wijk aan Zee)



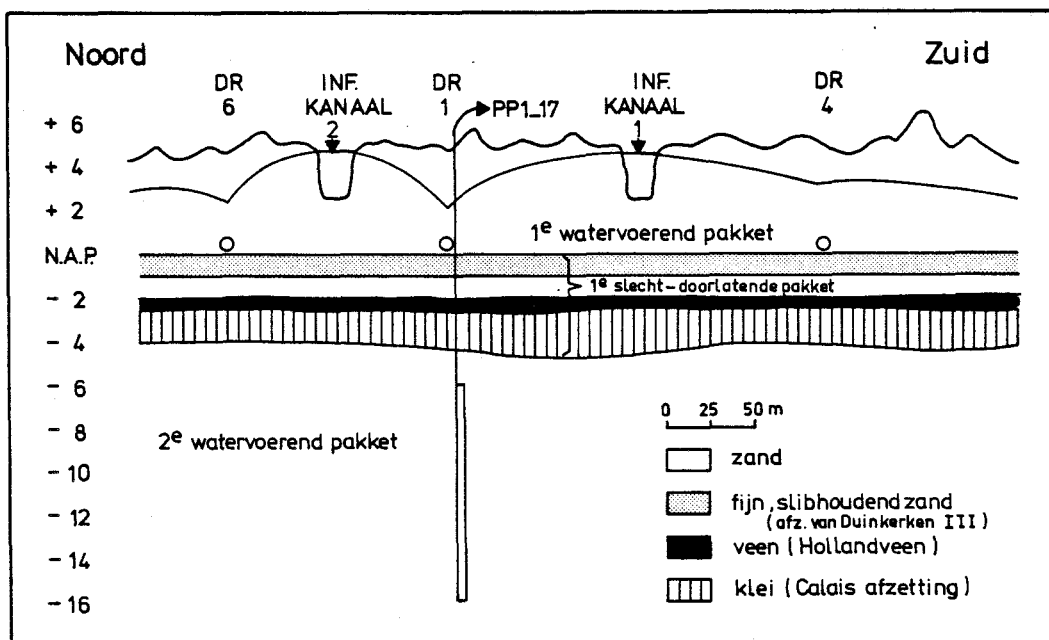
Figuur 2.12 - (Geo)hydrologisch profiel loodrecht op infiltratiegeul 12 en drain 8 behorende bij U3 met waarnemingsputten 334-337 (ook A-D genoemd) in het infiltratiegebied van GW



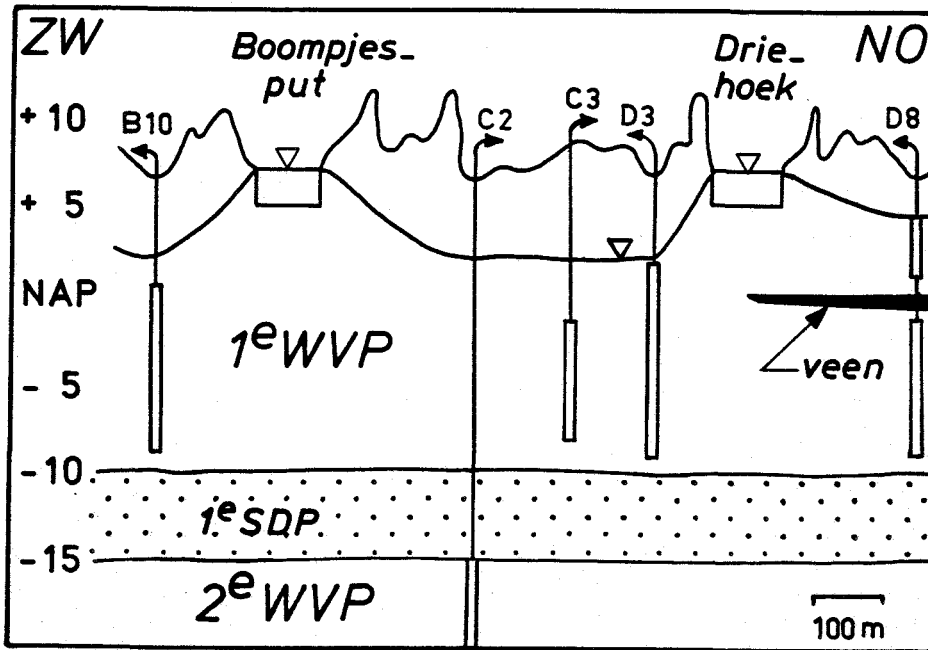
Figuur 2.13 - (Geo)hydrologisch profiel van infiltratiepand tot drainagekanaal 3 en 4 in het infiltratiegebied van de LDM



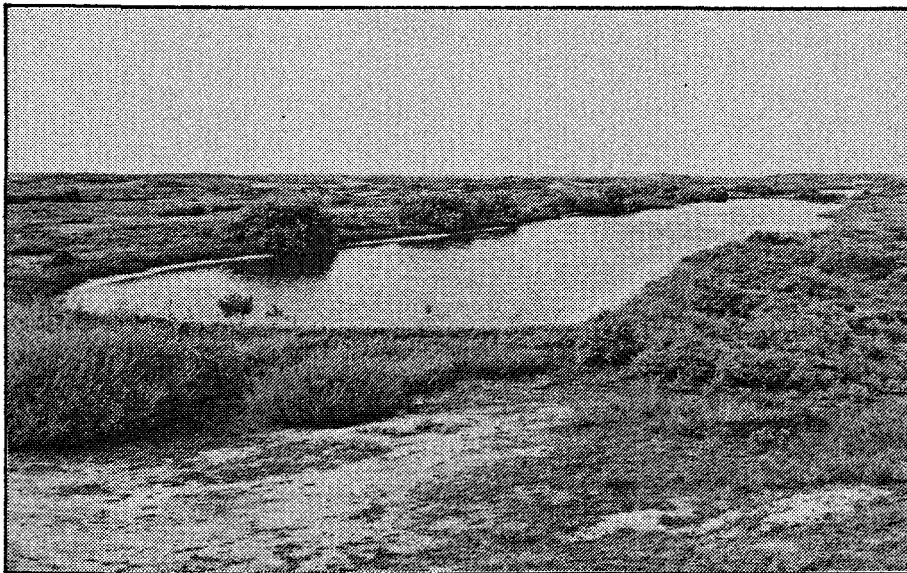
Figuur 2.14 - (Geo)hydrologisch profiel van pan 13 tot drain via pp 351 en 195-191 in het infiltratiegebied van de DWL 's-Gravenhage. De met een ster gemerkte putten worden ongeveer maandelijks bemonsterd. De drain is sinds 1981 door pompputten vervangen



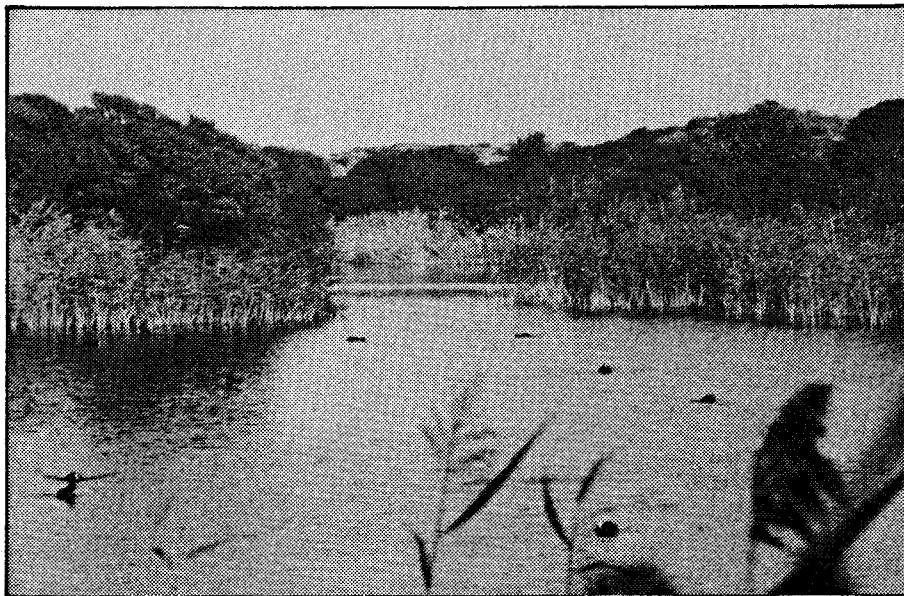
Figuur 2.15 - (Geo)hydrologisch profiel loodrecht op de lengteas van de infiltratiekanalen 1 en 2 in het infiltratiegebied bij Ouddorp, van de WMZ



Figuur 2.16 - (Geo)hydrologisch profiel over de Boompjesput en Driehoek in het infiltratiegebied bij Haamstede van de WMZ



Figuur 2.17 - Een infiltratiegeul van GW
(foto G. Vetten)



Figuur 2.18 - Infiltratiepan 26.1 van de DWL
(foto: drs. E.A.J. Wanders; DWL)

	PWN		GW Zandvoort	LDM Katwijk	DWL Scheveningen	N.V. WMZ	
	Castricum	Wijk a. Zee				Ouddorp	Haamstede
beluchting	1	1	2	3	2;4	1	1
ozonisatie	-	-	-	1 f	-	3 k	3
NaOH-dosering	-	4	1 c	-	-	-	-
act.koolfiltr.	-	-	-	-	-	4 l	4 n
poederkooldos.	2 a ¹	2 a ²	3 d	2 g	1 i	-	-
snelfiltratie	3	3	4	4	3	2	2
langz.zandfiltr.	-	-	5	5	5	-	-
chloring	4 b	4 b	6 e	6 h	6 j	5 m	-
fluoride-dos.	-	-	B	-	-	C	-

a¹ = sinds 1960 (4 mg/l); a² = 4 mg/l; b = 0,3 mg/l ClO₂; c = sinds 18-6-1974 (tot pH = 8.1); d = sinds juni 1958 (circa 4 mg/l); e = 0.8 mg Cl/l in CBL tot 1983, daarna geen; f = sinds 1978 (1,5 mg O₃/l); g = sinds 1977 (4-7 mg/l); h = mg Cl/l in CBL; i = sinds 1955 (eerste jaren 1,5 mg/l, geleidelijk verhoogd tot 8 mg/l); j = alleen indien noodzakelijk; k = sinds november 1976 (2-4 mg O₃/l); l = sinds 1975; m = 0,25 mg Cl/l in CBL; n = sinds 1979; B = van april 1972 - 20 februari 1974, tot 1.1 mg/l F; C = van 1972 tot 1974 tot circa 1 mg/l F; CBL = chloor-bleekloog

Tabel 2.3 - Overzicht van de nazuivering van het met duinwater bijgemengde rivierwater bij het PWN (pompstation Castricum en Wijk aan Zee), GW, LDM, DWL en WMZ (pompstation Ouddorp en Haamstede). De nummering geeft de volgorde van de zuiveringstrappen aan

2.3.3 Nazuivering

Onder nazuivering wordt verstaan de behandeling van (terug)gewonnen water volgens één of meer niet-natuurlijke processen. De nazuivering van het met duinwater bijgemengde rivierwater geschiedt bij de 7 bestudeerde bedrijven volgens het in tabel 2.3 gegeven overzicht. Hieruit blijkt, dat de huidige volgorde van afnemende nazuivering ruwweg is die bij LDM/ WMZ, DWL/GW en PWN. Deze volgorde hangt onder andere samen met verschillen in de kwaliteit van het te infiltreren water en samenstelling van de ondergrond van de infiltratiegebieden. Tevens kan worden opgemerkt, dat de nazuivering in de loop der tijd uitgebreid is.

2.4 Bemonsteringspunten

Te onderscheiden bemonsteringspunten zijn in volgorde van input tot output: de bron (van het te infiltreren oppervlaktewater), de input (= de bron na voorzuivering of de bron, indien er geen voorzuivering plaatsvindt), het infiltratiemiddel, een bodempassage detail (= zeer lokale opname via een waarnemingsput), een bodempassage subsysteem (= een opname van een bepaald deelgebied via een reeks putten of via een zeer lange drain), het totale duininfiltratiesysteem (meestal het ruwe water, dus inclusief bijmenging van duinwater), een nazuiveringsdetail (bijvoorbeeld het voorfiltraat) en de output (= het drinkwater, dus geïnfilteerd oppervlaktewater + duinwater na de nazuivering).

De bij deze studie betrokken bemonsteringspunten zijn grotendeels gesitueerd in het infiltratiegebied van de DWL, GW en het PWN bij Wijk aan Zee. Meer informatie over de bemonsteringspunten in de

eerste twee infiltratiegebieden is te vinden in het basisrapport "Macroparameters".

2.5

Literatuur

Bosch, H., 1965; "Constructie van infiltratie- en winningsmiddelen".

Water (49), p. 205-211 en 224-230

Stuyfzand, P.J., 1983; "Kwaliteitsveranderingen van voorgezuiverd Lekwater bij kunstmatige infiltratie in het duingebied ten westen van Castricum".

Deelrapport 1 behorende bij Stuyfzand (1985), KIWA-SWE 366, 86 p.

Stuyfzand, P.J., 1984a; "Kwaliteitsveranderingen van voorgezuiverd Lekwater bij kunstmatige infiltratie in de Amsterdamse Waterleidingduinen ten zuiden van Zandvoort".

Deelrapport 2 behorende bij Stuyfzand (1985), KIWA-SWE 367, 189 p.

Stuyfzand, P.J., 1984b; "Kwaliteitsveranderingen van boezemwater bij kunstmatige infiltratie in het wingebied van de Leidsche Duinwater Maatschappij ten zuiden van Katwijk aan Zee".

Deelrapport 3, behorende bij Stuyfzand (1985), KIWA-SWE 368, 56 p.

Stuyfzand, P.J. 1984c; "Kwaliteitsveranderingen van voorgezuiverd Lek- en Maaswater bij kunstmatige infiltratie in het wingebied van de Duinwaterleiding van 's-Gravenhage".

Deelrapport 4, behorende bij Stuyfzand (1985) KIWA-SWE 369, 223 p.

Stuyfzand P.J., 1984d; "Kwaliteitsveranderingen van Haringvliet- en polderwater bij kunstmatige infiltratie in het duingebied ten noordoosten van Ouddorp, Goeree-Overflakkee".

Deelrapport 5 behorende bij Stuyfzand (1985), KIWA-SWE 370, 72 p.

Stuyfzand, P.J., 1985; "Kwaliteitsveranderingen van oppervlaktewater bij kunstmatige infiltratie in de Nederlandse kustduinen: Macroparameters".

Basisrapport behorende bij 5 deelrapporten (Stuyfzand 1983, 1984a-d), KIWA-mededeling nr. 82 in voorbereiding

3 ANORGANISCHE MICROVERONTREINIGINGEN

3.1 Inleiding

In dit hoofdstuk wordt ingegaan op het gedrag van een aantal anorganische microverontreinigingen (zie tabel 3.1) bij duininfiltratie, inclusief de vóór- en nazuivering. De keuze van de stoffen is gebaseerd op de beschikbaarheid van gegevens, die voortvloeit uit de mate van voorkomen in Rijn- en Maaswater en de noodzaak van verwijdering vanwege de schadelijkheid voor de drinkwaterconsument. Dit laatste is tot uiting gebracht door het stellen van normen voor de gehalten van deze stoffen in drinkwater in verschillende internationale verbanden met name de EG (EG, 1980). Deze normen zijn opgenomen in het nieuwe Waterleidingbesluit (1984) en vermeld in tabel 3.1.

In deze tabel zijn tevens gegevens over de meest voorkomende valenties (met kale zuurstofcomplexvormen) en verwijderingsmogelijkheden ondergebracht. Bij de bepaling van gemiddelde waarden zijn uitkomsten kleiner dan de onderste analysegrens meegerekend als de helft van de opgegeven onderste analysegrens.

Dit betekent, dat gemiddelde waarden, die zijn verkregen met een relatief groot aantal van deze uitkomsten, behept zijn met een relatief grote fout. In die gevallen zou het beter zijn een onder- en bovengrens voor het gemiddelde aan te geven, hetgeen in dit rapport niet is gedaan. Bij de interpretatie moet rekening worden gehouden met deze geïntroduceerde onnauwkeurigheid, die gezien de zeer lage niveau's ten opzichte van de normen acceptabel is.

Achtereenvolgens wordt ingegaan op de monstervoor-

behandeling en analyse (par. 3.2), de kwaliteit van het aangevoerde oppervlaktewater (par. 3.3) en bijgemengde wateren (par. 3.4), een evaluatie van de kwaliteitsveranderingen bij duininfiltratie (par. 3.5) en een eventueel hieraan gekoppelde ophoping in bodemslib en zand (par. 3.6), een interpretatie van de effecten van duininfiltratie (par. 3.7), een vergelijking van de effecten van duininfiltratie met die van voor- en nazuivering (par. 3.8), conclusies (par. 3.9) en aanbevelingen voor nader onderzoek (par. 3.10).

meest voorkomende valenties	verwijderingsmogelijkheden	drinkwater norm EG/NED	
		RN	MTC
Be Be ⁺⁺	BeO, Be(OH) ₂ , ad	-	-
V V ³⁺ , VO ₂ ⁺ , VO ₃ ⁻	ad ₁ , bio	-	-
Cr Cr ⁺⁺⁺ , CrO ₄ ⁻⁻⁻ , Cr ₂ O ₇ ⁻⁻⁻	Cr ₂ O ₃ , Cr(OH) ₃ , ad	-	50
Co Co ⁺⁺	CoCO ₃ , CoS, ad ₁	-	-
Ni Ni ⁺⁺	NiCO ₃ , NiS, ad ₁ , γ	-	50
Cu Cu ⁺⁺	CuS, CuO, β, ad	100	-
Zn Zn ⁺⁺	ZnS, ZnCO ₃ , ad	100	-
As AsO ₂ ⁻ , AsO ₄ ⁻⁻⁻	ad ₁	-	50
Se SeO ₃ ⁻	Se, bio, δ	-	10
Cd Cd ⁺⁺	CdS, CdCO ₃ , ad	-	5
Hg Hg ₂ ⁺⁺ , Hg ⁺⁺	Hg, HgS, vap, bio, ad, ε	-	1
Pb Pb ⁺⁺	PbS, PbSO ₄ , PbCO ₃ , π, ad	-	50
CN CN ⁻	VAP, omzetting en precip [*]	-	50
Br Br ⁻	geen (in dit systeem)	-	-

ad = adsorptie; ad₁ = adsorptie vooral aan Fe(oxy)hydroxide en MnO₂; vap = verdamping; bio = opslag in biomassa; β = Cu₂(OH)₂CO₃ en Cu₃(OH)₂(CO₃)₂; γ = Ni-silicaten; δ = Fe₂(SeO₃)₃ en Fe₂(OH)₄SeO₃; ε = Hg-carbonaten en Hg-fosfaten; π = Pb(OH)₂ en Pb₃(PO₄)₂; * = zie Lagas et al, 1981;

Tabel 3.1 - Lijst van de onderzochte parameters en hun meest voorkomende valenties (met kale zuurstof-complexvormen; gebaseerd op Hem, 1970; Faust & Aly, 1981), verwijderingsmogelijkheden (gebaseerd op Hem, 1970; Bolt & Bruggenwert, 1976; Faust & Aly, 1981) en drinkwaternormen (in µg/l; naar EG, 1980 en overgenomen in Waterleidingbesluit 1984). RN = richtniveau; MTC = maximaal toelaatbare concentratie

3.2 Monstervoorbehandeling en analyse

Gegevens met betrekking tot de monstervoorbehandeling, analysemethoden en onderste analysegrens (\approx analytische dupliceerbaarheid) van anorganische microverontreinigingen zijn ondergebracht in tabel 3.2. Vóór 1970-1972 zijn deze elementen en CN niet routinematig onderzocht. Het is van groot belang zich te realiseren, dat de watermonsters niet gefiltreerd zijn met als doel om het totaal gehalte te meten. Een groot deel van de spoormetalen bevindt zich immers aan/in gesuspendeerd materiaal (zie fig. 3.1), dat in meer of mindere mate meegeanalyseerd wordt. De mate is sterk afhankelijk van onder andere de analysemethode (in geval van AAS-grafietoven wordt ook geadsorbeerd en ingesloten materiaal, behalve in het silicaatskelet opgesloten materiaal, meegeanalyseerd), het beschouwde element, de hoeveelheid slib en de wijze van ontsluiting. Waarschijnlijk speelt slib in de grondwatermonsters nauwelijks een rol, gezien de ouderdom van de meetsystemen, waardoor het slibgehalte meestal tot nul nadert. Voor de aangevoerde wateren en watermonsters uit infiltratiemiddelen, drainagekanalen en verzamelbekkens (bijvoorbeeld de Oranjekom) geldt het tegendeel. Op de problemen bij bemonstering van grondwater via waarnemingsputten (ook) ten aanzien van spoorelementen wordt nader ingegaan door Stuyfzand (1983).

	Analysemethode (sinds 1979)	onderste analyse- grens (µg/l)	voorbehandeling		
			filtratie	aanzuring β	Stand add.
Be	AAS-grafietoven	0,05	-	+	+ (GW)
V	AAS-grafietoven	1-2,5	-	+	-
Cr	AAS-grafietoven	0,5	-	+	-
Co	AAS-grafietoven*	1,0	-	+	-
Ni	AAS-grafietoven*	1,0	-	+	-
Cu	AAS-grafietoven*	1,0	-	+	-
Zn	AAS-vlam	3-5	-	+	-
As	AAS-grafietoven	1	-	+	-
Se	AAS-grafietoven	1-2,5	-	+	-
Cd	AAS-grafietoven*	0,1	-	+	+ (GW)
Hg	AAS-koude damp α	0,1	-	+	-
Pb	AAS-grafietoven*	1,0	-	+	+
CN	colorimetrisch	1,0	-	-	-
Br	oxydimetrisch	10	-	-	-

* vóór januari 1981 met vlam bij DWL, waarbij extractie met methyl-iso-buthylketon (MIBK); α = voorbehandeling met broom; β = met HNO₃ tot pH = 2 (Hg bij GW: pH = 1)

Tabel 3.2 - Monstervoorbehandeling, analysemethoden en onderste analysegrens van spoormetalen bij de duinwaterleidinglaboratoria PWN, GW, DWL en WMZ

3.3

Het aangevoerde oppervlaktewater

Concentraties van spoormetalen in de door het PWN, GW, LDM, DWL en WMZ aangevoerde wateren zijn in tabel 3.3 weergegeven. De verlaging in gehalte aan spoormetalen als gevolg van de toevoeging van de voorzuiveringstrap coagulatie en snelfiltratie is evident bij het PWN, GW en de DWL. Bedacht moet worden evenwel, dat de kwaliteit van het Lekwater in de loop der jaren tevens is verbeterd (zie fig.

3.2) en dat de DWL is overgeschakeld van Lek- op Maaswater. Het door de LDM aangevoerde boezemwater en het Haringvlietwater ingepompt door de WMZ vertonen tegenwoordig iets hogere gehalten aan spoor-

	WRK-PWN		WRK-GW		LDM	DWL		WMZ 74-78	
	72-73	75-79 *	72-73	75-77 *	78-80 h	74-75	78-80 **	ONW	HVL
Be	-	-	0,62m	<0,05n	0,06c	-	< 0,05f	-	-
V	-	-	-	-	5,7	-	2,1c	-	-
Cr	-	2,5b	3,5	2,0	2,2	9,3	1,0	0,7e	5,8e
Co	-	< 1	8,8m	2,3a	1,8c	-	< 0,6	-	-
Ni	-	6,6	13,7m	5,1n	9,1c	-	4,5	1,4e	6,4e
Cu	8	8	11	9,3	4,5d	15	5,5	-	-
Zn	53	16	78	18	35	73	37	12	73
As	7,0	2,2	-	< 2f	6,3	-	1,7	3,3e	4,7e
Se	-	-	-	-	1,0	-	< 0,6	-	-
Cd	0,58	0,17	0,60	0,23	0,25	0,5	0,5	0,06	0,24
Hg	0,45	0,14	0,21	0,07	0,10	0,1	< 0,1	0,08	0,10
Pb	8,2	2,8	11,5	2,7	3,6	4,7	< 3	< 1	5,6g
CN	-	-	-	-	5 ρ	-	< 1,0	-	-
Br	-	-	-	200k	-	-	140i	-	-

a = WRK-Jutphaas rein; b = 1978-1979; c = 1979-1980; d = 1980; e = 1978; f = 1980-1981; g = 1977-1978; h = gegevens ontleend aan Rijkswaterstaat (1978-1980); i = 1979-1981; k = 1977; m = 14-8-1973 t/m 6-6-1974, gegevens ontleend aan Hrubec, 1977; n = 1-1-1975 t/m 20-11-1975, gegevens ontleend aan Hrubec, 1977; ρ = 1980; * = voorzuivering uitgebreid met coagulatie en snelfiltratie; ** = idem, tevens overschakeling op Maaswater; ONW = Oude Nieuwelandse Watering; HVL = Haringvliet

Tabel 3.3 - Gehalte aan sporelementen en CN in het aangevoerde oppervlaktewater bij het PWN, GW, LDM, DWL en WMZ (in ongefiltreerde monsters). Alle concentraties in $\mu\text{g l}^{-1}$

metalen dan het water aangevoerd door het PWN, GW en de DWL. Van alle aangevoerde wateren kan worden gesteld, dat de concentraties van Be, Co, Se en Hg zich bevinden in de buurt van de onderste analysegrens. Het verloop in concentratie van Cr, Cu, Zn, Cd, Hg en Pb in het aangevoerde water door GW en de DWL, van 1971/72-1982 is weergegeven in fig. 3.2. Te constateren valt onder andere, dat dit verloop ruwweg analoog is aan dat van de Lek c.q. Maas. Een correlatiematrix van enkele spormetalen en macroparameters in het door de DWL voorgezuiverde (!)

Lek- en Maaswater, respectievelijk voor de periode 1974-1975 en 1977-1978 is gepresenteerd in tabel 3.4. Hieruit blijkt het volgende, althans voor die jaren:

(1) er bestaat nauwelijks of slechts een zwakke correlatie tussen spoormetalen- en zwevend stofgehalte.

(2) spoormetalen correleren weinig onderling. Een wat hogere, doch steeds lage correlatiecoëfficiënt vertonen Cr met Zn, Pb met Cr en Cu met Pb voor Lekwater en As met Cr voor Maaswater;

(3) tussen macroparameters en spoormetalen bestaan matige correlaties in de volgende gevallen: (a) de temperatuur met Cr en Zn en in mindere mate met Cu en Pb voor Lekwater en met Ni voor Maaswater; (b)

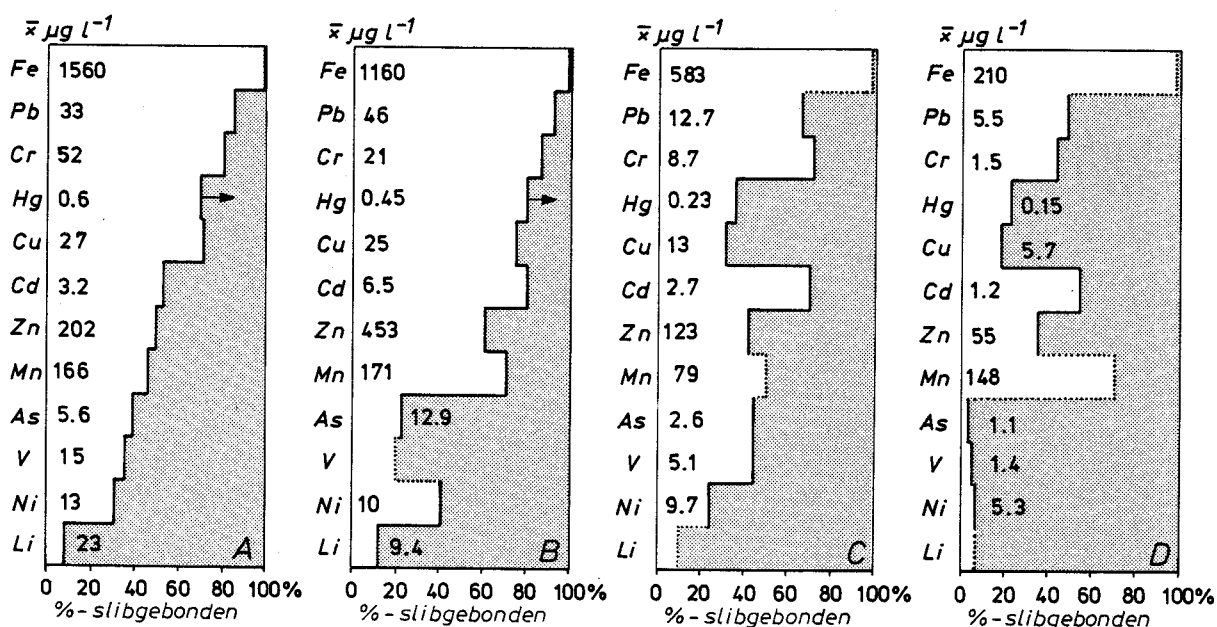


Fig. 3.1 - Verdeling over zwevende stof en oplossing van spoormetalen in (A) Rijnwater bij Lobith (1973-1976), (B) Maaswater bij Eijsden (1973-1976), (C) Lekwater bij Bergambacht (1980-1982) en (D) Maaswater bij het pompstation Brakel (1980-1982; na coagulatie in de Afgedamde Maas). Gegevens van A en B zijn gebaseerd op een bewerking van RIWA-cijfers door Dibbets en Van de Meent (1979), terwijl gegevens van C en D gebaseerd zijn op analyseresultaten in de jaarverslagen 1980-1982 van de DWL

	temp	pH	EGV	F	K	TOC	UV-ext	olie	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Hg	Pb	zwev-stof	Fe	Mn
temp	.	-,07	-,57	-,40	-,35	-,19	-,64	0,10	0,04	-,35	0,07	-,25	0,18	0,10	-,22	-,05	-,24	-,48	-,45
pH	0,17	.	-,49	-,04	0,53	-,14	-,15	-,15	0,15	-,25	-,03	0,00	-,10	0,17	-,06	-,03	-,26	-,01	0,11
EGV	-,20	-,24	.	0,57	0,68	0,19	0,57	0,08	-,13	0,50	0,01	-,04	-,10	-,27	0,08	0,00	0,36	0,19	0,10
F	-	-	-	.	0,63	0,47	0,51	0,02	-,61	0,30	-,14	0,13	-,26	-,27	-,26	-,17	0,01	-,13	-,11
K	-,21	-,22	0,83	-	.	0,27	0,44	0,05	-,14	0,58	0,06	0,05	0,05	-,19	0,03	0,03	0,17	0,13	-,04
TOC	-,24	-,29	0,53	-	0,54	.	0,40	-,02	-,17	0,26	-,10	0,13	-,16	0,00	-,08	0,02	0,26	0,04	-,15
UV-ext	-	-	-	-	-	-	.	0,03	-,09	0,45	-,00	0,31	-,23	-,17	0,22	0,07	0,45	0,42	0,09
olie	-,07	0,37	-,27	-	-,26	-,23	-	.	0,23	-,14	0,48	0,33	0,08	-,09	0,12	0,07	-,17	-,22	-,17
Cr	-,60	0,06	0,16	-	0,09	0,24	-	-,22	.	-,04	0,16	0,10	0,35	0,16	-,03	-,01	-,00	-,02	0,10
Ni	-	-	-	-	-	-	-	-	-	.	-,02	0,09	0,03	-,04	0,05	0,28	0,14	0,12	0,01
Cu	-,32	0,08	0,09	-	0,05	0,01	-	0,31	0,08	-	.	-,02	-,18	-,07	0,02	-,02	-,08	-,05	-,05
Zn	-,65	-,22	0,13	-	0,13	0,22	-	-,49	0,48	-	-,03	.	0,12	-,12	0,08	0,06	0,07	0,18	0,07
As	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	.	-,11	0,01	0,28	0,06	-,09	-,11
Cd	0,05	-,01	0,04	-	0,01	0,13	-	-,19	0,21	-	-,03	0,07	-	.	-,07	0,02	0,08	-,08	-,04
Hg	-,08	-,06	0,03	-	0,07	0,16	-	0,31	-,02	-	0,01	-,11	-	0,03	.	0,02	-,01	0,28	0,26
Pb	-,37	0,09	-,04	-	-,04	0,04	-	0,02	0,43	-	0,39	0,24	-	0,16	0,01	.	-,08	0,13	-,04
Zwev.st.	-,09	-,13	0,17	-	0,14	0,16	-	-,39	0,24	-	0,01	0,24	-	0,06	0,06	0,39	.	0,32	0,08
Fe	-,30	-,06	0,02	-	0,06	0,21	-	-,08	0,08	-	0,04	0,17	-	-,04	0,10	0,08	0,27	.	0,24
Mn	-,20	-,14	0,14	-	0,24	0,19	-	-,71	0,33	-	0,06	0,37	-	-,05	0,17	0,28	0,45	0,45	.

Tabel 3.4 - Correlatiematrices (geplot zijn de correlatiecoëfficiënten van lineaire regressie) van (a) in de driehoek linksonder het aangevoerde Lekwater door de DWL over de periode 1974-1975 (N = 96) en (b) in de driehoek rechtsboven het aangevoerde Maaswater door de DWL over de periode 1977-1978 (N = 98)

het EGV met Ni (Maaswater); (c) F met Cr en in mindere mate met Ni (Maaswater); (d) K met Ni (Maaswater); (e) UV-extinctie met Ni en Zn (Maaswater); en (f) olie met Cu en Zn (Maaswater) en met Cu, Zn en Hg voor Lekwater.

Samenvattend moet worden gesteld, dat er geen bruikbare verbanden gevonden zijn tussen macroparameters en anorganische microverontreinigingen en tussen laatstgenoemden onderling, bijvoorbeeld voor schatting van missende waarden of controle van analyseresultaten.

3.4 Bijgemengde wateren

3.4.1 Algemeen

Kunstmatig geïnfiltreerd oppervlaktewater vormt ge-

durende de beschouwde periode het hoofdbestanddeel van het door de in tabel 3.3 en 3.7 beschouwde bedrijven geproduceerde drinkwater (zie hoofdstuk 4 van het basisrapport "Macroparameters"). Er wordt dan ook gesproken van bijmenging van duin- en regenwater. Regenwater wordt bijgemengd in de infiltratiemiddelen en vooral in het geval van GW tevens in de toevoersloten en na bodempassage in de drainerende kanalen en Oranjekom. Bijmenging van duinwater, gedefinieerd als in duinzand geïnfiltreerd regenwater, geschiedt vooral in pompputten, drains en drainerende kanalen. Het onderscheid tussen regen- en duinwater wordt hier gehanteerd omdat de kwaliteit ervan sterk verschilt, ondanks de bodempassage die regenwater gevallen op infiltratiemiddelen ondergaat. Een groot verschil in kwaliteit noopt tevens tot het onderscheiden van ondiep en diep duinwater, afkomstig uit respectievelijk het 1e en 2e WVP.

In tabel 2.2 zijn de gemiddelde bijmengingspercentages van regenwater, ondiep en diep duinwater weergegeven voor de 7 in deze mededeling bestudeerde infiltratiegebieden.

3.4.2 Regenwater

Het gehalte aan enkele spoormetalen van het hemelwater en hierin door destructie of spontaan opgeloste droge stof, op meerdere meetpunten langs de kust is gepresenteerd in tabel 3.5. Er is over meerdere jaren gewogen gemiddeld naar de neerslaghoeveelheid. Vermenigvuldiging ervan met de vermelde dagelijkse regenval (in mm/d) levert de zogenaamde atmosferische depositie (in $\mu\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$) op. Hieronder is zowel de droge als natte depositie begrepen, daar de metingen door het RID, het KNMI/

RIV en Provinciale Waterstaat Noord-Holland (PWS) worden verricht met altijd-open-regenvangers.

De destructie of inclusie bij analyse van een eventueel aanwezige onopgeloste fractie is bij de meetnetten van het RID en KNMI/RIV mogelijk niet volledig, vooral ten aanzien van Cr. Voor de overige behandelde elementen wordt op grond van een betere oplosbaarheid in zuur aangenomen, dat de meetwaarden een goede representativiteit bezitten voor het totale gehalte.

Uit tabel 3.5 kan onder andere het volgende worden afgeleid: (1) de hoogste concentraties spoormetalen worden aangetroffen bij het infiltratiegebied te Wijk aan Zee. Dit houdt verband met industrieën in de IJmond, voornamelijk Hoogovens (Vermeulen, 1978); (2) de laagste concentraties spoormetalen komen voor bij de WMZ-infiltratiegebieden in Zeeland; (3) regionale variaties in Cd- en Zn-gehalten zijn het hoogst. Het hoge Cd-gehalte te Castricum is vreemd.

Kwaliteitsveranderingen van het aangevoerde oppervlaktewater in infiltratiemiddelen als gevolg van regenwaterbijmenging (en verdamping) komen aan de orde in par. 3.7.3.

µg/l	RID						KNMI-RIV		PWS	
	Cast	Heem	Leid	Sche	Oudd	Haam	De K	Vlis	Kolh	Bev
P*	2,25	2,43	2,11	2,18	2,06	2,03	2,20	2,24	2,23	2,20
V	-	5,3	-	-	-	-	3,1	7,1	-	-
Cr	0,3β	0,3	0,3β	0,3β	0,3β	0,1β	0,7	1,1	1,32 _T	2,50 _T
Co	-	-	-	-	-	-	0,6	0,6	-	-
Ni	1,3	1,8	1,7	1,6	1,1	1,1	0,9	1,4	-	-
Cu	11,9	9,6	13,6	8,3	5,6	10,3	7,6	9,8	6,8	11,4
Zn	87?	107	58	48	37 _α	19 _α	33	36	112 _T	137 _T
As	0,5β	0,8	0,4β	0,6β	0,7β	0,6β	0,8	0,8	-	-
Se	-	0,1	-	-	-	-	0,2	0,2	-	-
Cd	2,35?	0,77	0,48	0,40	0,31	0,28	0,17	0,28	0,49	0,57
Hg	-	0,1	-	-	-	-	-	-	-	-
Pb	15,1	19,4	16,8	18,1	12,5	13,1	12,4	17,7	23,1	43,8

* = mm/d regenval; α = jan. 1980-juni 1982; β = juli 1978-febr. 1979; _T = ontsluiting affiltreerbare stof in teflon-bom (200 °C, 50 atm. + HNO₃); Cast = PWN-pompstation Castricum; Heem = PWN-pompstation Wijk aan Zee; Leid = GW-pompstation Leiduin; Sche = DWL-pompstation Scheveningen; Oudd = WMZ-pompstation Ouddorp; Haam = WMZ-pompstation Haamstede; De K = Vliegveld De Kooij bij Den Helder; Vlis = Vlissingen; Kolh = Kolhorn (PWS 4); Bev = Beverwijk (PWS 13)

Tabel 3.5 - Naar regenval gewogen gemiddeld spoormetalen-gehalte van de neerslag (inclusief door destructie of spontaan opgeloste droge stof): (a) op 6 meetpunten van het RID-meetnet nabij infiltratiegebieden, van juli 1978-juni 1982 (gegevens ontleend aan RID, 1981-1983), (b) op 2 meetpunten van het KNMI-RIV-meetnet, van 1981-1982 (gegevens ontleend aan KNMI, 1982 en 1983) en (c) op 2 meetpunten van het PWS-meetnet, van juli 1978-juni 1982 (gegevens ontleend aan PWS 1979-1983)

3.4.3 Duinwater

In tabel 3.6 is het spoormetalengehalte van ondiep en diep duinwater weergegeven. De grote verschillen tussen het minimum en maximum met betrekking tot ondiep duinwater houden met het volgende verband (Stuyfzand, in voorbereiding): (1) verschillen in afstand en ligging ten opzichte van woon- en industriecentra als Rijn- en IJmond; (2) ruimtelijke variaties in begroeiing van het duin, in verticaal en horizontaal afgelegde afstand in het le WVP en in geochemie van het le WVP; en (3) tijdelijke varia-

µg/l	ondiep			diep		
	- x	min	max	- x	min	max
Be	0,01	-	-	0,01	-	-
V*	0,3	0,03	1,0	0,2	0,1	0,3
Cr*	0,8	0,4	2,0	0,2	0,1	0,7
Co*	0,3	0,1	2,0	0,1	0,1	0,5
Ni*	3	-	-	2	-	-
Cu	4	1	15	0,5	0,1	2
Zn	20	3	160	3	2	20
As	1	1	50	1	1	10
Se*	0,3	-	-	0,05	-	-
Cd	0,1	0,1	0,2	0,1	-	-
Pb	2	0,5	10	1	0,5	2
Br α	150	90	1000	140	90	1000

* = neutron activeringsanalyse na preconcentratie op actieve kool, door ECN te Petten; α = sterk afhankelijk van het Cl-gehalte

Tabel 3.6 - Sporelementengehalte van ondiep en diep duinwater ($7 < \text{pH} < 8$), respectievelijk uit het 1e en 2e WVP. Zowel de modus (\bar{x}) als het minimum en maximum is aangegeven. Gebaseerd op honderden metingen in de duinen tussen Den Haag en Zandvoort en bij Castricum (Stuyfzand, in voorbereiding)

ties in atmosferische depositie en verdamping.

Uit tabel 3.6 volgt verder, dat ondiep duinwater meestal een beduidend hogere concentratie van Cr, Co, Cu, Zn en Pb heeft dan diep duinwater. Ten dele kan dit zeer waarschijnlijk aan de luchtverontreiniging worden geweten (Stuyfzand, 1984).

Duinwater bevat in het algemeen, vergeleken met het (voorgezuiverde) oppervlaktewater, beduidend minder spormetalen. Dit geldt in sterkere mate voor diep dan ondiep duinwater. Dankzij de verdere voorzuivering van het oppervlaktewater zijn de verschillen tussen duin- en aangevoerd oppervlaktewater kleiner geworden, vooral ten aanzien van Zn, Cd en Pb.

De gevolgen van duinwaterbijmenging voor de kwaliteitsverandering bij duininfiltratie worden in par. 3.7.4 besproken.

3.5 Gevolgen van duininfiltratie

3.5.1 Duininfiltratie als geheel

Duininfiltratie leidt doorgaans tot een verlaging van de concentratie van spoormetalen, die in het voorgezuiverde oppervlaktewater worden aangevoerd. Dit valt uit tabel 3.7 af te leiden bij vergelijking van het aangevoerde water met het teruggewonnen water in 7 situaties: bij het PWN, GW en de DWL in een periode met mindere en verdere voorzuivering en bij de WMZ.

Er treedt volgens tabel 3.7 in het algemeen een zeer aanzienlijke verlaging op van Cr, een redelijke verlaging van Ni, Cu, Zn, Hg en Pb, een matige/redelijke verlaging van Cd, een geringe verlaging van V (onzeker in verband met de nabijheid van de onderste analysegrens) en recentelijk bij een lage toevoer een toename van As bij duininfiltratie. Ten tijde van hoge concentraties in de aanvoer, dus bij minder voorzuivering en frequente slibverwijdering in infiltratiemiddelen werd As goed verwijderd (zie PWN). Met betrekking tot het gedrag van Be, Co, Se en CN kan slechts worden gesteld, dat de concentraties hiervan beneden de onderste analysegrens blijven. De concentratievermindering neemt sterk af van Cr, Cu, Hg en Pb, wanneer de concentraties hiervan in de aanvoer zakken beneden respectievelijk 1, 6, 0,1 en 3 $\mu\text{g l}^{-1}$. Voor een belangrijk deel moet dit echter geweten worden aan het bereiken van de onderste analysegrens (i.c. Cr, Hg en Pb).

Bromide neemt bij de DWL bij duininfiltratie toe. Vermoedelijk hangt dit volledig samen met bijmenging en een nog geringe bijdrage van geïnfiltriseerd Lekwater in de hoofdader, die ook uit het Cl-gehalte van water uit dit meetpunt volgt (Stuyfzand, 1985).

	PWN-Castricum						WMZ-Ouddorp		
	1972 - 1974			1974 - 1979			1975 - 1978		
	in	SecM	rein	in	SecM	rein	aanv*	ruw	rein
Cr	-	-	-	2,5	0,25	0,15	4,5 α	<0,5 α	<0,5 α
Co	-	-	-	<1	<1	<1	-	-	-
Ni	-	-	-	6,6	2,7	2,5	5,1 α	<1 α	6 α
Cu	-	-	-	8	27 γ	7	-	-	-
Zn	53	5	23	16	8	14	54,9	38,4	31,7
As	7,0	2,4	<2	2,2	3,0	2,0	5,1 α	8,4 α	-
Cd	0,58	0,37	0,28	0,17	0,15	0,12	0,19	<0,1	<0,1
Hg	0,45	0,27	0,17	0,14	0,12	0,12	0,08	<0,05	<0,05
Pb	8,2	ca 3	ca 3	2,8	ca 3	ca 3	4,1 β	<1 β	<1 β

	GW				DWL			
	1972 - 1973		1978 - 1982		1974 - 1975		1978 - 1982	
	Verd	Okom	Verd	Okom	Aanv	HA	Aanv	HA
Be ϵ	-	-	-	-	-	-	<0,05	<0,05
V δ	-	-	-	-	-	-	1,4	1,2
Cr	3,5	<3	2,3	<1	9,3	4,5	1,0	0,9
Co	-	-	-	-	-	-	<0,6	<0,6
Ni	-	-	-	-	-	-	5,0	2,9
Cu	11	12 ?	6,4	3,0	15	7	6,3	4,5
Zn	78	24	18	5	73	20	37 π	28 π
As	-	-	0,9	1,6	-	-	1,4	1,7
Se	-	-	-	-	-	-	<0,6	<0,6
Cd	0,60	0,45	0,21	0,09	0,49	0,40	0,5 π	0,5 π
Hg	0,21	0,18	0,18	0,09	0,1	<0,1	0,07	0,13
Pb	11,5	6,5	1,8	1,2	4,7	2,5	2,7	2,6
CN ϵ	-	-	-	-	-	-	<1	<1
Br δ	-	-	-	-	-	-	146	174

α = 1978; β = 1977-1978; γ = beïnvloeding door koperen filter van pompputten; δ = 1979-1982; ϵ = 1980-1982; π = 1978-1980; * = berekend mengsel van ONW- en HVL-water

Tabel 3.7 - Overzicht van spoorelementen en CN in aangevoerd, voorgezuiverd oppervlaktewater en het teruggewonnen water (inclusief bijmenging) bij het PWN-Castricum, WMZ-Ouddorp, GW en de DWL. Voor het PWN, GW en de DWL is onderscheid gemaakt in een periode met mindere en met verdere voorzuivering (respectievelijk vroeger en later). Voor het PWN en de WMZ is tevens de reinwatersamenstelling weer-gegeven

De verdere concentratieverlaging bij GW ten opzichte van die bij de DWL, houdt verband met: (a) precipitatie van $\text{Fe}(\text{OH})_3$ en MnO_2 in afvoerkanalen en Oranjekom (GW) door een natuurlijke beluchting (Von Wolzogen Kühr, 1926), hetgeen door coprecipitatie en adsorptie tevens tot verwijdering van sporelementen kan leiden; (b) adsorptie aan en opslag van sporelementen in nieuw gevormde organische stof in afvoerkanalen en Oranjekom; (c) geen slibverwijdering uit infiltratiemiddelen bij de DWL itt GW; en (d) een ten opzichte van de DWL wat sterkere interactie met sporelementen adsorberende organische stof en kleideeltjes in de ondergrond van het infiltratiegebied van GW. Dit komt uit het gedrag van organische microverontreinigingen naar voren (zie hoofdstuk 4).

Uit het verloop van jaargemiddelden voor GW en de DWL in fig. 3.2 kan het volgende worden afgeleid: (1) het verloop van het water na duininfiltratie lijkt op dat van de aanvoer ten aanzien van Cr (alleen bij de DWL), Zn (GW en DWL), Cd (GW en DWL) en Pb (GW en DWL). Dit kan behalve met bijvoorbeeld een vrij constant verwijderingspercentage ook met veranderende analyseproblemen (ontsluitingsgraad, onderste analysegrens) in verband gebracht worden; (2) sinds 1981/1982 lijkt er bij de DWL een concentratietoename van Cr en Cu op te treden. Dit hangt ten minste gedeeltelijk samen met een nieuwe analysemethode sinds 1981.

Een (verdere) interpretatie van het geschetste beeld volgt in par. 3.7.

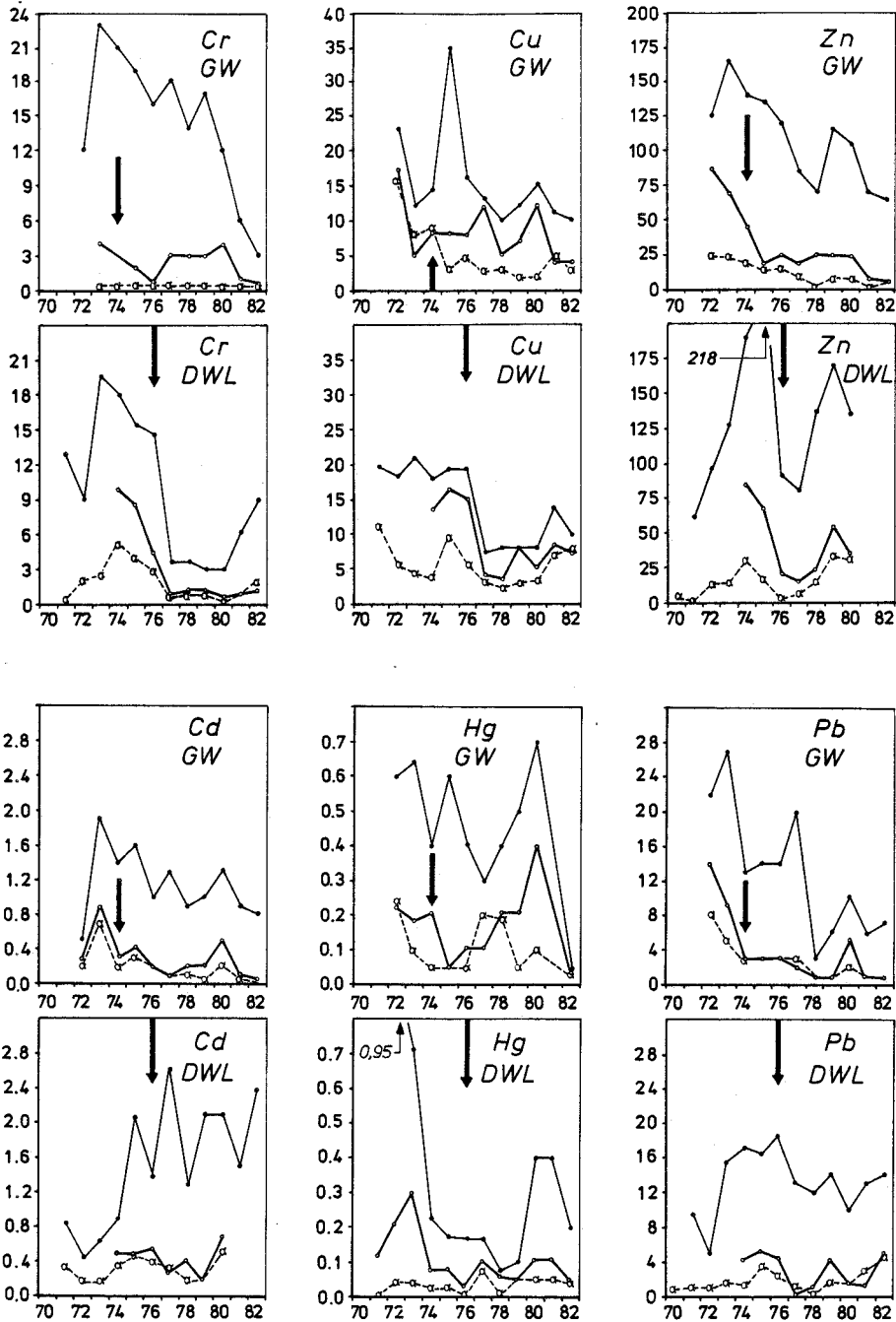


Fig. 3.2 - Verloop in jaargemiddelde spoormetalen-gehalte van de rivier van herkomst (), het aangevoerde voorgezuiverde water () en het water na duininfiltratie inclusief bijmenging (α -- α) bij GW en de DWL. Gegevens ontleend aan jaarverslagen van 1970 tot en met 1982 van GW en de DWL. Met een pijl is aangegeven wanneer de voorzuivering is uitgebreid (bij de DWL dan tevens overschakeling op Maaswater)

µg/l	Aan- voer	pan 13	pp 195	pp 194	pp 193	pp 191d	HA**	DW
t*	0	1	8	18	25	45	70	71
•Cr	1,0	1,2	1,1	0,7	0,8	1,0	0,7	0,62
•V ^a	2,2	1,4	1,4	1,1	1,6	1,2	1,6	-
•Co ^c	0,6	0,6	0,5	0,4	0,5	0,6	0,4 ^e	0,3
Ni	5,1	5,9	4,4	3,5	3,5	3,1	2,9	2,0
Cu	5,4	4,1	3,4	4,3	3,9	3,6	2,8	2,0
Zn	37	48	38	32	35	32	28	17
As	1,6	2,0	3,5	4,9	4,4	4,1	2,2	<1,3
•Se ^b	<0,6	<0,6	<0,6	<0,6	<0,6	<0,6	<0,6	<0,6
•Cd	0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5
•Hg	0,08	0,10	0,07	0,06	0,07	0,05	0,07	<0,1
•Pb	2,5	4,2	2,5	2,0	2,1	2,8	1,9	<3
Br ^e	136	149	147	-	-	-	174	177

a = 1980; b = 1978; c = 1978-1979; d = exclusief periode van oktober 1979 tot en met juni 1980; e = 1979-1980; * = modale verblijftijd in dagen; ** = tevens bijmenging duinwater; • = metingen frequent onder of nabij onderste analysegrens

Tabel 3.8 - Gemiddelde verandering in spoorelementengehalte van voorgezuiverd Maaswater in pan 13 en bij bodempassage. De ligging van de waarnemingsputten pp 191-195 is in fig. 2.14 weergegeven. HA = hoofdader; DW = drinkwater. Gemiddeld is over de periode 24-5-1978 tot en met 24-11-1980; aantal waarnemingen: $N_{aanvoer} = N_{DW} = 150$; $N_{HA} = 78$; $N_{pp} = N_{pan\ 13} = 32$

3.5.2 Details van duininfiltratie

Bij de DWL zijn de waarnemingsputten pp 191-195 tussen pan 13 en de drainerende hoofdader (fig. 2.14; sinds 1980 is de HA vervangen door een strang van pompputten) ongeveer maandelijks bemonsterd, sinds 1978 voor spoormetalenanalyse. Gemiddelden voor de periode 1978-1980 zijn in tabel 3.8 weergegeven.

Hieruit wordt het volgende afgeleid:

(1) in pan 13 treedt nauwelijks een concentratieverandering op. Er is sprake van een geringe toename van Cr, Ni, Zn, As, Hg en Br, een grotere toename van Pb, een nogal sterke afname van V, een geringere afname van Cu en geen verandering van Co;

(2) uitgaande van het water in pan 13, geschiedt er bij bodempassage het volgende: een redelijke verlaging van Ni, Zn, Cd? en Pb, een relatief geringe verlaging van Cr, Co, Cu en Hg, nauwelijks een verandering van V en Br en een duidelijke toename van As;

(3) uitgaande van het aangevoerde water, geschiedt er bij bodempassage het volgende: een redelijke verlaging van V, Ni en Cu?, een relatief geringe verlaging van Cr, Co, Zn, Cd?, Hg en Pb, een duidelijke toename van As en een geringe toename van Br. Voor Cr, Co, Cd, Hg en Pb is deze conclusie onzeker door de nabijheid van de onderste analysegrens;

(4) het merendeel van de in (2) en (3) genoemde veranderingen treedt niet alleen tijdens de eerste meters bodempassage op.

De onder punt (1) genoemde concentratietoenames houden vermoedelijk verband met opwarrelend slib (met een andere samenstelling dan via Maaswater aangevoerd slib), dat meebemonsterd en meegeanalyseerd is. Atmosferische depositie kan in de opgeloste fractie slechts een geringe bijdrage leveren en wel voornamelijk ten aanzien van Pb (zie par. 3.7.3). Derhalve lijkt conclusie (3) realistischer dan conclusie (2), behalve ten aanzien van Br, dat in pan 13 toe zou kunnen nemen als gevolg van atmosferische depositie en zich verder bij bodempassage conservatief gedraagt.

Het minder gunstige beeld dan verwacht op grond van de globale indruk gewekt in par. 3.5.1, houdt vermoedelijk verband met de verdere voorzuivering en een toen 11-13 jaar oude bodemsliblaag (zie par. 3.7.2). Voor een (verdere) interpretatie van de hier gepresenteerde gegevens zij verwezen naar par. 3.7.

3.6 Ophoping in bodemslib en duinzand

3.6.1 Algemeen

In de voorgaande paragraaf is geconstateerd, dat zware metalen bij infiltratie van voorgezuiverd rivierwater in de duinen voor een deel worden verwijderd. De mechanismen volgens welke deze verwijdering plaatsvindt, berusten voornamelijk op adsorptie aan slib in het water of op de bodem van infiltratiemiddelen en aan zand tijdens bodempassage (zie par. 3.7). Fig. 3.3 illustreert, dat er vooral in diepere delen (veel minder op de oevertaluds) van infiltratiemiddelen bodemslib kan accumuleren. De vraag doet zich natuurlijk voor of deze jarenlange verwijdering van spoormetalen geen ernstige ophoping in het watervoerend pakket tot gevolg heeft, waardoor mogelijke "doorslag"verschijnselen (zullen) optreden. Om deze vraag te kunnen beantwoorden is het onder andere nodig inzicht te hebben in de mate van ophoping in slib en zand van het doorstroomde pakket.

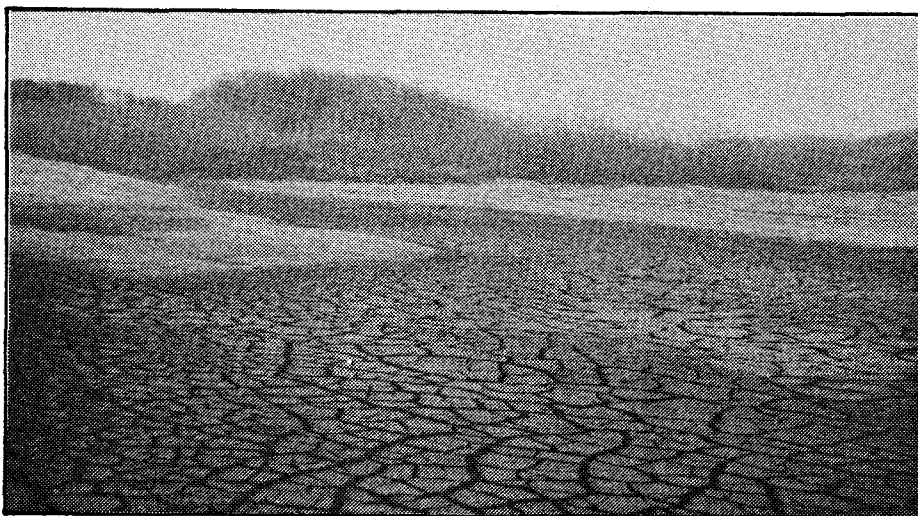


Fig. 3.3 - Accumulatie van bodemslib in pan 11 van de DWL. Deze pan is nog nooit schoongemaakt (foto: Stuyfzand)

De mate van ophoping is in de zeventiger jaren onderzocht door GW en de DWL en sinds 1981 door de WMZ te Haamstede.

3.6.2 Het Amsterdamse infiltratiegebied

Gemeentewaterleidingen heeft in september 1973 (juist vóór een slibverwijdering) grondmonsters van en onder bodemslib in infiltratiegeulen genomen, waarover gerapporteerd is door Becking (1974). Met de Romeinse cijfers I tot en met VI is in fig. 3.4 aangegeven waar de grondmonsters zijn genomen. Op deze zes locaties zijn op diepten van 0-5, 5-10, 10-15 en 15-20 cm onder maaiveld monsters getrokken en op de locaties I, III en V tot diepten van 1 m. Op een locatie buiten de beïnvloedingssfeer van de infiltratie is een zogenaamd blanco duinzandmonster genomen.

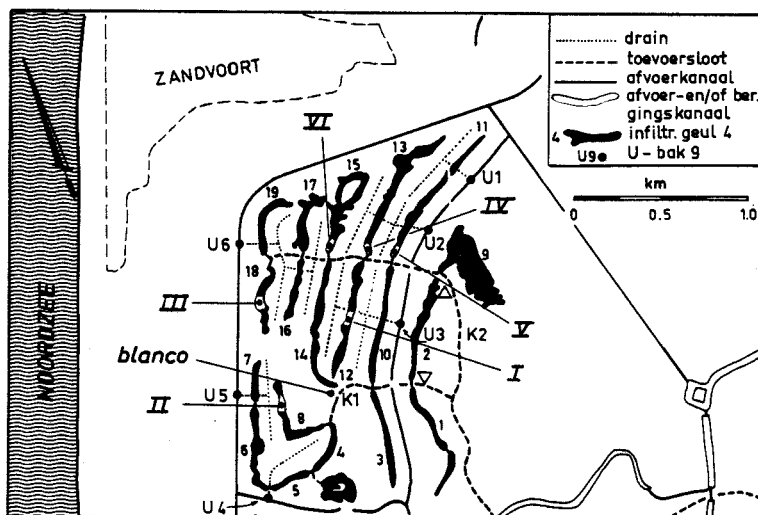


Fig. 3.4 - Locatie van de grondmonsters uit boring I-VI en de blanco (duinzand) in het infiltratiegebied van GW

Het onderzoek aan deze 43 grondmonsters is uitgevoerd door aan 10 gram gedroogde grond 4 ml salpe-

terzuur en 15 ml zoutzuur (respectievelijk 65 en 30 %) toe te voegen en gedurende 1 à 2 uur het mengsel op een waterbad te verhitten. In de na dekantatie verkregen heldere oplossing zijn naast de zware metalen Zn, Cu, Cr, Ni, Pb en Cd tevens Ca, Fe en Mn bepaald volgens standaard AAS-methoden met de vlam. Lage gehalten zijn met de grafietoven bepaald. In tabel 3.9 zijn de verkregen resultaten weergegeven.

In de tabel valt waar te nemen, dat de spreiding van de uitkomsten per locatie voor de twee minst diep genomen monsters groot is, namelijk ongeveer een factor tien. Op diepten vanaf 10 cm onder maai-veld is er een goede overeenkomst. Locatie I, die relatief ver gelegen is vanaf de aanvoer, vertoont de laagste gehalten voor vrijwel alle metalen, terwijl locatie V, gelegen in geul 11 vlakbij de aanvoer, de hoogste gehalten laat zien. De verklaring hiervan kan zijn, dat zware metalen vooral via slibdeeltjes worden aangevoerd en verwijderd worden door bezinking in het eerste gedeelte van de infiltratiegeulen. Er is niet onderzocht of er ook verschillen in organische stofgehalten van het slib of zand optreden. Om een indruk te krijgen van de indringdiepten zijn in fig. 3.5 gemiddelde waarden per diepte uitgezet tegen de diepte, waarop de monsters zijn getrokken. Tevens is door middel van een stippellijn de zogenaamde blanco-waarde weergegeven. Deze afbeelding laat de volgende conclusies toe:

(a) Het calciumgehalte is sterk verlaagd als gevolg van de jarenlange doorspoeling met het kennelijk kalkagressieve water. Dit oplossen is op 5 cm diepte minder dan daaronder, hetgeen erop kan duiden dat het water pas na 5 cm het meest agressief is

cm- maaiveld	Ca (g kg ⁻¹)						Fe (g kg ⁻¹)						Mn (mg kg ⁻¹)						Zn (mg kg ⁻¹)					
	I	II	III	IV	V	VI	I	II	III	IV	V	VI	I	II	III	IV	V	VI	I	II	III	IV	V	VI
0- 5	7,3	11,3	13,4	5,2	13,4	3,7	2,7	3,8	5,9	2,6	7,6	2,7	55	280	250	135	275	60	160	400	820	420	1380	500
5- 10	2,7	1,5	1,2	1,7	4,0	1,4	2,3	2,4	2,5	1,8	2,9	2,3	40	35	50	40	75	40	85	85	140	110	420	90
10- 15	1,8	1,9	2,1	1,8	2,2	1,1	2,3	2,4	2,5	1,7	2,4	2,5	35	45	50	45	40	35	80	80	80	85	80	75
15- 20	0,05	1,9	2,2	1,5	2,2	2,6	2,3	2,4	2,4	1,5	2,4	3,0	20	45	40	20	35	45	65	75	70	65	75	70
20- 25	0,15		2,2		2,5	2,3	2,3		2,4		2,6	2,6	20		50		40	45	50		50			55
25- 30	0,50				2,7	2,3			2,4		2,3	2,6	20		55		55	40	30				80	
30- 35					2,8						2,2				65		65	40					70	
35- 40	0,85		2,5			2,6	2,1		2,6			2,4	25		40			25		45				60
40- 50			2,4			2,4			2,4			2,2			35			40		35				55
50- 60	1,8		2,9				1,9		2,2				25		30				10		20			
60- 70			2,8						2,2						35					20				
70- 80	1,9		3,2				1,8		2,2				25		35				10		15			
80- 90			3,4						2,2						40					15				
90-100			2,2						1,6						30					10				
blanco	30,9						3,1						64						6					

cm- maaiveld	Cu (mg kg ⁻¹)						Cr (mg kg ⁻¹)						Ni (mg kg ⁻¹)						Pb (mg kg ⁻¹)						Cd (mg kg ⁻¹)							
	I	II	III	IV	V	VI	I	II	III	IV	V	VI	I	II	III	IV	V	VI	I	II	III	IV	V	VI	I	II	III	IV	V	VI		
0- 5	7,3	17	38	14	78	32	17	48	12	12	180	65	11	21	50	13	60	21	21	90	140	38	260	100	0,6	1,8	3,1	1,7	5,5	2,8		
5- 10	3,3	3,2	4,1	5,8	17	4,3	8	9	6	7	42	9	5	6	6	8	15	6	15	13	11	16	80	13	0,4	0,2	0,3	1,1	1,7	0,9		
10- 15	3,6	3,7	3,3	3,4	2,6	3,5	6	5	5	6	7	6	6	6	6	7	6	12	9	9	10	10	10	10	0,4	0,2	0,2	0,3	0,2	0,2		
15- 20	2,1	3,7	3,3	2,5	2,4	2,2	4	5	5	5	6	5	5	5	6	5	5	5	9	8	7	8	8	8	0,3	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2		
20- 25	0,8		2,5		1,8		4				5	5	4	5	6	4	4	4		5		6	6	6	0,1		0,2		0,2	0,1		
25- 30	0,9				2,2		4				5	5	4	5	4	4	4	4		6		6	6	6	0,2		0,1		0,1	0,1		
30- 35			2,5		2,1	1,5			4			4			5		4	4		7		6	6	6		0,2		0,1		0,1		
35- 40	0,8						3					5			5		4	4	1			6	6	6	0,1					0,1		
40- 50			1,8			1,6			4			4			5		4					5	6	6		0,1		0,1			0,1	
50- 60			1,8				3		2			4			4		4		2			4	4	4	0,1		0,1					
60- 70	0,4		1,4				3		2			4			4		4					4	4	4	0,1		0,2					
70- 80			1,4				3		3			4			4		4		2			4	4	4	0,2		0,1					
80- 90	0,7		1,4				3		3			4			4		4					4	4	4	0,2		0,4					
90-100			1,5				3		3			4			4		4					4	3	3		0,2		0,2				
blanco	1,5						4						6						3						0,2							

Tabel 3.9 - Resultaten van grondonderzoek in september 1973 in het infiltratiegebied van GW (naar Becking, 1974). Gehalten in mg of g per kg droge stof. De laatste schoonmaak van deze geulen, voorafgaande aan dit onderzoek, geschiedde in juli-augustus 1969

ten opzichte van de schelpenresten in het zand.

(b) IJzer en mangaan hopen zich op in de bovenste centimeters, maar gaan in oplossing vanuit zand vanaf ongeveer 10 cm diepte.

(c) In de bovenste 10 tot 20 cm accumuleren Ni, Pb, Cd, Cr en Cu zeer duidelijk. Dieper bevat de grond (vermoedelijk duinzand) tot 1 m mogelijk zeer weinig meer en daarna niet significant meer van deze metalen dan de natuurlijke waarden aangeven.

(d) Alleen bij Zn is er sprake van een grotere indringing, namelijk van meer dan een halve meter. De laagste gevonden waarde van 10 mg kg⁻¹ bij locatie III op 1 m diepte is nog significant hoger dan de blanco van 6 mg Zn kg⁻¹.

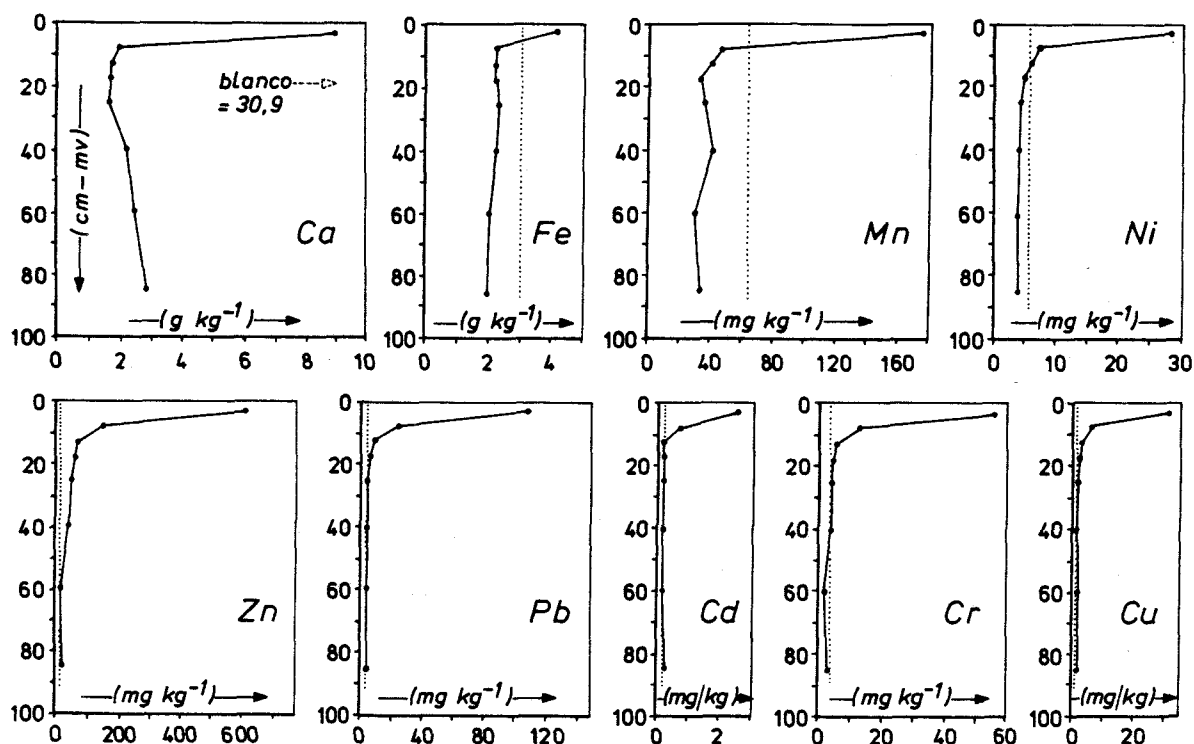


Fig. 3.5 - Gemiddelde verloop van enkele spoormetallen, Ca, Fe en Mn met de diepte in grondmonsters uit het infiltratiegebied van GW, in september 1973. Gemiddeld beeld voor de boringen I-VI (zie fig. 3.4). Bodemslib werd voor het laatst vóór de bemonstering verwijderd in 1969

3.6.3 Het Haagse infiltratiegebied

3.6.3.1 Pan 8.1 en 8.2

Bij de Duinwaterleiding is de ophoping van 6 metalen onderzocht in algen, slib en zand uit twee nieuwe infiltratiepannen, die gebruikt werden om de invloed te onderzoeken van een verdere voorzuivering op verstopping van het infiltratieoppervlak en kwaliteitsveranderingen van het water. Dit onderzoek werd in de pannen 8.1 en 8.2 (zie fig. 2.7) uitgevoerd van 1970 tot september 1973. Op 31 oktober 1973 zijn beide pannen na droogvallen

bemonsterd.

Algen, bodemslib en zand van 0-5 cm, 5-10 cm en 50-75 cm diepte zijn na drogen bij 100 °C ontsloten met 20 ml salpeterzuur (30 %) en 5 ml 5 % kaliumpersulfaat door één uur verhitting bij 100 °C.

De in het verkregen centrifugaat aanwezige organische stoffen zijn verder geoxideerd met salpeterzuur. Met standaard AAS-meetmethoden zijn in de vlam Pb, Cu, Cd, Cr en Zn bepaald. Voor Hg is een aparte ontsluiting uitgevoerd door 2,5 uur verwarming met bovengenoemd destructiemengsel op een waterbad van 50 °C. Met behulp van broomwater is Hg omgezet en vlamloos gemeten volgens een standaard AAS-voorschrift. De verkregen resultaten staan in tabel 3.10 vermeld.

In maart 1974 is de bemonstering uitgebreid met zandmonsters tot 10 m afstand tot het maaiveld van de panbodem volgens een stroomlijn van het water. Tussen oktober 1973 en maart 1974 hebben de pannen drooggelegen. De bemonstering is uitgevoerd door het graven van een diepe gleuf in zijdelingse richting vanaf de oever van de beide pannen. Bij de bemonstering van pan 8.1 viel op, dat op 2 en 3 meter diepte het zand donker gekleurd en slibhoudend was. Als "blanco zand" is zand tussen beide pannen op 0,10 m diepte bemonsterd en zand op een onverdacht punt buiten het infiltratiegebied op 0,75 m diepte. In tabel 3.10 zijn de resultaten verzameld.

Wat betreft de twee blanco's is het zand tussen de pannen wat meer belast dan het "onverdachte" zand mogelijk als gevolg van een geringere diepte en daardoor meer invloed van atmosferische depositie. Bij beide pannen vindt veruit de sterkste ophoping plaats in het slib, dat op de bodem is aangetroffen.

locatie	mg kg ⁻¹					
	Pb	Cu	Cd	Cr	Zn	Hg
blanco ^a	7	1	0,2	3	9	0,06
blanco ^b	3	0,5	0,2	4	5	0,03
PAN 8.1						
Algen	19	10	1,1	5	145	0,39
Slib	70	57	3,9	21	830	1,55
Zand 0 -0,05 m	14	3	0,2	5	29	0,08
" 0,05-0,1 m	20	3	0,3	5	31	0,07
" 0,5 -0,75 m	20	2	0,3	4	25	0,06
" 1 m	6	1	0,2	3	18	0,09
" 2 m	60	3	0,2	3	40	0,32
" 3 m	40	3	0,2	3	23	0,10
" 5 m	3	0,5	0,1	3	5	0,05
" 10 m	3	1	0,2	3	5	0,05
PAN 8.2						
Algen	63	21	1,6	29	306	0,90
Slib	103	37	3,0	83	634	2,33
Zand 0 -0,05 m	8	2	0,2	7	41	0,14
" 0,05-0,1 m	3	1	0,2	4	21	0,05
" 0,5 -0,75 m	4	1	0,2	4	18	0,03
" 1 m	2	1	0,1	3	15	0,04
" 2 m	1	1	0,1	4	13	0,05
" 3 m	1	0,5	0,1	3	9	0,02
" 5 m	1	0,5	0,1	3	4	0,05
" 10 m	2	0,5	0,1	3	4	0,03

a = zand tussen pan 8.1 en 8.2 op 0,1 m-mv; b = zand iets ten oosten van noordelijkste pompputten van serie KW2 (zie fig. 2.7) op 0,75 m-mv

Tabel 3.10 - Ophoping van zes metalen in algen en slib op de bodem van pan 8.1 en 8.2 en in het doorstroomde zand na 3,5 jaar infiltratie (1970-1973). In december 1971 werd pan 8.2 schoongemaakt

Maar ook de algen, die als een aparte laag op het slib zijn bemonsterd, bevatten relatief veel van de zes onderzochte metalen. Het zand is daarentegen relatief "schoon", hoewel dit per metaal verschillend is. Voor Cd, Cr en Cu is er nauwelijks sprake van enige ophoping vergeleken met het "blanco zand". Lood, Zn en Hg worden wel in hogere gehalten aangetroffen. Bij pan 8.1 is er tot 3 m diepte sprake van

ophoping van Pb, die nogal wisselend is in grootte. Opvallend zijn met name de hogere waarden op 2 en 3 m diepte, daar waar het zand donkergekleurd en slibhoudend is. Bij pan 8.2 is er nauwelijks sprake van een loodophoping in het zand. Voor Hg geldt ongeveer een gelijklopend betoog als voor Pb. Zink is het enige onderzochte element, dat bij beide pannen dieper is ingedrongen in het watervoerend pakket. Tot 3 m is er sprake van ophoping. Vanaf 5 m diepte worden "blanco waarden" aangetroffen.

Balans van verwijdering en accumulatie

Voor pan 8.2 is een poging gedaan een balans op te stellen van de hoeveelheid uit het water verwijderde metalen aan de ene kant en de hoeveelheid in algen, bodemslib en onderliggend duinzand aangetroffen metalen aan de andere kant. Van 1970 tot en met 1973 is in pan 8.2 2,1 miljoen m³ water geïnfiltreerd. De pan is tussentijds in december 1971 schoongemaakt, zodat vanaf die tijd ten aanzien van algen en slib gerekend moet worden.

In tabel 3.11 staat het resultaat van deze berekening weergegeven. Er is uitgegaan van schattingen van de hoeveelheid algen en slib van respectievelijk 1750 en 3500 kg droge stof in de gehele pan.

	verwijderd (kg)	teruggevonden (kg)	% teruggevonden in		
			alg	slib	zand
Cr	8	10	0,5	3	97
Cu	15	11	0,4	1	98
Zn	181	190	0,3	1	99
Cd	0,17	0,01-0,8	?	?	?
Hg	0,12	0,08	2	12	85
Pb	5	6	2	6	92

Tabel 3.11 - Stofbalans metalen bij pan 8.2: Verwijderd uit water en teruggevonden in grond tot 10 m afstand

Ondanks enkele aannames bij deze berekening mag worden gesteld, dat met uitzondering voor Cd deze stofbalans redelijk goed sluit. Voor Cd kan een verklaring enerzijds gezocht worden in het feit, dat bij de wateranalyse zeer frequent gehalten beneden de onderste analysegrens worden gemeten, die de berekening van de verwijderde kilogrammen erg onnauwkeurig maakt. Anderzijds zou een blanco waarde van 0,1 in plaats van 0,2 mg Cd kg⁻¹ de teruggevonden hoeveelheid sterk verhogen.

Een sluitende stofbalans betekent, dat de verwijderde hoeveelheden in het watervoerend pakket tot 10 m zijn teruggevonden en niet te verwachten valt, dat dan op grotere afstand nog een ophoping optreedt. Gezien de vergelijkbare gehalten van "blanco zand" en zand op 5 en 10 m diepte is dit ook een logische gevolgtrekking.

Een tweede, uiterst belangrijke conclusie, die uit deze berekening kan worden getrokken, is dat de gehalten van metalen in algen en bodemslib wel relatief zeer hoog zijn maar dat, gezien het relatief lage droge totaalgewicht, het aantal kilogrammen metaal in algen en slib gering is in vergelijking met dat in het duinzand. Voor Zn, Pb, Cu en Cr wordt meer dan 90 % van de totale massa aan metaal in het zandpakket aangetroffen. Kwik, Cr en Pb worden ook in algen en bodemslib nog in significante hoeveelheden vastgelegd.

3.6.3.2 Pan 8.4.2 en 26.1

Door het droogvallen onder andere vanwege werkzaamheden aan infiltratiepannen kon in 1977 een nieuwe bemonstering worden uitgevoerd voor het vaststellen van de mate van ophoping van metalen op twee andere locaties, namelijk in pan 26.1 en pan 8.4.2 (zie

fig. 2.7). Pan 26.1 is sinds 1955 in bedrijf en pan 8.4.2 sinds 1970. Deze laatste pan wordt intermitterend bedreven, namelijk 's-winters niet infiltreren en vanaf april wel. Pan 26 is een aantal malen in de toen 22-jarige periode buiten bedrijf geweest maar niet schoongemaakt. Pan 8.4.2 is enige malen van bodemslib ontdaan.

Bij pan 26.1 zijn 9 monsters zand en slib genomen tot 7,0 m diepte en bij pan 8.4.2 vier monsters tot 0,5 m diepte. Het onderzoek is uitgevoerd volgens de hiervoor reeds beschreven methode voor ontsluiting en analyse van de DWL. Het is uitgebreid met een bepaling voor Ni en een COD-bepaling om een indruk te verkrijgen van de hoeveelheid organische stof in de monsters. Deze COD-bepaling wordt op standaardwijze uitgevoerd door uit te gaan van een hoeveelheid zand of slib en deze in sterk zwavelzuurhoudend milieu onder reflux met kaliumdichromaat te oxideren. Voor de monsters van pan 8.4.2 is tevens een Ca-bepaling uitgevoerd. De Hg-bepaling is mislukt. De resultaten zijn grafisch weergegeven in fig. 3.6 en 3.7.

Aangezien er niet opnieuw "blanco zand" in het onderzoek is betrokken, behalve voor de COD-bepaling, kunnen de resultaten het beste worden vergeleken met de tweede, in tabel 3.10 vermelde blanco-waarden. In fig. 3.7 is deze blanco-waarde per metaal en voor het COD-getal ingetekend.

In vergelijking met de reeds eerder getrokken conclusies valt het volgende op in deze afbeeldingen:

(a) evenals bij pan 8.1 vertoont Pb in diepere lagen bij pan 26 onregelmatig een grotere ophoping, namelijk op 1 m diepte. In tegenstelling tot pan 8.1 vertoont Cd dit verschijnsel ook op dezelfde diepte, terwijl Hg hogere waarden vertoont op 3 m diepte en niet op 1 m. Deze hogere gehalten op 1 en

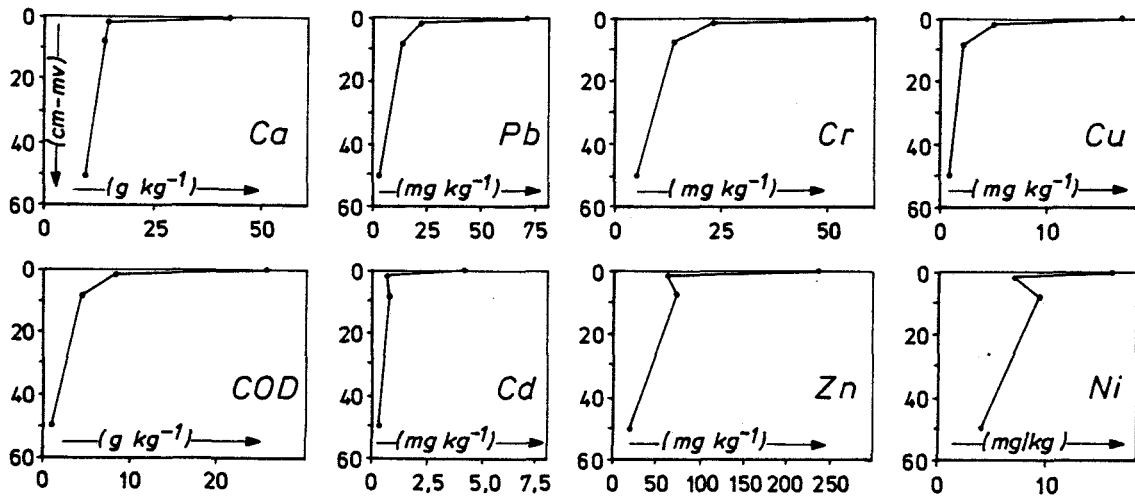


Fig. 3.6 - Verloop van enkele spoormetalen, Ca en COD met de diepte in grondmonsters uit pan 8.4.2 (DWL), in 1977. Bodemslib is enige malen verwijderd, mogelijk voor het laatst voorafgaande aan bemonstering in 1975

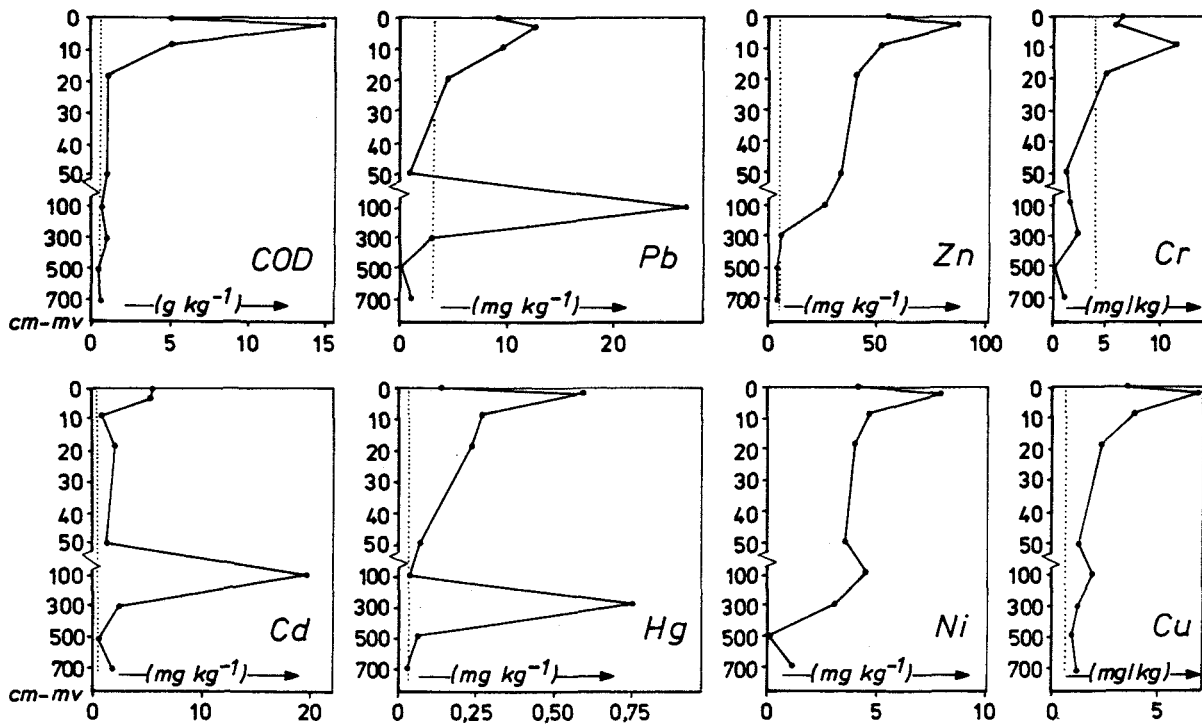


Fig. 3.7 - Verloop van enkele spoormetalen en COD met de diepte in grondmonsters uit pan 26.1 (DWL), in 1977. Bodemslib is nooit verwijderd. De stippellijn geeft het niveau van blanco duinzand weer

3 m diepte corresponderen niet met hogere waarden voor het COD.

(b) Alle waarden voor Cd liggen aanzienlijk hoger in pan 26.1 dan bij pan 8.1 en 8.2. Ophoping wordt in alle monsters tot 7 m diepte aangetroffen, met zoals vermeld een "uitschieter" op 1 m diepte. Ook bij pan 8.4.2 is er sprake van meer Cd-ophoping.

(c) Opnieuw blijkt, dat Zn dieper penetreert in het zandpakket dan andere metalen, namelijk tot 1 m bij pan 26.1.

(d) Afgezien van de twee "uitschieters" voor Pb en Hg, is het verloop voor de overige metalen niet afwijkend van het reeds eerder vermelde. De indringdiepte van Pb, Cr, Cu en Hg is ongeveer 0,1 tot 0,2 m.

(e) Nikkel lijkt een nog wat grotere indringdiepte te hebben dan Zn, namelijk ongeveer 3 m ten opzichte van 1 m. Er is geen blanco waarde voor Ni bepaald, zodat deze conclusie niet hard is. Uitgaande van de Amsterdamse blanco van 6 mg kg^{-1} is er zelfs van geen enkele ophoping sprake.

3.6.4 Het WMZ-infiltratiegebied te Haamstede

Onder andere in mei 1978 (nog vóór de aanvang van kunstmatige infiltratie, ter vaststelling van de "nultoestand"), november 1981 en februari 1984 zijn grondmonsters uit de Boompjesput genomen en ondermeer op een aantal metalen onderzocht. Een uitvoerig rapport over alle verrichte metingen is in voorbereiding (WMZ, 1984). Een deel der resultaten is in tabel 3.12 opgenomen. Hieruit kan het volgende worden afgeleid:

De blanco's van Pb en vooral Ni en Cd zijn duidelijk lager dan die van GW en de DWL, terwijl de Zn-blanco iets hoger is.

Locatie	Diepte m	Slib % DW	Fe	Mn	Zn	Pb	Ni	Cd	Cr	Hg	As	Ca	Mg
<u>Gemengde grond, november 1981</u>													
2-12	0 -0,1	1,1	1000	27	17	5	2	0,23	4,5	< 0,01	2,5	840	180
2-12	0,5-0,6	< 0,3	1260	13	7	2	1	0,22	4	< 0,01	2,5	360	220
4-12	0 -0,1	2,0	1440	14	35	25	3	0,55	5,5	< 0,01	6,0	6700	300
4-12	0,5-0,6	0,7	1580	12	8	3	2	0,25	3,5	< 0,01	6,0	1040	260
5-37	0 -0,1	1,1	1100	18	18	20	2	0,50	3,5	< 0,01	4,5	4180	260
5-37	0,3-0,45	< 0,3	1260	12	3	2	1	0,03	4	< 0,01	6,0	1080	220
7-37	0 -0,1	4,5	1800	10	53	10	4	0,50	7	0,02	8,0	10240	400
7-37	0,3-0,4	0,5	1060	8	4	6	1	0,09	2,5	< 0,01	4,0	4060	220
8-18	0 -0,1	2,2	1400	21	22	7	2	0,31	4	0,02	4,0	5260	280
8-18	0,1-0,2	0,7	1240	10	5	3	1	0,20	3,5	< 0,01	2,5	1580	250
10-15	0 -0,1	1,9	1340	13	24	24	3,5	0,61	4	< 0,01	2,5	7560	280
10-15	0,5-0,6	0,8	1000	9	5	6	1	0,23	3	< 0,01	3,5	11500	200
<u>Blanco's, Boompjesput mei 1978</u>													
diverse	0 -0,05	-	-	-	8,4	2,2	1,0	0,02	-	-	-	-	-
locaties	0,4-0,9	-	-	-	12	1,6	1,2	0,02	-	-	-	-	-
<u>Bodemslib, Boompjesput februari 1984</u>													
diverse	0 -0,03	100	-	-	1031	176	45	5,3	173	1,9	15	-	-
locaties													

Tabel 3.12 - Ophoping van metalen in de bodem van de Boompjesput te Haamstede in mg/kg drooggewicht. Bemonstering in november 1981. Bodemslib is nooit verwijderd

Op enkele uitzonderingen na, bijvoorbeeld voor Fe, is in alle gevallen het gehalte in de bovenste grondlaag hoger dan in de lagen enkele decimeters daaronder. Dit houdt zeer sterk verband met een hoger slibgehalte bovenin onder andere als gevolg van de filtrerende werking van de bodem.

Er bestaat een positieve lineaire correlatie tussen het gehalte aan Zn, Pb, Ni, Cd, Cr en As en het slibgehalte van grondmonsters (zie WMZ, 1984).

De concentraties van anorganische microverontreinigingen in bodemslib (100 % slib) komen goed overeen met die in de bovenste grondmonsters van GW (zie tabel 3.9) en slibmonsters van de DWL (zie tabel 3.10).

Op 50-60 cm diepte komen min of meer natuurlijke gehalten van Zn, Pb, Ni en vermoedelijk Cr voor. Cadmium lijkt in dit geval de enige uitzondering en mogelijk As. De mate van ophoping in de bovenste zandlaag is in vergelijking met die van de twee

andere gebieden zeer beperkt onder andere vanwege de nog korte duur van infiltratie. Opvallend zijn de grote verschillen in Ca-gehalten, waaraan verschillen in de oorspronkelijke samenstelling van het zand met schelpresten ten grondslag moeten liggen.

3.6.5 Synthese

De resultaten verkregen in 3 infiltratiegebieden, te zamen in totaal 11 infiltratiemiddelen vertonen veel overeenkomsten, maar ook enkele opvallende verschillen:

(1) de zogenaamde "blanco gehalten" aan spoormetalen in onverdacht ondiep duinzand stemmen grofweg redelijk overeen. In het diepere duinzand (onder bodemslib) zijn de gehalten vermoedelijk nog wat lager, hetgeen door diverse analyses zeker niet wordt tegengesproken.

(2) de zogenaamde indringdiepte van verschillende metalen (dat wil zeggen de diepte tot waar ophoping wordt waargenomen ten opzichte van het blanco niveau) is overal van dezelfde grootte-orde.

Voor Pb, Cr, Cd, Cu en Hg bedraagt deze circa 1 m (waarvan alleen de eerste 20 cm duidelijk), voor Zn en mogelijk Ni enkele meters. Uitschieters op dit beeld vormen bij pan 26.1 Pb, Hg en Cd op 1 m diepte en Cd op alle diepten. Bij de Boompjesput kunnen As en Cd ten minste tot 0,5-0,6 m diepte in verhoogde concentraties aanwezig zijn.

(3) de geconstateerde maximale waarden voor spoormetaalgehalten zijn in het infiltratiegebied van GW hoger dan in dat van de DWL, terwijl die in de Boompjesput van de WMZ het laagst zijn. Dit is zeer waarschijnlijk grotendeels het gevolg van verschillen in slibgehalte van de onderzochte grondmonsters. Een verdere interpretatie volgt in par. 3.7.5.

3.7 Interpretatie van effecten van duininfiltratie

3.7.1 Overzicht van factoren en processen

Factoren

Effecten van duininfiltratie op de verandering in spoormetaalgehalten worden voornamelijk door de volgende beheersbare factoren gereguleerd: de voorzuivering, hoeveelheid en duur van de belasting van infiltratiewater met spoormetalen, verwijdering van bodemslib, bijmenging van duinwater en het al of niet gesloten terugwinnen van het met duinwater bijgemengde geïnfiltreerde oppervlaktewater (bij GW is de open Oranjekom gedeeltelijk verantwoordelijk voor concentratieveranderingen). Al deze factoren verschillen sterk van bedrijf tot bedrijf (zie tabel 2.2) en zijn dikwijls in de loop der tijd gewijzigd. Moeilijk beheersbare factoren zijn de atmosferische depositie en algengroei.

Genoemde factoren belemmeren een eenduidige interpretatie van effecten van duininfiltratie. Niettemin kunnen conclusies getrokken worden ten aanzien van de gevolgen van een verbeterde voorzuivering (par. 3.7.2), atmosferische depositie + verdamping (par. 3.7.3) en bijmenging van duinwater (par. 3.7.4).

Fysisch-chemische processen

De volgende fysisch-chemische processen zijn (mede) verantwoordelijk voor de in par. 3.5 gesignaleerde verandering in spoormetalengehalte van water bij duininfiltratie en de in par. 3.6 geconstateerde ophoping van spoormetalen in bodemslib en eventueel duinzand:

(1) filtratie van zwevende stofdeeltjes, waaraan spoormetalen gebonden zijn, vooral Cr, Cd en Pb (zie fig. 3.1 C en D);

(2) chemisorptie of adsorptie (doch ook desorptie) van opgeloste spoormetalen aan bodemslib en duinzand tijdens bodempassage en aan uitvlokkend $\text{Fe}(\text{OH})_3$ (vooral van As) in drainerende kanalen en verzamelbekken;

(3) (co)precipitatie (doch ook oplossing), vermoedelijk vooral van sulfiden, carbonaten of (hydr)oxiden van Be, Cr, Co, Ni, Cu, Zn, Cd, Hg en Pb (zie tabel 3.1). Respectievelijk de lokale vorming van ijzersulfiden in bodemslib, produktie van HCO_3 bij bodempassage en een soms aanzienlijke pH-verhoging in infiltratiemiddelen (Stuyfzand, 1985) maken dit in principe mogelijk;

(4) opslag in (doch ook mineralisatie van) biomassa. Hiervan is het effect van ondergeschikt belang in verband met de geringe massa (zie tabel 3.11).

Genoemde processen kunnen moeilijk afzonderlijk voor elk element gekwantificeerd worden, omdat informatie ontbreekt over de fase, waarin de bestudeerde elementen in bodemslib en duinzand aanwezig zijn. Volstaan wordt met een beschouwing over de retentie van de onderhavige spoorelementen bij bodempassage in par. 3.7.5.

3.7.2 Gevolgen van verdere voorzuivering

Gevolgen van verdere voorzuivering van het aangevoerde oppervlaktewater en van hiermee samenhangende neveneffecten voor de resultante van duininfiltratie kunnen worden nagegaan aan de hand van gegevens met betrekking tot het PWN, GW en de DWL (tabel 3.7 en fig. 3.2). Een aanzienlijke verlaging in de aanvoer van spoormetalen (en onder andere zware stof, Fe en Mn), grotendeels als gevolg van verdere voorzuivering, gaat ook gepaard met: (a) vermoedelijk een hoger percentage opgeloste spoormetalen (ten koste van het slibgebonden percentage;

vergelijk fig. 3.2D met 3.2B), hetgeen de mobiliteit ervan zou kunnen verhogen; en (b) het niet meer verwijderen van bodemslib bij het PWN en GW (zie tabel 2.2), waardoor als het ware een depot aan spoormetalen is achtergelaten. De DWL heeft slechts incidenteel slib verwijderd gedurende de nu 29 jaar lange infiltratieperiode.

Bovenstaande omstandigheden leiden te zamen tot een verminderde verwijdering c.q. mobilisatie of desorptie van As, die tevens kan worden vastgesteld bij de waarnemingsputten tussen pan 13 en de hoofdader (zie tabel 3.8).

Er lijkt bij de DWL een verband te bestaan tussen de As-mobilisatie en die van orthofosfaat, zowel voor de hoofdader als voor de waarnemingsputten. Voor de laatste is dit verband in fig. 3.8 weergegeven. Verwezen wordt naar Stuyfzand (1985) voor een uitgebreidere bespreking van de oorzaken van de fosfaatmobilisatie en desorptieverschijnselen. In de literatuur wordt gewezen op het analoge gedrag van fosfaat en arsenaat (onder andere Gullede & O'Connor, 1973; Fassbender, 1974; Bolt & Bruggenwert, 1976).

3.7.3 Effecten van verdamping en atmosferische depositie

De procentuele concentratieverandering in infiltratiemiddelen ten gevolge van verdamping en atmosferische depositie ($\% \Delta C$) kan als volgt berekend worden (zie Stuyfzand, 1985):

$$\% \Delta C = 100 \left\{ \frac{(h_i + h_p + E_o)(h_p C_p + h_i C_i)}{C_i (h_i + h_p)^2} - 1 \right\} \quad (3.1)$$

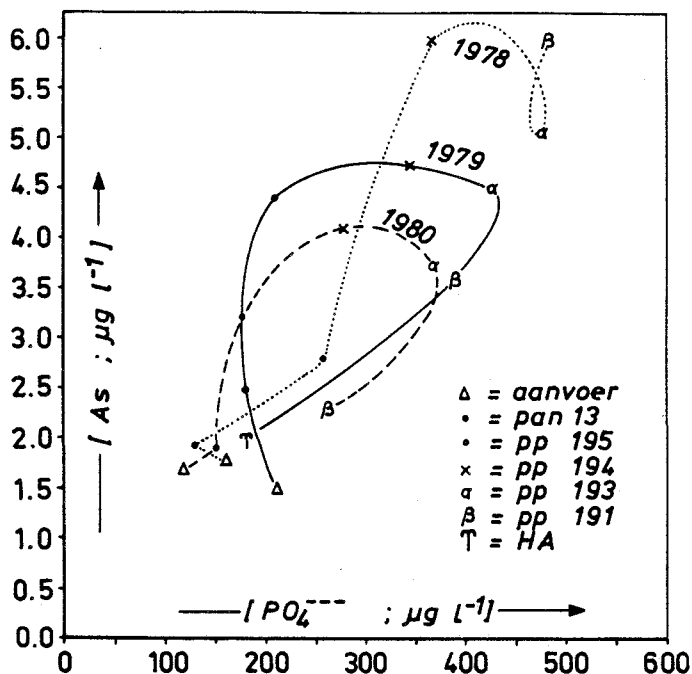


Fig. 3.8 - Verband tussen het gemiddelde orthofosfaat- en As-gehalte voor diverse DWL-meetpunten gedurende de jaren 1978, 1979 en 1980. De meetpunten zijn met elkaar verbonden volgens de stroomrichting, voor elk jaar afzonderlijk

waarin h_i = flux van aangevoerd oppervlaktewater ($\text{mm m}^{-2} \text{d}^{-1}$; zie tabel 2.2); h_p = flux van regenwater ($\text{mm m}^2 \text{d}^{-1}$; zie tabel 3.5); E_o = open waterverdamping ($\text{mm m}^{-2} \text{d}^{-1}$); C_p = concentratie in regenwater (mg l^{-1} ; zie tabel 3.5); en C_i = concentratie in aangevoerde oppervlaktewater (mg l^{-1} ; zie tabel 3.3).

Het $\% \Delta C$ is alleen voor de DWL, gemiddeld over 1978-1982, berekend (zie tabel 3.13). Dezelfde orde van grootte geldt tevens voor het PWN en GW, in verband met een vergelijkbare lage aanvoer van spoorelementen in het oppervlaktewater en een min of meer vergelijkbare atmosferische depositie. Zo wordt bij GW voor dezelfde periode een $\% \Delta C$ voor Cu, Zn, Cd en Pb berekend van respectievelijk 3, 4, 3 en 12 %.

	Schev. regen	Maas aanv.	%ΔC	ond. diep		HA	%B
				duinwater			
V*	5	1,4	6,1	0,3	0,2	1,2	90 (↓)
Cr*	0,3	1,0	0,4	0,8	0,2	0,9	78 (↓)
Co*	0,6	0,3	3,4	0,3	0,05	0,3	- (-)
Ni	1,6	5,0	0,5	1,5	1	2,9	28 (↓)
Cu	8,3	6,3	2,2	4	0,5	4,5	35 (↓)
Zn	48	37	2,2	20	3	28	44 (↓)
As	0,6	1,4	0,7	1	1	1,72	-20 (↑)
Cd	0,40	0,75	0,8	0,05	0,05	0,73	100 (↓)
Hg*	0,05	0,07	1,1	-	-	0,13	? (↑)
Pb	18,1	2,7	11,5	2	0,5	2,6	100 (↓)
Br	70 _α	146	0,7	180	180	174	19 (↑)

* = analyse van Maas-aanvoer en hoofdader (HA) in de buurt van de onderste analysegrens, waardoor het %ΔC en %B onbetrouwbaar; α = geschat

Tabel 3.13 - Minimale procentuele concentratieverandering in infiltratiemiddelen ten gevolge van verdamping en atmosferische depositie (%ΔC), alsmede de procentuele bijdrage van bijmenging van ondiep en diep duinwater (%B) in de concentratieverlaging (↓) of toename (↑) bij duininfiltratie, voor diverse spoorelementen bij de DWL, gemiddeld over de periode 1978- 1982. Randvoorwaarden: $h_i = 126,3$ mm d⁻¹; $h_p = 2,18$ mm d⁻¹; $E_o = 2,1$ mm d⁻¹; $f_{od} = 0,08$; $f_{dd} = 0,077$

Voor de LDM en WMZ zijn de in tabel 3.13 gegeven waarden van het %ΔC waarschijnlijk aan de hoge kant. Uit tabel 3.13 volgt, dat vooral concentraties van Pb en V als gevolg van atmosferische depositie (en verdamping) toenemen in infiltratiemiddelen. De toename van de overige spoorelementen lijkt verwaarloosbaar. Wordt echter een korte, ongunstige periode beschouwd, dan kan het %ΔC oplopen tot enkele tientallen procenten (Stuyfzand, 1985), niet alleen voor V en Pb, doch ook voor Cu en Zn (Smeenk en Vermeulen, 1979).

Een beperking in deze conclusies wordt gevormd door het uitgangspunt van een goede overeenkomst tussen atmosferische depositie op een altijd open regen-

vanger en op een wateroppervlak. Lewis (1983) toont namelijk aan, dat dit niet het geval hoeft te zijn. In Colorado (VS) constateerde hij voor de meeste macroparameters, waartoe zijn studie zich beperkte, een hogere atmosferische depositie op een wateroppervlak dan op een standaardregenvanger. Het ligt ook eigenlijk voor de hand, dat een altijd nat oppervlak een hogere vangst aan fijne stofdeeltjes heeft dan een dikwijls droog oppervlak, zoals de trechter van een regenvanger. Derhalve moeten de berekende ΔC -waarden als ondergrens worden gezien.

3.7.4 Effecten van bijmenging van duinwater

De procentuele bijdrage van bijmenging van ondiep en diep duinwater in de concentratie-afname of toename bij duininfiltratie (%B), wordt aldus berekend:

$$\%B = 100 \left\{ \frac{C_i - C_i^*}{C_i - C_{uit}} \right\} \quad (3.2)$$

waarin C_i = concentratie in het aangevoerde water (zie tabel 3.3); C_{uit} = concentratie in het water na duininfiltratie (dus ook na bijmenging), doch vóór nazuivering (zie tabel 3.7); en C_i^* = concentratie in het aangevoerde water na bijmenging, onder aanname van conservatief menggedrag, dus:

$$C_i^* = f_{od}C_{od} + f_{dd}C_{dd} + (1 - f_{od} - f_{dd}) C_i \quad (3.3)$$

waarin f_{od} = fractie ondiep duinwater in het mengsel (zie tabel 2.2); f_{dd} = idem diep duinwater (zie tabel 2.2); C_{od} = concentratie in ondiep duinwater (zie tabel 3.6); C_{dd} = idem diep duinwater (zie tabel 3.6).

Als voorbeeld is voor de DWL het %B uitgerekend, gemiddeld over de periode 1978-1982 (tabel 3.13). Uit deze tabel volgt een nogal wisselend %B: voor V, Cr, Cd en Pb is het %B hier zeer hoog en voor de overige elementen matig hoog. Alleen voor Br draagt de bijmenging bij aan een concentratietoename. Bij alle bedrijven fluctueert het %od en %dd vrij sterk (zie Stuyfzand, 1985), zodat ook het %B aanzienlijk fluctueert. Uit tabel 2.2 volgt, dat het %od + %dd bij de WMZ te Ouddorp en te Haamstede in doorsnee hoger is dan bij de DWL en derhalve mogelijk ook het %B. Bijmenging van diep duinwater zal in het algemeen (As en Br eventueel uitgezonderd) tot een grotere concentratieverlaging leiden dan bijmenging van ondiep duinwater (zie tabel 3.13), zodat het %B bij GW thans mogelijk lager is dan bij de DWL.

3.7.5 Retentie

De figuren 3.5-3.7 illustreren de retentie (= verwijdering uit de waterfase) van diverse sporelementen in bodemslib en eventueel duinzand. In hoeverre deze retentie, die globaal besproken is in par. 3.6.5, rijmt met de concentratieverandering van sporelementen bij duininfiltratie (besproken in par. 3.5), zal in deze paragraaf worden nagegaan.

Het is daartoe nuttig eerst de "chromrelatieve slibaccumulatie-index" van element x $\{I(x)\}$ als volgt te definiëren:

$$I(x) = \frac{[(x)\text{slib} - (x)\text{bl}](\text{Cr})_i}{[(\text{Cr})\text{slib} - (\text{Cr})\text{bl}](x)_i} \quad (3.4)$$

waarin $(x)\text{slib}$ = concentratie van x in slib;

$(Cr)_{slib}$ = idem van Cr; $(x)_{bl}$ = concentratie van x in "blanco duinzand"; $(Cr)_{bl}$ = idem van Cr; $(Cr)_i$ = Cr-concentratie in het aangevoerde oppervlaktewater; $(x)_i$ = idem x.

In feite is $I(x)$ gelijk aan de verhouding van x/Cr in slib (gecorrigeerd voor bijgemengd duinzand) en x/Cr in het aangevoerd water, en vormt dus als het ware een Cr-relatieve verdelingscoëfficiënt.

Chroom is als referentie gekozen, omdat: (1) Cr ten opzichte van andere elementen voor een groot deel in bodemslib wordt vastgelegd en bij duininfiltratie weinig mobiel is; (2) een bijdrage van Cr in bodemslib door atmosferische depositie klein is (dit itt Pb, zie tabel 3.13) en (3) Cr ook in de bodemkunde (Bolt & Bruggenwert, 1976), bij oeverfiltratie (Schöttler, 1980), bij drinkwaterbereiding met behulp van conventionele zuiveringstechnieken (Reichert et al, 1972) en in kolomexperimenten met duinzand (Hrubec, 1975) als behoorlijk immobiel naar voren komt.

Voor 7 spoormetalen is $I(x)$ berekenend (zie tabel 3.14) aan de hand van de bovenste grondanalyses (voornamelijk bestaande uit slib) van GW (boringen I, II, IV-VI) en van de DWL (pannen 8.2 en 8.4.2) en met relevante $(x)_i$ -waarden voor het toen liggende slib.

Uit tabel 3.14 en fig. 3.1 volgt: (a) Ni, Cu en Cd accumuleren in slib in relatief geringe mate. Dit correspondeert wat Ni en Cu betreft goed met een lage slibgebondenheid ervan in de aanvoer. Voor Cd is dit echter niet het geval, zodat een mobilisatie vanuit het slib waarschijnlijk is; (b) Pb, Hg en (natuurlijk) Cr accumuleren in sterke mate in bodemslib, hetgeen wat Pb en Cr betreft goed overeenkomt met de hoge slibgebondenheid ervan in de aanvoer. Kwik zou door andere processen dan filtra-

	$(x)_{bl}$	$(x)_i$			I(x)			
		GW 72-73	DWL* 72-73	DWL α 76-77	gem	min	max	n
Cr	3	3,5	9,9	2,75	1,0	1,0	1,0	7
Ni	4	13,7	-	5,1	0,13	0,07	0,26	6
Cu	1	11	13,6	9,6	0,23	0,09	0,46	7
Zn	5	78	79	18,5	0,75	0,35	2,07	7
Cd	0,2	0,60	0,49	0,41	0,42	0,17	0,97	7
Hg	0,03	-	0,26	-	1,09	-	-	1
Pb	3	11,5	4,3	2,5	1,04	0,39	2,88	7

* = voor pan 8.2; α = voor pan 8.4.2; n = aantal analyses

Tabel 3.14 - De gemiddelde, minimale en maximale "chromorelatieve slibaccumulatie-index" I(x) voor 7 spoormetalen in infiltratiemiddelen van GW en de DWL, alsmede de concentratie van deze metalen in blanco duinzand $(x)_{bl}$ en in het aangevoerde oppervlaktewater $(x)_i$

tie in bodemslib kunnen accumuleren, gelet op de geringere slibgebondenheid ervan in de aanvoer; (c) Zn neemt een tussenpositie in, hetgeen ook qua slibgebondenheid ervan in de aanvoer het geval is.

Hoewel de totale accumulatie in bodemslib mogelijk in het algemeen gering is ten opzichte van die in de eerste meter van het onderliggende duinzand (zie tabel 3.11), correspondeert het bovenstaande beeld van accumulatie in bodemslib tijdens de daarvoor verantwoordelijke infiltratieperiode goed met de zeer goede verwijdering van Cr, de redelijke verwijdering van Pb en Hg en de matige verwijdering van Cd bij duininfiltratie. Een relatief hoge mobiliteit van Cd is tevens geconstateerd bij infiltratieproeven met WRK-water in met duinzand (Hrubec, 1975) en Veluwezand (Hrubec, 1977) gevulde ketels te Leiduin, alsmede bij oeverfiltratie (Schöttler, 1980), langzame zandfiltratie (Schöttler, 1975) en drinkwaterbereiding met behulp van andere zuiveringstechnieken (Reichert et al, 1972).

Hoewel Ni relatief het minst in bodemslib accumuleert, is de verwijdering ervan bij duininfiltratie toch goed. Vermoedelijk hoopt Ni zich in geringe mate maar over grote afstand in duinzand op. Hiervoor pleiten ook de Ni-analyses van grondwater in de puttenraai bij pan 13 (zie tabel 3.8), alsmede grondonderzoek aan met duinzand gevulde ketels te Leiduin, waarin van juni 1972 tot oktober 1973 WRK-water geïnfiltreerd werd (Hrubec, 1975). Analyses van duinzand in situ geven hieromtrent echter geen eenduidig inzicht, mogelijk vanwege een te hoge blancowaarde van 4-6 mg kg⁻¹ (volgens de WMZ 1 mg kg⁻¹)

Bij duininfiltratie wordt Zn redelijk verwijderd dankzij immobilisatie in bodemslib en vooral duinzand. Hetzelfde kwam naar voren uit de infiltratieproeven met WRK-water in duinzand, beschreven door Hrubec (1975). De daar voorspelde doorslag van Zn kan in het duin niet eenduidig worden vastgesteld. Een vrij redelijke concentratieverlaging van Cu in oppervlaktewater bij duininfiltratie kan slechts verklaard worden door een geringe accumulatie over vrij grote afstand in duinzand. Een vrijwel gelijk-luidend betoog als voor Ni zou moeten gelden.

3.8 Duininfiltratie vergeleken met voor- en nazuivering

Ter vergelijking van de effecten van duininfiltratie met die van voor- en nazuivering zijn in tabel 3.15 relevante gegevens gepresenteerd met betrekking tot de DWL en GW, zowel tijdens een geringe mate van voorzuivering (respectievelijk 1974-1975 en 1972-1973) als in een periode van verdere voorzuivering (beide 1978-1982).

Voor- en nazuivering zijn reeds in respectievelijk par. 2.3.2 en 2.3.4 nader toegelicht. De berekening van het relatieve aandeel van de in serie geschaalde voorzuivering, duininfiltratie en nazuivering in de totaal bereikte kwaliteitsverandering, is in tabel 3.15 aangegeven. De volgende conclusies kunnen getrokken worden.

Voorzuivering levert bij de DWL en GW, zowel ten tijde van mindere als verdere voorzuivering, het grootste aandeel in de totaal bereikte verandering in spoorelementen-, CN-, Fe-, Mn- en zwevend stofgehalte. Verdere voorzuivering leidt bij beide in het algemeen tot een verhoging van dit aandeel. Relatief wat laag is de bijdrage in de verlaging van Cu (GW en DWL) en Ni (alleen gegevens voor de DWL) en verhoging van Br (DWL). Laatstgenoemde wordt vermoedelijk veroorzaakt door bijmenging van uitgeslagen polderwater langs de afgedamde Maas. Het algemeen hoge rendement van de voorzuivering is het gevolg van de plaats in de totale behandeling (vooraan) en de hoge slibgebondenheid van de meeste spoorelementen.

Duininfiltratie neemt globaal een tussenpositie in qua aandeel in de totaal bereikte verandering van het spoorelementengehalte. Tegengesteld aan de werking van voor- en nazuivering is de concentratieverhoging van As, Fe en Mn. Bij GW is het effect van duininfiltratie groter dan bij de DWL, waarvoor factoren, genoemd in par. 3.5.1, verantwoordelijk zijn. Verdere voorzuivering verlaagt het aandeel van duininfiltratie in het algemeen. Koper en Ni worden bij duininfiltratie, evenals bij voor- en nazuivering, redelijk in concentratie verlaagd.

Nazuivering heeft globaal het kleinste aandeel in de totaal bereikte verandering in spoorelementenge-

µg/l	DWL, 1974 - 1975				DWL, 1978 - 1982				% V		% D		% N	
	Lek	Aanv.	HA	DW	Maas	Aanv.	HA	DW	74-75	78-82	74-75	78-82	74-75	78-82
Be ^β	-	-	-	-	0,08 ^δ	<0,05	<0,05	<0,05	-	100 ^γ	-	0 ^γ	-	0 ^γ
V ^γ	-	-	-	-	5,0 ^δ	1,4	1,2	<1,5	-	95	-	5	-	?
Cr	16,5	9,3	4,5	4,3	4,9	1,0	0,94	0,71	59	93	39	1	2	5
Co	-	-	-	-	1,2	<0,6	<0,6	0,3	-	> 67	-	< 33	-	< 33
Ni	-	-	-	-	8,4	5,0	2,9	1,7	-	51	-	31	-	18
Cu	18,5	15,0	7	6,8	9,6	6,3	4,5	3,2	30	52	68	28	2	20
Zn	205	73	20	15	147 ^α	37 ^α	28 ^α	17 ^α	69	85	28	7	3	8
As	-	-	-	-	5,0	1,4	1,7	<1,3	-	< 97	-	-9	-	> 3
Se	-	-	-	-	<0,6	<0,6	<0,6	<0,6	-	?	-	?	-	?
Cd	1,0	0,49	0,40	0,33	1,88	0,5 ^α	<0,5 ^α	<0,5 ^α	76	82	13	18 ^γ	19	0 ^γ
Hg	0,25	0,1	<0,1	0,05	0,24	0,07	0,13	<0,1	75	100	25	-35	25	?
Pb	16,5	4,7	2,5	2,4	12,6	2,7	2,6	2,0	84	93	16	1	1	6
CN ^ε	-	-	-	-	1,1	<1,0	<1,0	<1,0	-	100 ^γ	-	0 ^γ	-	0 ^γ
Br ^{-δ}	-	-	-	-	129	150	175	171	-	50	-	60	-	-10
• zwev. stof	36	1,3	1,7	0,2	27,3	0,8	1,5	0,2	97	98	-1	-3	3	2
• Fe	1,3	0,18	0,46	<0,03	0,87	0,07	0,37	0,01	87	93	-22	-35	13	7
• Mn	-	100	140	<30	123 ^β	37	99	<5	-	71	-	-51	-	29
• TOC	5,8	5,0	3,5	3,0	5,3	5,2	3,7	3,3	29	5	54	75	18	20

α = 1978-1980; β = 1980-1982; γ = 1979-1982; δ = 1981-1982; ε = 1979-1981; • = mg/l; * = Lekkanaalwater, ingelaten door de WVK

µg/l	GW, 1972- 1973				GW, 1978 - 1982				% V		% D		% N	
	Lek*	Aanv.	CK	DW	Lek*	Aanv.	CK	DW	72-73	78-82	72-73	78-82	72-73	78-82
Cr	17,5	3,5	<3	<3	8,4	2,3	<1	<1	< 97	77	> 3	23	?	?
Cu	17,5	11,0	12,0	8,0	10,0	6,4	3,0	2,2	68	46	-11	44	32	10
Zn	145	78	24	28	62	17,8	5,0	5,0	55	78	45	22	0	0
As	-	-	-	-	3 ^δ	< 1	1,6	1,4	-	100	-	-13	-	13
Cd	1,2	0,6	0,45	0,5	0,66	0,21	0,09	0,09	80	79	20	21	0	0
Hg	0,62	0,21	0,18	0,13	0,34	0,18	0,09	0,06	84	57	6	32	10	11
Pb	24,5	11,5	6,5	4,3	5,4	1,8	1,2	1,2	64	86	25	14	11	0
• zwev. stof	60	6,0	-	-	31,2	0,4	-	-	-	-	-	-	-	-
• Fe	1,1	0,23	0,75	<0,05	0,70	0,03	0,39	0,02	81	99	-48	-54	19	54
• Mn	-	-	-	-	114	20	80	20	-	100	-	-64	-	64
• TOC	8,0	6,1	5,0	3,9	3,9	3,1	3,1	2,7	46	67	-8	-8	27	42

% V = ((x) rivier - (x) aanvoer)/ΔT = procentueel aandeel voorzuivering
 % D = ((x) aanvoer - (x) HA of CK)/ΔT = procentueel aandeel duinfiltratie
 % N = ((x) HA of CK - (x) DW)/ΔT = procentueel aandeel nazuivering
 ΔT = (x) rivier - (x) DW = totaal bereikte kwaliteitsverandering

Tabel 3.15 - Vergelijking van de effecten van duin-infiltratie met die van voor- en nazuivering, bij de DWL en GW voor een periode met mindere (respectievelijk 1974-1975 en 1972-1973) en verdere voorzuivering (beide 1978-1982)

halte. Het bij duinfiltratie toegenomen Fe- en Mn-gehalte wordt echter goed omlaag gebracht. Een redelijke verlaging van Cu, As, Ni en Hg wordt in het algemeen bereikt. Door hogere spoorelementenconcentraties in de Hoofdader is bij de DWL het relatieve aandeel van de nazuivering groter dan bij GW.

Het algemeen lage rendement van de nazuivering ten

aanzien van spoorelementen is vooral het gevolg van de plaats in de totale behandeling (achteraan).

3.9

Conclusies

- (1) Verdamping in en atmosferische depositie op infiltratiemiddelen leiden bij de DWL gemiddeld over 1978-1982 tot een concentratieverhoging van spoorelementen in het aangevoerde oppervlaktewater van circa 1-12 %. De verhoging is het hoogst voor Pb (11,5 %) en V (6 %) en bedraagt voor de overige elementen minder dan 3,4 %. Ten opzichte van de overige duininfiltratie plegende bedrijven, moet dit als goed representatief of als bovengrens worden gezien. In absolute zin kunnen de genoemde percentages minima zijn, wanneer een wateroppervlak inderdaad meer fijne stofdeeltjes invangt dan de trechter van een standaardregenvanger.
- (2) Bijmenging van ondiep en vooral diep duinwater vormt een belangrijke bijdrage aan de concentratieverlaging van spoorelementen bij duininfiltratie. Deze bijdrage varieert van bedrijf tot bedrijf en met de tijd. Bij lage concentraties spoorelementen in het aangevoerde water kan deze bijdrage oplopen tot 100 % van de geconstateerde verlaging. Diep duinwater bevat in het algemeen minder spoorelementen (behalve Br en As) dan ondiep duinwater, zodat bijmenging van diep duinwater tot een verdere concentratieverlaging leidt dan die van ondiep duinwater.
- (3) Duininfiltratie leidt in het algemeen tot een redelijke concentratieverlaging van Cr (50-90 %), Ni (40-80 %), Cu (30-50 %), Zn (25-90 %), Cd (15-50 %) Hg (40-50 %) en Pb (30-60 %), althans wanneer de concentraties hiervan in het aangevoerde oppervlak-

tewater wezenlijk hoger dan de onderste analysegrens liggen. In dat geval (en anders nog meer) eist bijmenging met ondiep en vooral diep duinwater globaal circa 20 % van de concentratieverlaging voor zich op. Binding aan bodemslib en aan de eerste meter onderliggend duinzand verzorgt dan vrijwel de resterende 80 % van de concentratieverlaging, althans indien er tevens sprake is van een gesloten terugwinning.

Over het gedrag van Be, Co, Se en CN bij duinfiltratie kan slechts worden opgemerkt, dat de concentraties hiervan beneden de onderste analysegrens blijven. Vanadium neemt thans bij de DWL slechts met 15 % af, hetgeen door de heersende omstandigheden (waarden dichtbij onderste analysegrens en situatie na verdere voorzuivering) als minimumwaarde moet worden opgevat.

- (4) Hoewel de gehalten van spoormetalen in algen en bodemslib relatief zeer hoog zijn, wordt het grootste deel van uit water verwijderde spoormetalen gebonden aan duinzand en wel grotendeels binnen 1 m onder het bodemslib. Bij frequente bodemslibverwijdering, vroeger bij het PWN en GW nog gebruikelijk, zal dit deel kleiner zijn geweest, vooral wat betreft Cr, Hg en Pb. Deze elementen hopen zich namelijk relatief in sterke mate op in bodemslib, hetgeen uit waarnemingen en uit de in par. 3.7.5 gedefinieerde "chromrelatieve slibaccumulatie-index" volgt. Voor Pb en Cr is dit goed verklaarbaar door de hoge slibgebondenheid ervan in de aanvoer. Voor Hg moet nog een ander proces dan filtratie tot het hoge percentage bodemslibaccumulatie leiden. Ondanks de hoge slibgebondenheid van Cd in de aanvoer is de accumulatie in bodemslib relatief erg gering, hetgeen op mobilisatie ervan in bodemslib duidt.

Accumulatie van alleen Zn en mogelijk Ni is waargenomen tot meerdere meters onder het bodemslib. Een nauwkeuriger analyse zou dit evenwel ook voor andere elementen en tot grotere afstanden aan het licht kunnen brengen (zie aanbeveling b). De niveau's zijn voorbij 20 cm echter erg laag.

De retentie in duinzand neemt met de afstand tot de bodemsliblaag af. Vermoed wordt, dat dit minder het gevolg is van doorslagverschijnselen dan wel van een met de afstand afnemend bindend vermogen van duinzand (vooral in de vorm van adsorptie), mogelijk vanwege een afnemende penetratie van bodemslib en dalende biologische activiteit.

- (5) Bij de DWL kan een As-mobilisatie, analoog aan die van orthofosfaat in een raai waarnemingsputten, worden vastgesteld. Dit houdt verband met de lange duur van de infiltratie met As bevattend oppervlaktewater (thans 30 jaar), met het feit, dat er nooit bodemslib is verwijderd en met de verdere voorzuivering sinds 1976, waardoor de concentraties in de aanvoer sterk zijn verlaagd en waarschijnlijk het percentage opgelost As is toegenomen.
- (6) Een gunstiger beeld van de effecten van duininfiltratie bij GW, ten opzichte van dat bij de DWL, houdt vooral verband met het feit, dat het verblijf in drainerende en transporterende kanalen en het eindpunt, de Oranjekom, gerekend wordt tot duininfiltratie, terwijl het overigens veel kortere verblijf in het verzamelbekken van de DWL, na kooldosering (!) tot de nazuivering gerekend wordt. Daarnaast dragen zowel het ontbreken van slibverwijdering door de DWL itt GW (tot en met 1973) als een ten opzichte van GW lager gehalte aan organische stof en klei van de ondergrond in het infiltratiegebied van de DWL waarschijnlijk bij aan de wat geringere concentratieverlagingen van spoormetalen bij duininfiltratie.

- (7) Bromide wordt niet verwijderd als gevolg van een op Cl gelijkend gedrag. De huidige geringe toename bij de DWL na duininfiltratie wordt grotendeels veroorzaakt door bijmenging van vóór 1976 geïnfiltreerd Lekwater.
- (8) Ten opzichte van de effecten van voor- en nazuivering neemt duininfiltratie een tussenpositie in. Het hoogste rendement van verlaging van spoor-elementconcentraties wordt door de voorzuivering gehaald, dankzij de plaats in de totale behandeling (vooraan) en de effectiviteit van verwijdering van slib, waaraan veel spoorelementen gebonden zijn. Nazuivering heeft het laagste rendement door de plaats in de totale behandeling (achteraan).

3.10 Aanbevelingen

- (a) Relaties tussen concentraties van spoorelementen in grond (bodemslib en duinzand) en het organische stof-, kalk-, klei- en slibgehalte, de kationuitwisselingscapaciteit en kleur van de grond, alsmede de ligging van het bemonsterde punt zijn niet/nauwelijks onderzocht. Verwacht wordt, dat dergelijke relaties belangrijk zijn en relevant voor interpretatie van waterkwaliteitsveranderingen bij duininfiltratie.

Een nauwkeurige bepaling van genoemde parameters volgens standaardmethoden is vereist.

- (b) Voor de bepaling van een geringe accumulatie van een aantal spoorelementen in duinzand zijn de tot dusver gevolgde methoden niet gevoelig genoeg. Aan de andere kant moet getwijfeld worden aan de waarde van de gehanteerde blanco's (van ondiep duinzand) voor dieper duinzand, met name in verband met invloeden van luchtverontreiniging op ondiep duinzand, leidend tot concentratieverhogingen. Der-

halve wordt aanbevolen om duinzand en onderliggend strand en ondiep marien zand in gebieden zonder kunstmatige infiltratie tot grotere diepten te onderzoeken.

De grotere nauwkeurigheid kan worden bereikt door neutron activeringsanalyse, met als bijkomend voordeel, dat tegen lage kosten een groot aantal sporelementen tegelijk bepaald kan worden.

- (c) Desorptie- en mobilisatieverschijnselen dienen met kolomproeven te worden onderzocht, om de effecten van een verdere voorzuivering te verklaren (DWL) of voorspellen (mogelijk WMZ).

De kolommen dienen dan te bestaan uit chemisch inerte cylinders gevuld met een zo ongestoord mogelijk profiel van bodemslib op duinzand tot bijvoorbeeld 2 meter diepte. De waarde van kolomproeven blijkt onder andere uit een aantal opvallende overeenkomsten tussen de kolomproeven van Hrubec (1975) en waarnemingen in de praktijk van duininfiltratie (zie par. 3.7.5).

- (d) Uit de literatuur (Lewis, 1983) volgt, dat atmosferische depositie op een altijd open regenvanger kleiner kan zijn dan die op een wateroppervlak. Ter evaluatie van de bijdrage van atmosferische depositie aan de belasting van infiltratiemiddelen (onder andere) met spoorelementen dient derhalve met speciale regenvangers, waarin altijd een laag water in de opvangtrechter staat, te worden gemeten.

3.11 Literatuur

Becking, D. (1974): "Vervuiling van het zandpakket bij infiltratie".

Intern Rapport GW, 8 p..

Bolt, G.H. & M.G.M. Bruggenwert, eds. (1976):
"Soil chemistry, A: Basic elements".
Developments in soil science 5A, Elseviers Sci.
Publ. Comp. A'dam, 281 p..

Dibbets, G. & W. van de Meent, (1979): "Voorkomen
en gedrag van aan zwevende stof gebonden metalen in
relatie tot de drinkwatervoorziening, een litera-
tuurstudie".
Rapport KIWA, SWE-230, 87 p..

DWL (1970-1982): "Jaarverslagen Duinwaterleiding
van 's-Gravenhage, 1970 tot en met 1982".

EG (1980): "Richtlijn van de Raad van 15 juli 1980
betreffende de kwaliteit van voor menselijke con-
sumptie bestemd water".
Publ. blad Eur. Gemeenschappen, nr. L 229, p. 11-
29.

Fassbender, H.W. (1974): "Gehalt, Formen und Fixie-
rung von Arsenat im Vergleich zu Phosphat in Wald-
böden".
Zeitschr. f. Pflanzenernährung & Bodenk (137),
p. 188-203.

Faust, S.D. & Aly, O.M. (1981): "Chemistry of natu-
ral waters".
Ann Arbor Science, Publ. Inc. The Butterworth
Group, 400 p.

GW (1970-1982): "Jaarverslagen Gemeentewaterleidin-
gen Amsterdam van 1970 tot en met 1982".

Gulledge, J.H. & J.T. O'Connor, (1973): "Removal of arsenic (V) from water by adsorption on aluminum and ferric hydroxides".

JAWWA (), p. 548-552.

Hem, J.D. (1970): "Study and interpretation of the chemical characteristics of natural water".

2nd Ed., US Geol. Surv. Water-Supply Paper 1473, 363 p..

Hrubec, J. (1975): "De invloed van licht bij infiltratie van Rijnwater in duinzand".

Rapport Comm. Proefinstallatie Infiltratie, RID, 32 p. en 19 bijlagen.

Verkort in H₂O (8), p. 41-42.

Hrubec, J. (1977): "De infiltratie van voorgezuiverd Rijnwater in Veluwezand: resultaten van proeven met de RID/KIWA-proefinstallatie te Leiduin".

Rapport Comm. Proefinstallatie Infiltratie, RID cba-r-77/10, 130 p., 48 tabellen en 82 bijlagen.

Verkort in H₂O (8), 1975, p. 315-319.

KNMI (1982-1983): "Chemical composition of precipitation over the Netherlands".

Annual report 1981 and 1982 respectively, KNMI 156-4 and 156-5.

Lewis, W.M. (1983): "Collection of airborne materials by a water surface".

Limnol. Ocanogr. (28), p. 1242-1246.

PWS (1978-1982): "Metingen Luchtverontreiniging in Noord-Holland".

Kwartaal-, halfjaarlijkse of jaarverslagen over 1978 tot en met 1982. Dienst Milieuhygiëne Prov. Waterstaat Noord-Holland.

Reichert, J., K. Haberer & S. Normann, (1972):
"Untersuchungen über das Verhalten von Spurenelementen bei der Trinkwasseraufbereitung".
Vom Wasser (39), p. 137-146.

RID (1980-1983): "RID-regenwatermeetnet".
Verslagen over de periode juli 1978 tot en met december 1982, cbh 80-13, cbh 80-13/1 tot en met 13/4, cbh 81-14/1 tot en met 14/4 en cbh 82-3 tot en met 82-6.

RWS (1978-1980): "Kwaliteitsonderzoek in de rijkswateren".
Kwartalverslagen Rijkswaterstaat/RIV/RID van 1978 tot en met 1980, samengesteld door RIZA, Lelystad.

Schöttler, U. (1975): "Das Verhalten von Schwermetallen bei der Langsandsfiltration".
Z. dt. geol. Ges. (126), p. 373-384.

Schöttler, U. (1980): "Das Verhalten von Spurenelementen bei der Wasseraufbereitung unter besonderer Berücksichtigung der künstlichen Grundwasseranreicherung".
Veröff. Instit. f Wasserforsch. GmbH Dortmund & Hydrol. Abt. Dortmund. Stadtwerke AG, Nr. 31, 141 p..

Smeenk, J.G.M.M. & A.J. Vermeulen, (1979): "Onderzoek naar de regenwaterkwaliteit, ook van belang voor de drinkwatervoorziening".
H₂O (12), p. 125-128.

Stuyfzand, P.J. (1983): "Belangrijke foutenbronnen bij bemonstering van grondwater via peil- en mini-filters".
H₂O (16), p. 87-95.

Stuyfzand, P.J. (1984): "Groundwater quality evolution in the upper aquifer of the coastal dune area of the Western Netherlands".

In: Hydrochemical balances of fresh water systems, IAHS Publ. nr. 150; p. 87-98.

Stuyfzand, P.J. (1985): "Kwaliteitsveranderingen van oppervlaktewater bij kunstmatige infiltratie in de Nederlandse Kustduinen: Macroparameters".

KIWA-meded. nr. 82 in voorbereiding.

Stuyfzand, P.J. (in prep.): "Hydrochemistry of the coastal dune area of the Western Netherlands".

Proefschrift Vrije Univ. A'dam, Instit. v. Aardwetenschappen, in voorbereiding.

Vermeulen, A.J. (1977): "Immissie-onderzoek met behulp van regenvangers; opzet, ervaringen en resultaten".

Rapport Prov. Waterstaat Noord-Holland, Dienst Milieuhygiëne, 109 p..

Waterleidingbesluit (1984): "Besluit van 2 april 1984, houdende wijziging van het Waterleidingbesluit (Stb 1960, 345)" Staatsblad van het Koninkrijk der Nederlanden 1984 (220), 36 p.

WMZ (1984): "Invloeden van de infiltratie van Haringvlietwater op het duingebied Schouwen." Rapport van de N.V. Waterleidingmaatschappij Zuid-West-Nederland, in voorbereiding.

Wolzogen Kühr, C.A.H. von (1926): "Het mangaan in het Amsterdamsche Duinwaterleidingbedrijf".

Water en Gas (10), p. 21-25, 31-34 en 39-43.

4 ORGANISCHE MICROVERONTREINIGINGEN

4.1 Inleiding

Sinds ruim 10 jaar is er een snelle ontwikkeling waar te nemen in analytisch-chemische methoden voor organische microverontreinigingen in water. Een en ander heeft ertoe geleid, dat voor diverse zuiveringsprocessen meer inzicht is ontstaan in het gedrag van deze groep verbindingen. Ten aanzien van de processtap duininfiltratie is dit echter nog maar nauwelijks het geval, wat gedeeltelijk veroorzaakt wordt door het ontbreken van een integraal overzicht van de ervaringen. Het doel van dit hoofdstuk is dan ook om de beschikbare gegevens overzichtelijk te presenteren en daar waar mogelijk conclusies te trekken c.q. een verklarende hypothese te verschaffen.

De gegevens zijn afkomstig van de WMZ (Ouddorp), DWL, het PWN (Wijk aan Zee) en GW. Achtereenvolgens wordt ingegaan op de experimentele opzet (par. 4.2), resultaten van wateranalyses (par. 4.3), een interpretatie van het in par. 4.3 gepresenteerde cijfermateriaal (par. 4.4), een vergelijking van de effecten van duininfiltratie met die van vóór- en nazuivering (par. 4.5), conclusies (par. 4.6), aanbevelingen (par. 4.7) en literatuur (par. 4.8).

4.2 Experimentele opzet

4.2.1 Frequentie en locatie van bemonstering

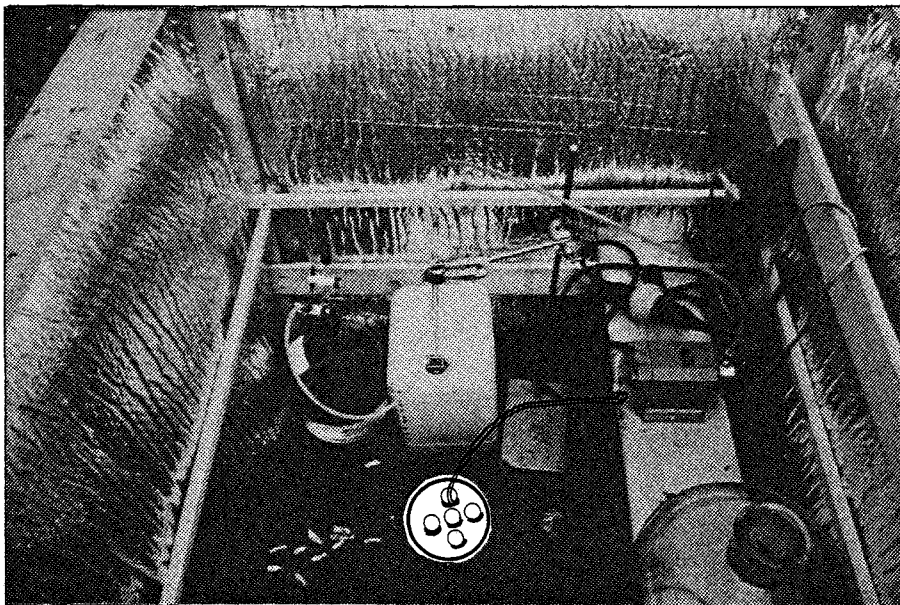
Deze paragraaf beperkt zich tot informatie over de bemonstering van water, die de bemonstering van grond (zie par. 4.4.4.2 en 4.4.6.3) qua omvang veruit overtreft.

Een overzicht van bemonsteringspunten wordt gegeven in tabel 4.1. Een belangrijk deel van het onderzoek is opgezet volgens de "black box" benadering, dat wil zeggen dat alleen aangevoerd (vóór duininfiltratie) en gewonnen (na duininfiltratie) water zijn onderzocht. In Ouddorp is van de aangevoerde kwaliteit alleen de Haringvlietcomponent onderzocht. Als gevolg van het tijdrovende en gecompliceerde karakter van de toegepaste analytisch-chemische procedures zijn de frequenties veelal laag.

Het beperkte aantal waarnemingen heeft tot gevolg, dat een statistische behandeling weinig of geen resultaten oplevert. Dat wil zeggen dat de gevoeligheid, waarmee een bepaald verschijnsel met een bepaalde zekerheid kan worden waargenomen, zodanig afneemt dat een visuele beoordeling minstens even goede resultaten oplevert.

Dit leidt ertoe, dat alleen relatief grote en/of langdurige effecten zichtbaar worden. Een systematische concentratieverlaging zal bijvoorbeeld met grotere waarschijnlijkheid worden opgemerkt dan tijdelijke doorslag bijvoorbeeld als gevolg van variaties in de aanvoerconcentraties.

Het "black box" onderzoek geeft in het algemeen weinig tot geen mogelijkheden om in te gaan op de bijdragen, die verschillende processen zoals atmosferische depositie, verdamping, bodempassage (filtratie, adsorptie, omzetting) en verdunning op de geconstateerde concentratieveranderingen hebben. In een aantal gevallen is de opzet van het onderzoek zodanig, dat deze mogelijkheden er wel zijn. In de meeste gevallen zijn ten behoeve van het onderzoek "steekmonsters" genomen. Bij het bodempassage-onderzoek van GW is gebruik gemaakt van een continue bemonstering, waarvan fig. 4.1 een impressie geeft (lit. 16).



Figuur 4.1 - Bemonstering van water tijdens bodem-passage in het infiltratiegebied bij Zandvoort in 1981

4.2.2 Monstervoorbewerking

Bij de analyse van organische stoffen in water geldt praktisch steeds, dat een monstervoorbewerking moet worden toegepast ten einde de te bepalen stoffen te concentreren en/of te scheiden van storende componenten. Een overzicht van de verschillende gehanteerde methoden wordt gegeven in tabel 4.2.

Het is goed om te bedenken, dat de aard van de monstervoorbewerking een zekere "discriminatie" ten aanzien van de in het monster aanwezige organische microverontreinigingen kan betekenen (lit. 5).

Dit kan toegelicht worden aan de hand van de frequent toegepaste petroleumether- c.q. pentaanextractieprocedure. Door deze procedures worden voornamelijk apolaire en matig-polaire stoffen geïso-

monsterpunt	Zandvoort (GW)	Scheveningen (DWL)	Ouddorp (WMZ)	Wijk aan Zee (PWN)
OPPERVLAKTEWATER	Lek	Maas	Haringvliet	
VOORZUIVERING				
VOÓR INFILTRATIE	Verdeelvijver Geul 12	Aanvoer Inf. Pan 13		Aanvoer Inf. pand 9 (m ₂)
- infilt. pand	337-6 (7 d)	pp 351 (5 d)		m ₄ (8 d)
- tijdens bodem-passage	337-5 (21 d)	pp 195 (21 d)		m ₆ (24 d)
	336-6 (21 d)	pp 191 (49 d)		In 1979 twee punten met respectievelijk 8 d en 56 d verblijftijd (m-code ontbreekt)
	336-4 (70 d)			
	335-6 (49 d)			
DUIVINFILTRATIE				
NA INFILTRATIE (VOÓR NAZUIVER)	Oranjekom	Hoofdader (voór kooldosering)	Ouddorp ruw	
NAZUIVERING				
REIN WATER	Leiduin rein	DW (drinkwater)		

Tabel 4.1 - Overzicht van bemonsteringspunten ten behoeve van onderzoek naar organische microverontreinigingen bij GW, DWL, WMZ en het PWN

leerd. Een aantal van deze verbindingen, die in het algemeen in belangrijke mate aan eventueel aanwezig slib zijn gebonden, wordt daarvan bovendien slechts in beperkte mate geëxtraheerd (lit. 40). Organische microverontreinigingen met een overwegend polair karakter kunnen slechts in zeer geringe mate of helemaal niet (afhankelijk van de polariteit) geïsoleerd worden. Het gevolg is, dat slechts een deel van de organische microverontreinigingen "zichtbaar" gemaakt kan worden, zowel in kwalitatieve als in kwantitatieve zin.

4.2.3 Meting

De toegepaste analyseprocedures (zie tabel 4.2) brengen een nieuwe beperking aan in de verbindingen, die geïdentificeerd kunnen worden. Aangezien de massaspectrometrische identificatie gekoppeld is aan een gaschromatografische voorscheiding, worden

Tabel 4.2 - Kenmerken van analysemethoden voor hier gerapporteerde organische verbindingen en drinkwaternormen (lit. 97).

Organische stof groep	Isolatie en voorbewerking	Detectie (incl. evt. analytische scheiding)	Onderste analysegrens ($\mu\text{g l}^{-1}$)	Literatuur	Drinkwaternormen MTC ($\mu\text{g l}^{-1}$)
<u>IN WATER</u>					
Zuren	Petroleum-ether extractie gedurende 16 h	Gaschromatografie gecombineerd met massaspectrometrie ⁵ (GC-MS)	0,01	6,7	
Terpenoïden	Groepenscheiding m.b.v. kolomchromatografie ⁵ c.q. adsorptie op XAD-4-8 (1 : 1) elutie met diethylether ⁷	Idem	0,01		
Aldehyden/ketonen	Idem	Idem	0,01		
Alcoholen ⁵	Idem	Idem	0,01		
Esters ⁵	Idem	Idem	0,01		
Fenolen ⁵	Idem	Idem	0,01		0,5
Ethers ⁵	Idem	Idem	0,01		
Aromaten ⁵	Idem	Idem	0,01		
Basen ⁵	Idem	Idem	0,01		
Extraheerbaar ⁵ organohalogeen (EOH)	Petroleumetherextractie, indampen en verbranding tot halogenide	Microcoulometer,	0,1-1 ¹⁰	8	
Trihalomethanen (THM)	Pentaanextractie ¹	Gaschromatografie ⁴ elektroneninvangdetectie (ECD)	0,1	9, 10, 11	
Cholinesteraseremmers		Enzymremming ⁶	0,1-0,04	12, 13	0,5
Actieve kool adsorbeerbaar organohalogeen (AOH)	Isolatie m.b.v. actieve koolpoeder (pH2), verbranding tot halogenide XAD 4-8 (1 : 1) Elutie met diethylether. uitvriezen, verbranding ⁵ tot NH ₃ resp. PH ₃	Colorimetrie Microcoulometer	1 ³	14, 15	
XAD-hars adsorbeerbaar organostikstof, fosfor (XON, XOP)		Onderscheid Cl en Br m.b.v. ionenchromatografie ² XON m.b.v. microcoulometrie ⁵ XOP m.b.v. vlamfotometrie ⁵	0,1	16	
Olie	Extractie met tetrachloorkoolstof	Infraroodspectrofotometrie	10	17	10
Anionische detergenten	Extractie met trichloormethaan	Spectrofotometrie v.h. adsorptiecomplex met methyleenblauw	10 ⁹	18	200
Organochloorpest.	Extractie petroleumether	Gaschromatografie (ECD)	0,01	61	0,5
PCA (Borneff) ¹¹	Extractie dichloormethaan	Vloeistofchromatografie	0,01	89,92	0,2
<u>GROND, SLIB</u>					
Diverse verbindingen	Soxleth extractie met aceton/hexaan (1 : 1) na droging met Na ₂ SO ₄ en H ₂ O	Zie diverse stofgroepen	chloroaromaten: 0,2-0,05 $\mu\text{g kg}^{-1}$ pca's: 0,001-0,01 $\mu\text{g kg}^{-1}$	19	

¹ = Bij Gemeentewaterleidingen "headspace" methode; ² = Gemeentewaterleidingen; DWL Den Haag via bepaling van Br met behulp van methode volgens Fishman en Skougstad (lit. 20); ³ = in geval van ionenchromatografie $5 \mu\text{g l}^{-1}$ (Cl $\mu\text{g l}^{-1}$; Br $\mu\text{g l}^{-1}$); ⁴ = in geval van "head space" methode gepakte kolom; ⁵ = uitvoering door KIWA; ⁶ = met ingang van 1 januari 1977 leverhomogenaat in plaats van bijenkoppen-homogenaat. Detectie met behulp van autoanalyzersysteem in plaats van dunne laagchromatografieplaat; ⁷ = alleen ten behoeve van bodempassageonderzoek van GW (april-juni 1981). Uitvoering door RID; ⁸ = afhankelijk van het gehalte; ⁹ = als laurylsulfaat; ¹⁰ = tot en met 1976, daarna verlaagd; ¹¹ = met ingang van 1980 volgens lit. 92.

alleen de laagmoleculaire organische verbindingen (molecuulgewicht < 300) "zichtbaar". Bovendien moeten deze stoffen een redelijke thermische stabiliteit hebben.

In de genoemde beperkingen wordt tegemoetgekomen doordat een aantal bepalingen van groepsparameters is uitgevoerd, zoals extraheerbaar organohaloeen (EOH), actieve kool adsorbeerbaar organohaloeen (AOH), -chloor (AOCl) en -broom (AOBr), XAD adsorbeerbaar organofosfor en -stikstof (XOP, XON) en cholinesteraseremmers.

Met behulp van deze parameters wordt weliswaar een nieuw selectie criterium ingevoerd als haloeen, fosfor, stikstof of cholinesteraseremmer, maar er tegenover staat dat in principe hoogmoleculaire, thermisch instabiele, en afhankelijk van de omstandigheden ook polaire stoffen "meedoen".

Samenvattend kan worden vastgesteld, dat een groot aantal individuele stoffen (op gewichtsbasis circa 99 %) door de beperkingen van de gevolgde analytisch-chemische procedures onzichtbaar blijft. De groepsparameters voorzien gedeeltelijk in deze leemte voor bepaalde categorieën van stoffen zoals organohalogenen (AOH, EOH, AOCl, AOBr), organofosforverbindingen (XOP), organostikstofverbindingen (XON) en cholinesteraseremmers.

Een overzicht van de bepaalde organische microverontreinigingen en groepsparameters, alsmede de bijbehorende verschillende bepalingsmethoden met hun reproduceerbaarheden en onderste analysegrenzen, alsmede drinkwaternormen (lit. 97) vindt men in tabel 4.2.

4.2.4 Gegevensverwerking

Ten behoeve van de vergelijkbaarheid van de water-

kwaliteit vóór en na duininfiltratie is overal een verblijftijdscorrectie aangebracht. Deze bedraagt voor de infiltratiegebieden Wijk aan Zee, Zandvoort, Scheveningen en Ouddorp respectievelijk 2, 3, 2 en 3 maanden.

Indien in de tekst het begrip significant wordt gehanteerd, dan is dit steeds gebaseerd op de uitslag van een rangtekentoets met een 95 % betrouwbaarheidsinterval (lit. 21).

In een aantal gevallen wordt het begrip concentratieverlagingspercentage gehanteerd.

Concentratieverlagingspercentage

In het algemeen geldt, dat de procentuele concentratieverlaging (% Δ) in een systeem (s) met invoergehalte x_s en uitvoergehalte y_s berekend wordt volgens

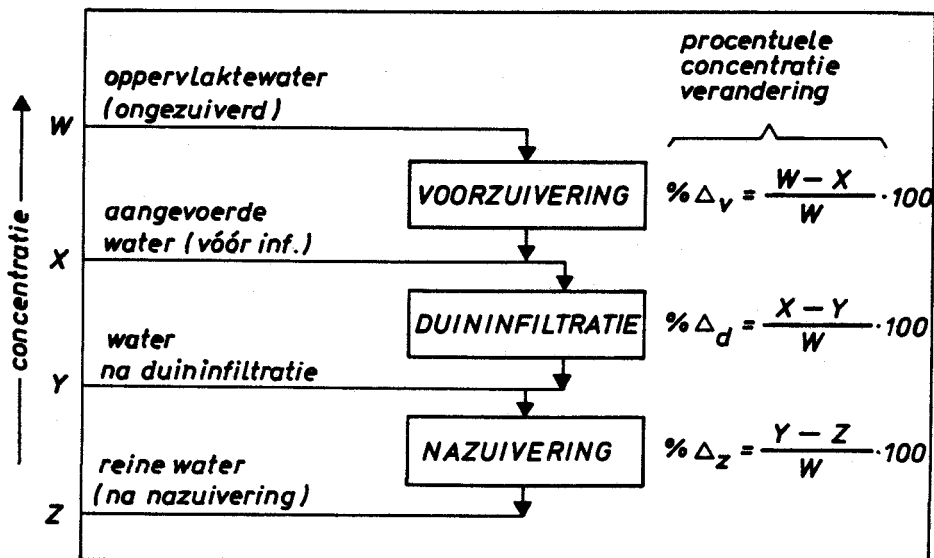
$$\% \Delta_s = \frac{x_s - y_s}{x_s} \cdot 100$$

Wordt binnen het systeem (s) een aantal in serie geschakelde deelsystemen (1,2,3..n) met elkaar vergeleken, dan bedraagt de concentratieverlaging van deelsysteem n

$$\% \Delta_n = \frac{x_n - y_n}{x_s} \cdot 100; \text{ waarin } y_n = x_{n+1}$$

Fig. 4.2 geeft een uitwerking hiervan in geval het complete zuiveringssysteem, bestaande uit voorzuivering, duininfiltratie en nazuivering, beschouwd wordt.

In een aantal gevallen, waarin onderzoek heeft plaatsgevonden tijdens bodempassage, zijn thans alleen verwijderingspercentages en niet de werkelijke gehalten bekend. Soms ook zijn de bepaalde verbindingen niet op gewichtsbasis gekwantificeerd. Ter wille van de uniformiteit is voor de presentatie van deze gegevens gebruik gemaakt van normalisatie, dat wil zeggen de concentratie in het aangevoerde water wordt op 100 gesteld en de overige weergegeven waarden zijn hier (per verbinding) aan gerelateerd. In een aantal gevallen wordt het redoxniveau van het (sub)systeem vermeld: onder "aerob" wordt verstaan overwegend onvolledige nitraatreductie en onder "anaerob" overwegend volledige nitraat- en eventueel sulfaatreductie.



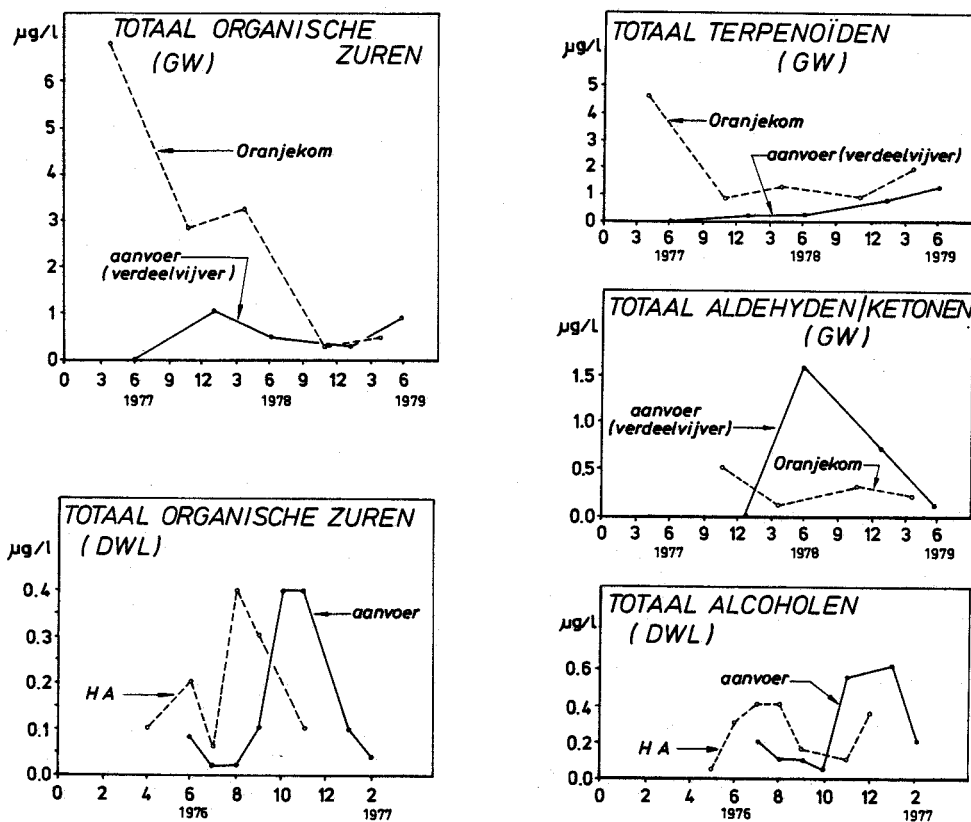
Figuur 4.2 - Toelichting op enige gehanteerde begrippen

4.3 Resultaten wateranalyses

De in deze paragraaf verzamelde gegevens zijn gedeeltelijk reeds elders gepubliceerd (zie lit. 22 tot en met 36).

4.3.1 Organische zuren

Gegevens betreffende deze parameter zijn opgenomen in fig. 4.3.



Figuur 4.3 - Verloop in gehalte aan organische zuren, totaal terpenoïden, totaal aldehyden/ketonen en totaal alcoholen vóór en na duininfiltratie bij GW en de DWL. HA = hoofdader

De gegevens van GW tonen bij de eerste drie bemonsteringen hogere gehalten na duininfiltratie dan

ervoor (fig. 4.3). Bij de infiltratie te Scheveningen zijn de concentratieniveau's na infiltratie niet significant afwijkend van de niveau's vóór infiltratie. Dit is ook het geval bij de laatste twee bemonsteringen door GW. Gegevens van duininfiltratie te Ouddorp tonen een uitermate sterk wisselend beeld (zie tabel 4.3).

	Vóór infiltratie (Haringvliet)	Na infiltratie (Ouddorp ruw)
10-1976	n.a.*	0,03 $\mu\text{g l}^{-1}$
2-1977	0,77 $\mu\text{g l}^{-1}$	0,03 $\mu\text{g l}^{-1}$
2-1978	6,55 $\mu\text{g l}^{-1}$	6,65 $\mu\text{g l}^{-1}$

Tabel 4.3 - Overzicht van organische zuren vóór en na duininfiltratie te Ouddorp; *n.a. = niet aanwezig

4.3.2 Terpenoïden

Gegevens van deze groep vindt men in fig. 4.3. Er zijn alleen resultaten bekend van GW. Hier komt het beeld volledig overeen met dat van de organische zuren. Het gedrag van het terpenoïde limoneen tijdens bodempassage blijkt uit tabel 4.4. Veen, dat duidelijk aanwezig is in de buurt van bemonsteringspunt 337-5 (zie fig. 2.12; in het zomerseizoen sulfaatreductie) lijkt tot een sterke toename van limoneen te leiden.

4.3.3 Aldehyden en ketonen

Uit fig. 4.3 blijkt, dat met duininfiltratie bij Zandvoort een significante concentratieverlaging wordt bereikt. Dit beeld wordt bevestigd door gegevens in tabel 4.5. Tevens blijkt dat, zoals verwacht mag worden, het gehalte onder aerobe condities sneller daalt dan waar SO_4 -reductie optreedt. De vraag of er doorslag kan optreden, zoals fig.

	geul 12	337-6	336-6	337-5	335-6	336-4*
redoxniveau	aeroob	aeroob	aeroob	SO ₄ -red	aeroob	NO ₃ -red
verblijftijd (d)	-	7	21	21	49	> 70
limoneen (%)	100	70	150	230	90	110

Tabel 4.4 - Verandering van het limoneengehalte tijdens bodempassage in het infiltratiegebied bij Zandvoort als functie van verblijftijd en redoxniveau (april-juni 1981). Het gehalte in de geul is op 100 gesteld; de overige gehalten zijn hieraan gerelateerd. *: zie opmerking als bij tabel 4.7.

4.3 suggereert, kan op basis van deze figuur niet met zekerheid beantwoord worden. Het desbetreffende verschil tussen "vóór-" en "na-" is niet significant. In tabel 4.5 blijkt, dat na 90 % van de gemiddelde verblijftijd (49 dagen) nog 10 % van de ingevoerde hoeveelheid ethylbenzylaldehyde wordt teruggevonden. Overigens is na 3 weken onder aerobe condities de invoerconcentratie reeds circa 85 % gedaald. Een significante concentratieverlaging is eveneens bij de infiltratie te Ouddorp geconstateerd.

	geul 12	337-6	336-6	337-5	335-6	336-4*
redoxniveau	aeroob	aeroob	aeroob	SO ₄ -red	aeroob	NO ₃ -red
verblijftijd d	-	7	21	21	49	> 70
Acetofenon	100	78	5	10	0	16
Ethylbenzylaldehyde	100	50	20	40	10	260
Dimethylbenzaldehyde	100	40	20	40	0	320
Cinnamaldehyde	100	50	10	35	0	250

Tabel 4.5 - Verandering van het gehalte van enkele aldehyden en een keton tijdens bodempassage in het infiltratiegebied van GW als functie van verblijftijd en redoxniveau (april-juni 1981). Het gehalte in de geul is genormaliseerd op 100; de overige gehalten zijn hieraan gerelateerd. * = opmerking als bij tabel 4.7

4.3.4 Alcoholen

Incidentele gegevens van de infiltratie bij Zandvoort tonen aan, dat het gehalte aan alcoholen significant verlaagd wordt (gemiddelde van twee waarnemingen: $0,3 \mu\text{g.l}^{-1}$ vóór en $< 0,1 \mu\text{g.l}^{-1}$ na). Bij metingen tijdens bodempassage komt voor een verbinding als benzylalcohol hetzelfde verschijnsel naar voren (zie tabel 4.6). Vermoedelijk geldt voor de infiltratie te Ouddorp hetzelfde: één waarneming: $0,8 \mu\text{g.l}^{-1}$ vóór; niet aantoonbaar na. In Scheveningen is geen significante verandering aantoonbaar (fig. 4.3).

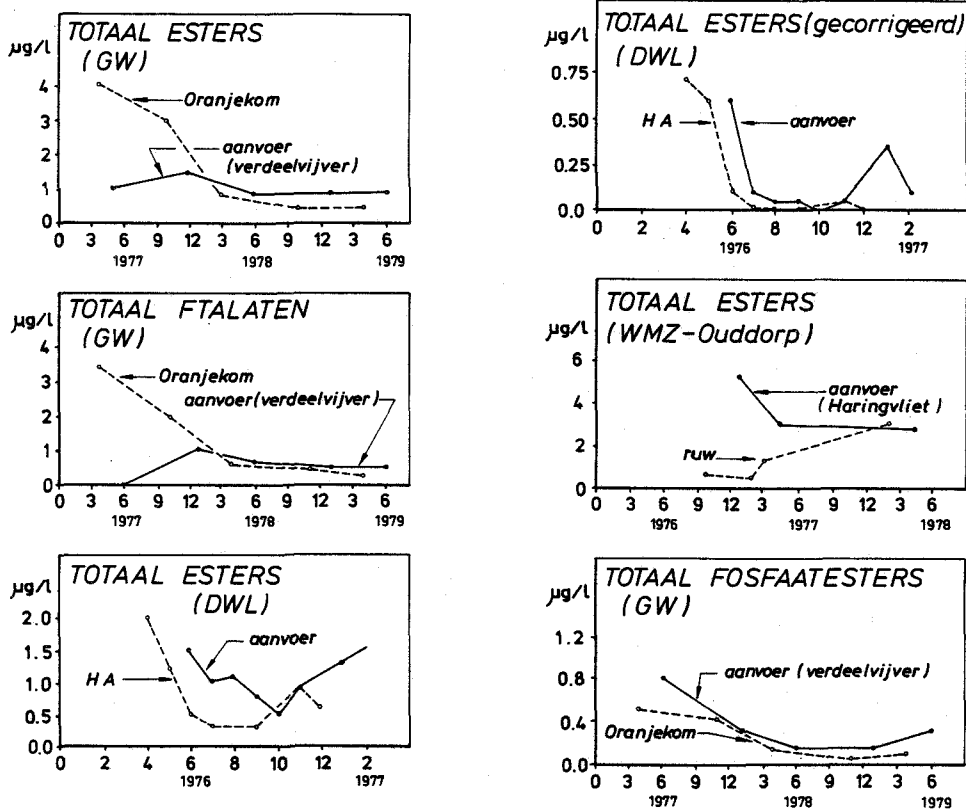
	geul 12	337-6	336-6	337-5	335-6	336-4*
redoxniveau verblijftijd (d)	aeroob -	aeroob 7	aeroob 21	SO ₄ -red 21	aeroob 49	NO ₃ -red > 70
Benzylalcohol	100	0	0	0	0	0

Tabel 4.6 - Verandering van het gehalte aan Benzylalcohol tijdens bodempassage in het infiltratiegebied van GW als functie van verblijftijd en redoxniveau (april-juni 1981). Alle gehalten zijn genormaliseerd op een gehalte in de Geul van 100. * = opmerking als bij tabel 4.7

4.3.5 Esters

In fig. 4.4 zijn gegevens van duininfiltratie bij Zandvoort weergegeven. In de eerste 6-12 maanden is er sprake van een significante toename na duininfiltratie. Over de hele periode is er geen significant verschil. Het leeuwendeel van de estergroep wordt gevormd door de ftalaten. Deze verbindingen worden op grote schaal als weekmaker in kunststoffen gebruikt. Dit betekent, dat voorzichtigheid met de gegevens geboden is. Wanneer bijvoorbeeld blijkt, dat sommige ftalaten consequent in hoge gehalten in alle monsters van een zelfde meetserie

voorkomen, dan is de kans groot, dat er sprake is van een contaminatie. Op grond hiervan is voor de infiltratie te Scheveningen tevens een grafiek gemaakt, waarin di-iso-octylftalaat, dibutylftalaat en di-isobutylftalaat niet zijn opgenomen. Zie hiervoor in fig. 4.4 de "gecorrigeerde" grafiek.



Figuur 4.4 - Verloop in gehalte aan totaalesters bij GW, DWL en WMZ, totaal ftalaten bij GW en totaal fosfaatesters. De DWL-metingen zijn eveneens apart, gecorrigeerd voor mogelijke contaminatie, weergegeven

Fig. 4.4 bevat ook resultaten van de infiltratie te Ouddorp. Hier blijkt een significante concentratieverlaging op te treden, geheel in tegenstelling tot de infiltraties van GW en de DWL. In fig. 4.4 zijn tenslotte gegevens omtrent het gedrag van fosfaatesters bij GW opgenomen. De figuur toont een

significante, zij het geringe concentratieverlaging.

Het gedrag van de estergroep tijdens bodempassage wordt voor een aantal esters geïllustreerd in tabel 4.7. Wat de ftalaten betreft valt op, dat drie van de vier verbindingen een sterke concentratieverlaging van maximaal 84 % tot 100 % vertonen tijdens bodempassage. Diethylftalaat wijkt hier geheel van af. Het is niet uitgesloten, dat het gedrag van diethylftalaat beïnvloed is door contaminatie. Opvallend is echter wel, dat de gehalten tijdens bodempassage nooit lager zijn dan in de geul. Dit kan eventueel ook duiden op de vorming van deze verbinding door afbraak van anderen. Een dergelijk verschijnsel komt zeer duidelijk naar voren bij trimethylthiofosfaat; ook ethylacetaat vertoont mogelijk

	geul 12	337-6	336-6	337-5	335-6	336-4*
redoxniveau verblijftijd (d)	aeroob -	aeroob 7	aeroob 21	SO ₄ -red 21	aeroob 49	NO ₃ -red 70
Ethylacetaat	100	150	100	180	40	110
Trimethylthiofosfaat	0	0	0	100	0	12200
Triethylfosfaat	100	3	3	0	0	0
2-methylfenylacetaat	100	0	0	0	0	0
Diethylftalaat	100	400	130	330	100	150
Tri(2-chloorethyl)- fosfaat	100	200	100	140	100	65
Di(n-butyl)ftalaat	100	85	40	35	16	25
Di(iso?)butylftalaat	100	7	2	10	7	10
Diocetylftalaat	100	4	2	0	0	4

Tabel 4.7 - Verandering van het gehalte van esters tijdens bodempassage in het infiltratiegebied bij Zandvoort als functie van verblijftijd en redoxniveau (april-juni 1981) Alle gehalten zijn genormaliseerd op een gehalte in de geul van 100

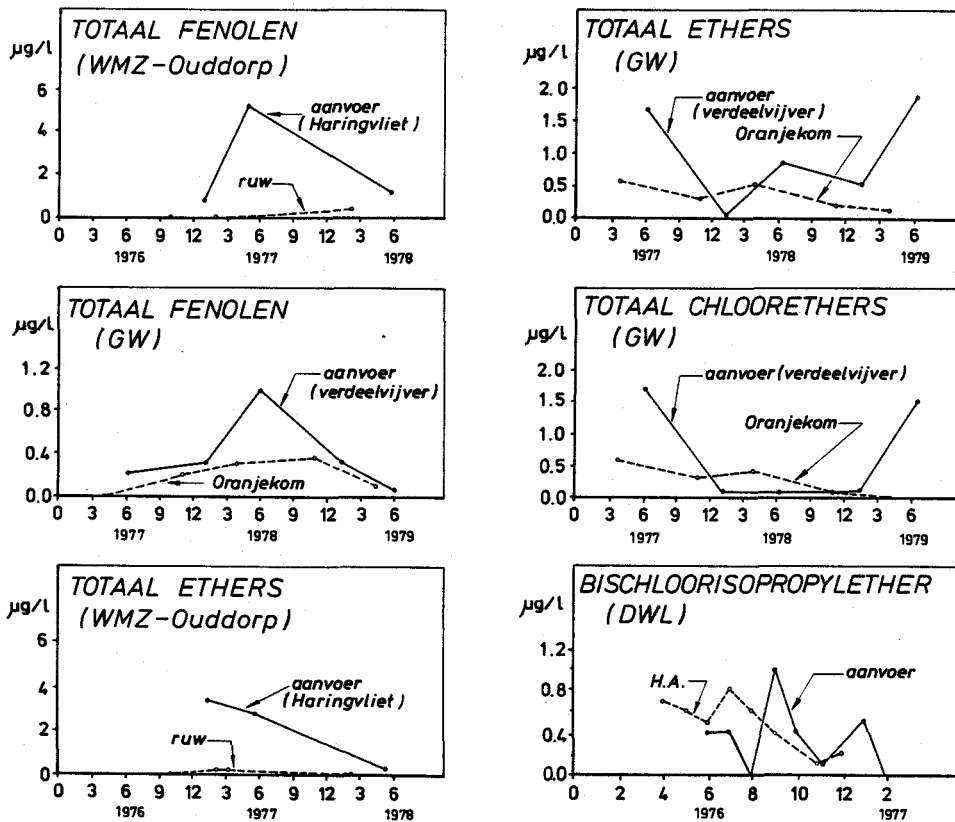
* Ter illustratie is tevens punt 336-4 in de tabel opgenomen; de gegevens kunnen door het ontbreken van nauwkeurige gegevens over de verblijftijd niet zonder meer vergeleken worden met de overige punten.

dit gedrag (zie par. 4.4.6.4.2 en 4.4.6.4.3). Een sterke concentratieverlaging treedt verder op bij triethylfosfaat en 2-methylfenylacetaat. Tri(2-chloorethyl)fosfaat vertoont doorslag.

Het blijkt dus, dat het totale beeld van de ester-groep in het algemeen en van de ftalaten en fosfaaten in het bijzonder zal afhangen van de identiteit van de afzonderlijke componenten.

4.3.6 Fenolen

Zowel te Ouddorp als te Zandvoort vindt een significante verlaging van de concentratie aan fenolen plaats (zie fig. 4.5).



Figuur 4.5 - Verloop in gehalte aan totaal fenolen, totaal ethers, totaal chloorethers en bischloorisopropylether vóór en na duininfiltratie bij GW en/of de WMZ of DWL

4.3.7 Ethers

De infiltratie te Ouddorp leidt tot een significante verlaging (zie fig. 4.5). Praktisch dezelfde situatie doet zich voor bij GW. Een schatting aan de hand van gegevens van de WMZ-Ouddorp levert een concentratieverlaging van circa 90 % op.

Bij GW bedraagt de verlaging gemiddeld 70 %, terwijl hier de concentratieniveau's na infiltratie hoger zijn dan te Ouddorp (bij GW circa $0,3 \mu\text{g l}^{-1}$ versus Ouddorp circa $0,1 \mu\text{g l}^{-1}$).

Het grootste deel van de hier besproken groep wordt gevormd door gechloreerde ethers (bis(chloorisopropyl)ether en verwante verbindingen); verder zijn in het door GW aangevoerde water ook gebromeerde ethers aangetoond. Deze laatste groep wordt vermoedelijk goed verwijderd (circa $0,3 \mu\text{g l}^{-1}$ vóór; $< 0,01 \mu\text{g l}^{-1}$ na). Figuur 4.5 toont tevens gegevens van gechloreerde ethers afkomstig van GW en de DWL.

Te Scheveningen zijn de concentraties van bis(chloorisopropyl)ether steeds $< 1 \mu\text{g l}^{-1}$. De gemid-

	geul 12	337-6	336-6	337-5	335-6
redoxniveau	aeroob	aeroob	aeroob	SO ₄ -red	aeroob
verblijftijd (d)	-	7	21	21	49
Bis(2-chloorpropyl)- ether	100	0	0	15	0
Bis(dichloor-n-propyl)- ether	100	70	15	110	30
Dichloor-n-propyl-di- chloorisopropylether	100	0	0	0	0
Bis(dichloor-isopro- pyl)ether	100	25	10	55	30

Tabel 4.8 - Verandering van het gehalte aan gechloreerde ethers tijdens bodempassage in het infiltratiegebied van GW als functie van verblijftijd en redoxniveau (april-juni 1981). Alle gehalten zijn genormaliseerd op een gehalte in de geul van 100.

delde concentratieafname bedraagt hier circa 20 %. Bij GW bedraagt de concentratieverlaging circa 60 %.

Tabel 4.8 verschaft gegevens over het gedrag van een aantal gechloreerde ethers tijdens bodempassage in het infiltratiegebied van GW. Uit deze tabel komen twee verschijnselen naar voren:

1) De gerealiseerde concentratieverlaging hangt van het type ether af. Voor de ene kan een verlaging van 100 % al na één week onder aerobe condities gerealiseerd zijn, terwijl de andere na zeven weken nog duidelijk aantoonbaar kan zijn.

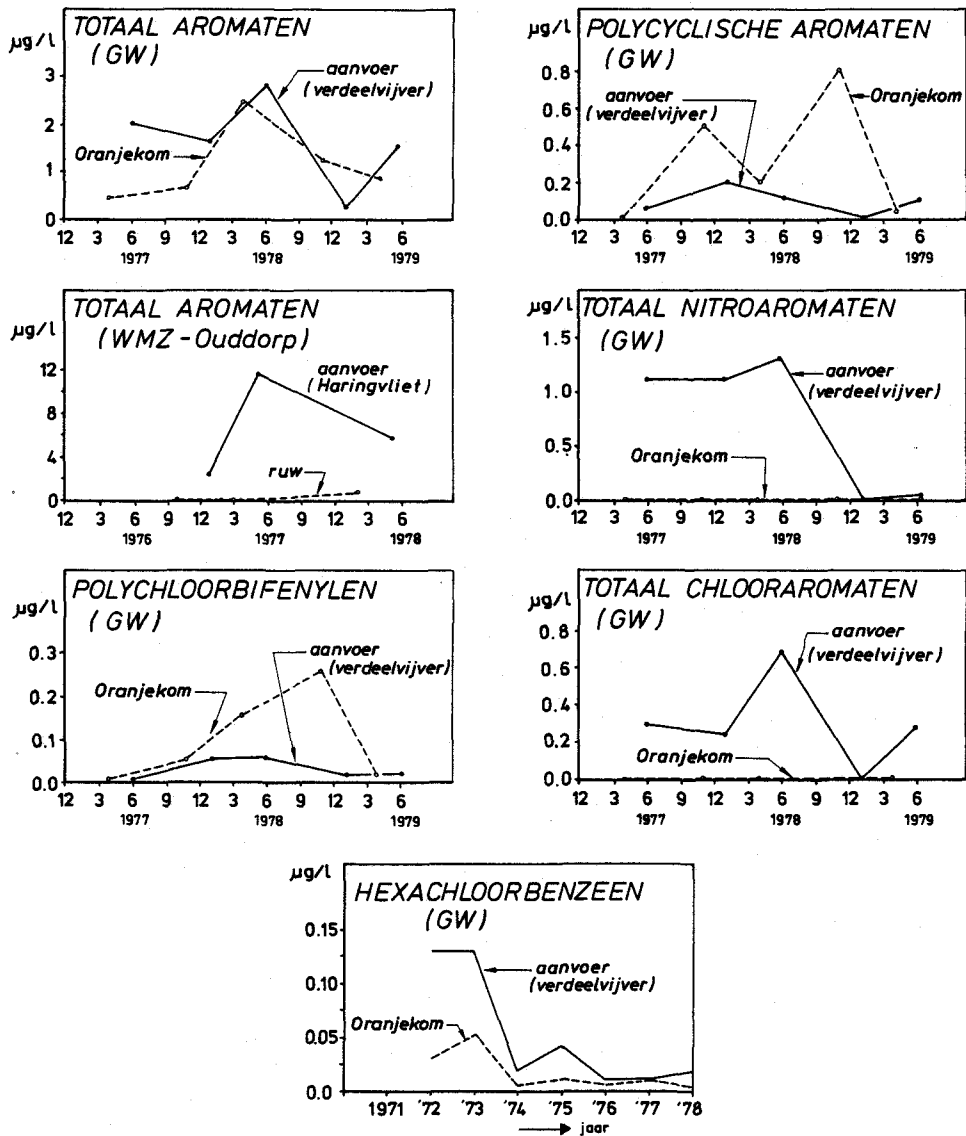
2) Onder sulfaatreducerende condities verloopt de concentratieverlaging van drie van de vier verbindingen minder goed dan bij dezelfde verblijftijd onder aerobe condities.

Op grond hiervan kan men verwachten, dat het totale beeld van de concentratieverlaging van gechloreerde ethers bepaald zal worden door de identiteit van de aanwezige gechloreerde ethers alsmede het overwegende redoxniveau.

4.3.8 Aromaten

Gegevens van respectievelijk GW en de WMZ-Ouddorp zijn weergegeven in figuur 4.6. De infiltratie te Ouddorp vertoont een zeer sterke concentratiedaling in het gehalte aan totaal-aromaten, namelijk > 95 %. Bij GW lijkt de gemiddelde concentratieverandering hiervan nihil. Een significant verschil kan niet worden aangetoond. Een verdere uitwerking van de gegevens van GW geeft enige aanknopingspunten. In fig. 4.6 is tevens het verloop van de som van polychloorbifenylen (PCB), polycyclische aromaten (PCA), nitrogesubstitueerde aromaten en chloorge-substitueerde aromaten afgebeeld.

Bij de groepen PCB's en PCA's constateert men een significante toename na duininfiltratie (zie voorts par. 4.4.4). De nitro- en chloorgesubstitueerde aromaten geven daarentegen een concentratieverlaging van 95 % te zien. Bij hexachloorbenzeen (HCB) is er sprake van een concentratieverlaging na duininfiltratie van circa 60 % (zie fig. 4.6).



Figuur 4.6 - Verloop in gehalten aan totaal aromaten, polychloorbifenylen, polycyclische aromaten, totaal nitroaromaten, totaal chlooraromaten en hexachloorbenzeen vóór en na duininfiltratie bij GW (totaal aromaten tevens te Ouddorp)

Een verdere toelichting op het gedrag van de aromaten kan verkregen worden met de volgende tabel 4.9, welke enige gegevens over het gedrag van een aantal aromaten tijdens bodempassage bij Zandvoort geeft.

	geul 12	337-6	336-6	337-5	335-6	336-4*
redoxniveau	aeroob	aeroob	aeroob	SO ₄ -red	aeroob	NO ₃ -red
verblijftijd (d)	-	7	21	21	49	>70
Benzeen	100	1	14	28	7	14
Ethylbenzeen	100	60	65	95	2	65
p/m-xyleen	100	20	55	100	25	90
o-xyleen	100	45	75	110	70	75
Chloorbenzeensulfonylchloride	100	0	0	0	0	0
Trichloorbenzeen	0	0	0	0	0	100
Chloor-nitro-benzeen	100	0	0	0	15	0
Tolueen	100	12	13	18	7	13
Fenantreen/antraceen	100	250	110	200	40	125
Fluorantheen	100	0	-	-	-	-

Tabel 4.9 - Verandering van het gehalte van enige aromaten tijdens bodempassage in het infiltratiegebied van GW als functie van de verblijftijd en redoxniveau (april-juni 1981). Alle gehalten zijn genormaliseerd op een gehalte in de geul van 100. * = opmerking als in tabel 4.7

Uit deze tabel komen de volgende punten naar voren:

1) Het gehalte aan benzeen en tolueen daalt zeer snel tot 10 % of minder van de invoerconcentratie. Nemen de koolwaterstofsubstituties in het molecuul toe, zoals het geval is bij ethylbenzeen, o, m en p-xyleen, dan verloopt de concentratiedaling soms in mindere mate (o-xyleen) dan wel minder snel (ethylbenzeen). Onder sulfaatreducerende omstandigheden treedt praktisch geen concentratiedaling van deze stoffen op.

2) De daling in het gehalte van chloornitrobenzeen bedraagt 85-100 %. Het redoxniveau is hierop kennelijk niet van invloed.

3) Fenanthreen/antraceen (een precieze identificatie was niet mogelijk) vertoont mogelijk doorslaggedrag. Na 7 weken verblijftijd blijft de concentratiedaling beperkt tot circa 60 %.

4) Fluorantheen wordt na één week verblijftijd niet meer aangetroffen. Metingen bij langere verblijftijden zijn niet uitgevoerd. Incidentele metingen op punten bij grotere verblijftijden hebben echter nooit enige aanwijzing voor de aanwezigheid van deze verbindingen opgeleverd.

5) Trichloorbenzeen wordt aangetroffen in het pakket bij een verblijftijd > 10 weken, terwijl de verbinding afwezig is in de geul. Hetzelfde is vastgesteld op punt 335-6, waar gemiddeld 0,004 $\mu\text{g l}^{-1}$ tetra, 0,003 $\mu\text{g l}^{-1}$ penta- en 0,001 $\mu\text{g l}^{-1}$ hexachloorbenzeen werd gevonden.

Het bodempassage-effect te Scheveningen Haag wordt geïllustreerd in tabel 4.10 voor enkele chlooraromaten. Uit deze tabel blijkt, dat de concentratieverlaging bij de DWL voor HCB van dezelfde orde van grootte is als bij GW.

Verbinding	Bovenwater	Bodempassage	
		1 m	69 m
<u>Pan 8.1</u>			
HCB	86	54	32
α -HCH	88	29	35
γ -HCH	103	45	53
<u>Pan 8.2</u>			
HCB	63	39	24
α -HCH	79	51	54
γ -HCH	103	81	78

Tabel 4.10 - Gehalten van chlooraromaten in het bovenwater en na 1 en 69 meter bodempassage bij de DWL in 1973. De gehalten zijn genormaliseerd op een gehalte in de aanvoer van 100

4.3.9 Organische basen

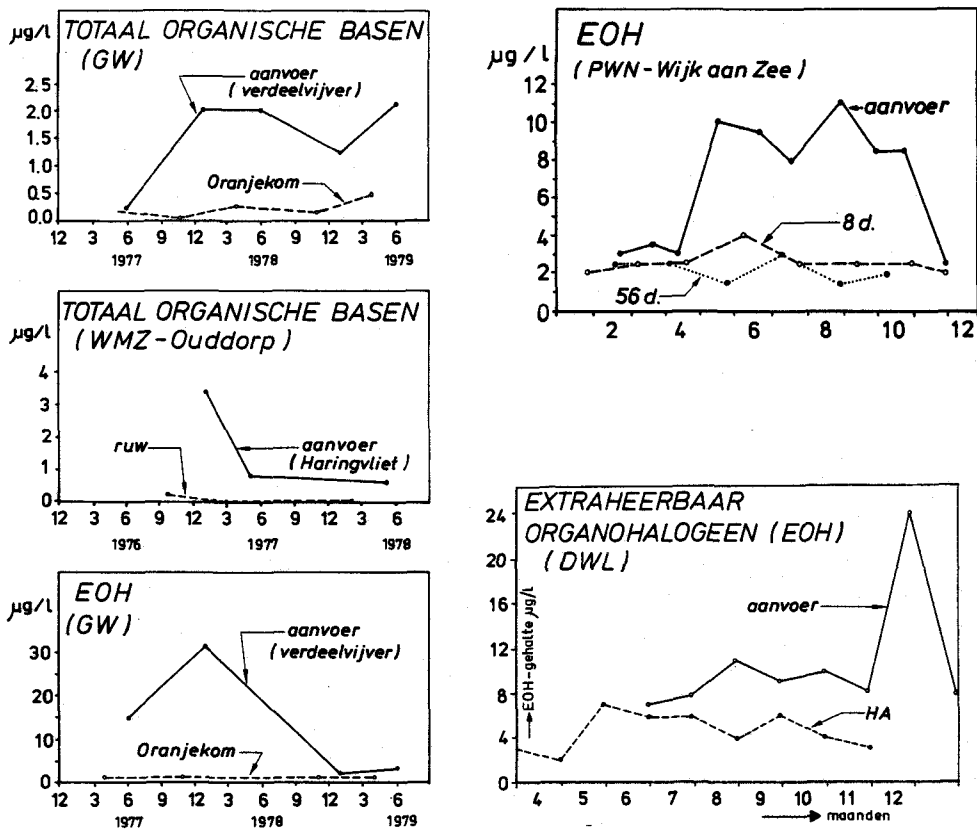
De infiltratiesystemen te Ouddorp en Zandvoort tonen een zeer significante concentratieverlaging van organische basen (zie fig. 4.7). Het gaat veelal om aminogesubstitueerde aromaten, al of niet in combinatie met chloorsubstituenten; daarnaast komen verbindingen met heterocyclisch stikstof voor.

Verdere gegevens omtrent het gedrag van een aantal specifieke organische basen kunnen ontleend worden aan tabel 4.11. Uit deze tabel blijkt, dat oor-

	geul 12	337-6	336-6	337-5	335-6
redoxniveau verblijftijd (d)	aerob -	aerob 7	aerob 7	SO ₄ -red 21	aerob 49
N-methylamine (C-methyl)	0	0	0	100	0
chlooraniline	0	100	60	120	55
N-ferylaniline	100	60	30	50	0
1,2,3,4 tetrahydro-2,4- dioxo-3(chloorpropyl)qui- nazoline	100	125	70	85	55

Tabel 4.11 - Concentratieveranderingen van enige organische basen tijdens bodempassage in het infiltratiegebied van GW als functie van verblijftijd en redoxniveau (april-juni 1981). Alle gehalten zijn genormaliseerd op een gehalte van 100 in de geul, uitgezonderd N-methylamine en chlooraniline, welke genormaliseerd zijn op 100 in het eerste punt van voorkomen

spronkelijk in de geul aanwezig aniline volledig afwezig is na 7 weken verblijftijd. Opmerkelijk is het gedrag van N-methylaniline en chlooraniline. Deze stoffen zijn in het aangevoerde water (vóór infiltratie) ten tijde van dit onderzoek (april 1981) niet aangetoond, maar wel tijdens bodempassage. Chlooraniline is na 7 weken oftewel circa 90 % van de gemiddelde verblijftijd nog duidelijk aanwezig. Hetzelfde geldt voor het quinazoline-derivaat.



Figuur 4.7 - Verloop in gehalten aan totaal organische basen en EOH vóór en na duininfiltratie

4.3.10 Extraheerbaar organohalogenen (EOH)

In fig. 4.7 zijn gegevens met betrekking tot de duininfiltratie van GW, de DWL en het PWN weergegeven. Alhoewel in alle gevallen duininfiltratie een concentratieverlaging oplevert, springt die te Scheveningen eruit met een relatief kleine verlaging (55 %). Gegevens in tabel 4.12, waarin de concentratieverlaging van EOH als functie van de verblijftijd is onderzocht ter hoogte van pan 13, stemmen hiermee overeen.

Bij GW en te Wijk aan Zee belopen de verlagingen respectievelijk circa 100 % en 70 %. Uit fig. 4.7 (PWN) blijkt, dat de uiteindelijk bereikbare verla-

Monsterpunt	Verblijftijd (dagen)	EOH ($\mu\text{g Cl l}^{-1}$)	Aantal waarnemingen	Genormaliseerd gehalte
Aanvoer	-	1,6	4	100
Pan 13	2	1,2	4	75
PP. 351	5	1,2	3	75
PP. 195	21	0,5	3	31
PP. 191	49	0,7	3	44

Tabel 4.12 - Concentratieverlaging van EOH bij de DWL als functie van de verblijftijd in 1981

ging van het EOH-gehalte reeds na 1 week verblijftijd voor circa 90 % is gerealiseerd. Incidenteel onderzoek aan de infiltratie bij Zandvoort toonde aan, dat reeds na 50 cm bodempassage (enkele uren verblijftijd) een EOH-verlaging van circa 75 % was bereikt. Uit het te Scheveningen uitgevoerde GC-MS onderzoek blijkt niet, dat organohalogenen (anders dan de vluchtige, die niet in de EOH "meedoen") in dusdanige gehalten na duininfiltratie voorkomen, dat hierdoor de EOH-niveaus na duininfiltratie verklaard kunnen worden.

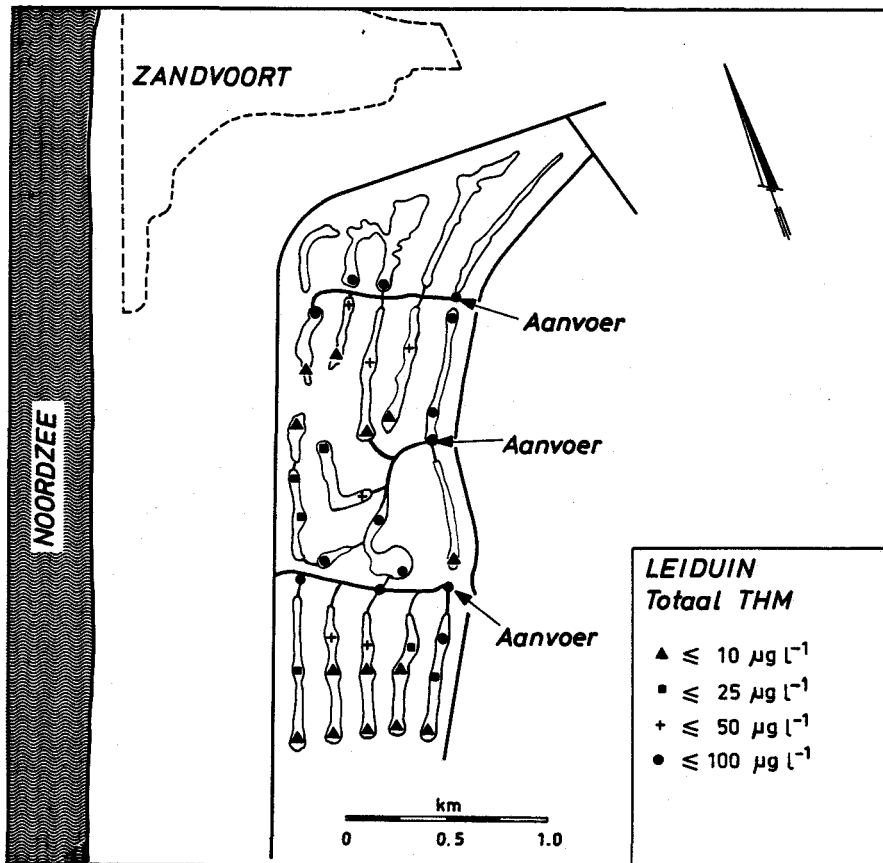
De gegevens in fig. 4.6 (PCB) en 4.7 (EOH) mogen tegenstrijdig lijken, maar zijn dat niet. In fig. 4.6 bedraagt het maximum circa $0,25 \mu\text{g l}^{-1}$, waarvan circa 50 % uit chloor bestaat. De detectiegrens van de EOH-bepaling bedroeg ten tijde van het onderzoek circa $1,0 \mu\text{g l}^{-1}$, waardoor effecten zoals in fig. 4.6 onopgemerkt blijven.

4.3.11 Vluchtige organohalogenen

a) Trihalomethanen (THM):

Als gevolg van een transportchloring, die het te infiltreren water meestal heeft ondergaan, kunnen totaal THM-gehalten (TTHM) voorkomen tot circa $100 \mu\text{g l}^{-1}$. Als gevolg van de vluchtigheid van deze verbindingen en verblijftijdsverschillen in infil-

tratiemiddelen kunnen plaatselijk grote concentratieverschillen ontstaan (zie fig. 4.8).

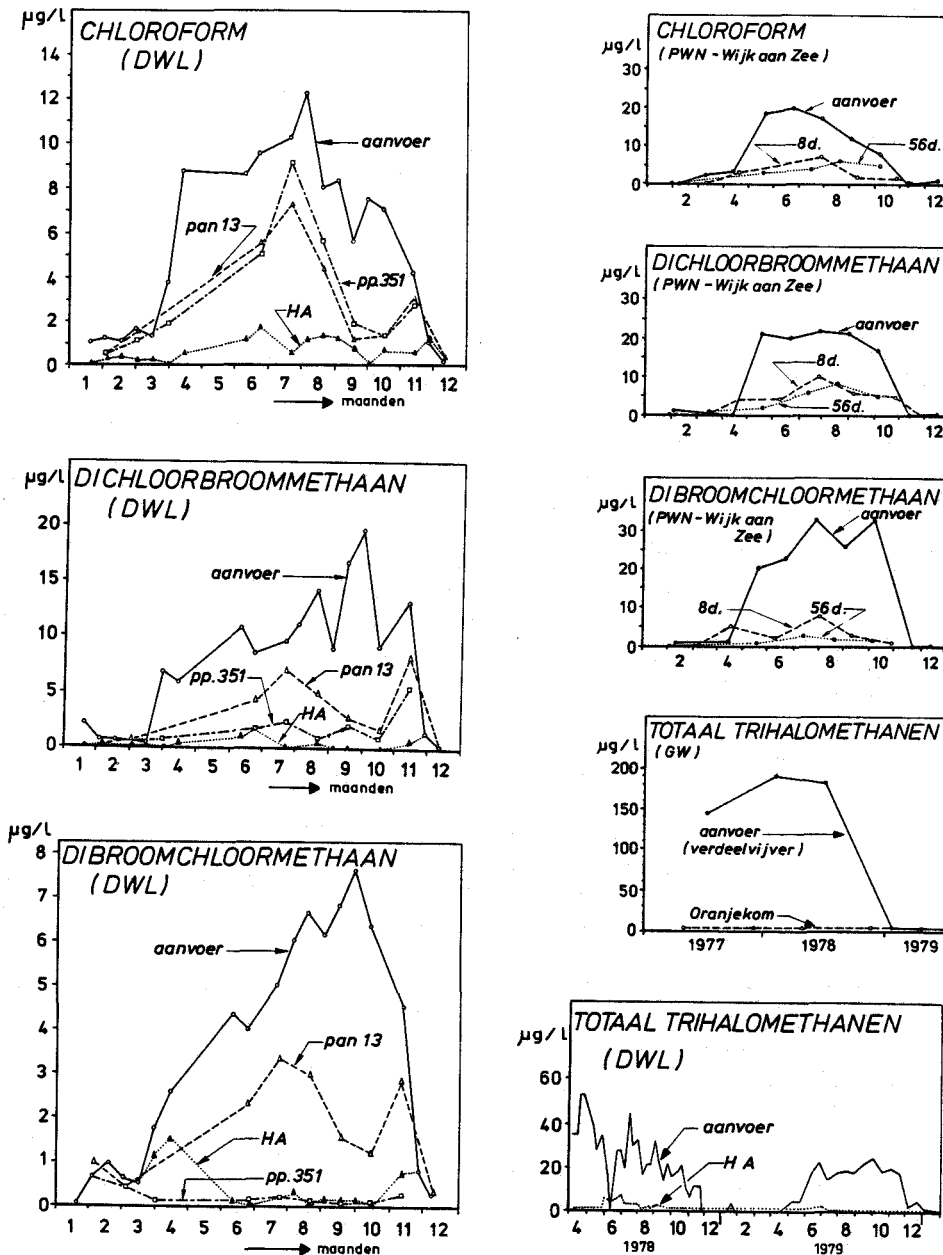


Figuur 4.8 - Totaal THM-gehalten van WRK-water in infiltratiegeulen gelegen in het noordelijke infiltratiegebied van GW (in 1979)

Informatie over het gedrag van THM als functie van de verblijftijd in infiltratiemiddelen en tijdens bodempassage kan ontleend worden aan fig. 4.8 (GW) en 4.9 (GW, DWL en PWN-Wijk aan Zee) en tabel 4.13 (GW) en 4.14 (PWN-Wijk aan Zee).

Opmerkelijke verschijnselen ten aanzien van THM zijn volgens tabel 4.13:

- chloroform is na circa 90 % van de verblijftijd in het aerobe pakket slechts voor 75 % in gehalte gedaald. Sporen chloroform ($<1 \mu\text{g l}^{-1}$) zijn ook



Figuur 4.9 - Verloop in trihalomethanen (totaal, chloroform, dichlorobroom-, dibroomchloormethaan) tijdens het verblijf in pan 13 (DWL) en bij bodem-passage (DWL en PWN) in 1981 bij de DWL en in 1979 bij het PWN, alsmede vóór en na duininfiltratie bij GW en de DWL

	geul 12	337-6	336-6	337-5	335-6
redoxniveau verblijftijd (d)	aeroob -	aeroob 7	aeroob 21	SO ₄ -red 21	aeroob 49
<u>Trihalomethanen (THM):</u>					
Chloroform	100	40	50	3	25
Dichloorbroommethaan	100	8	2	2	2
Dibroomchloormethaan	100	5	3	3	1
Bromoform	100	3	3	6	0
<u>Overige vluchtige organochlooren:</u>					
Dichlooretheen	100	0	0	0	0
Dichloorpropaan	100	0	1	3	0

Tabel 4.13 - Gehalten van trihalomethanen en enkele andere vluchtige organochloorverbindingen tijdens bodempassage (april-juni 1981) in het infiltratiegebied van GW. Alle gehalten zijn genormaliseerd op een gehalte in de geul van 100

aangetroffen in de uitmondingsbakken direct na bodempassage. Onder sulfaatreducerende condities is de concentratiedaling reeds na 3 weken >95 %.

- De concentratiedaling bij de broomhoudende THM verloopt aanzienlijk beter. Hier is de concentratiedaling na 7 weken in het aerobe pakket steeds >95 %. Dichloorbroommethaan en dibroomchloormethaan worden in kleine hoeveelheden na circa 90 % van de gemiddelde verblijftijd nog wel aangetoond. Bromoform dan echter niet meer. Het redoxniveau heeft geen merkbare invloed op de concentratiedalingen van deze verbindingen.

In Scheveningen worden na duinfiltratie nog dichloorbroommethaan en dibroomchloormethaan aangetoond (bromoform was hier in het aangevoerde water al niet meer aantoonbaar).

In Wijk aan Zee is dichloorbroommethaan en dibroomchloormethaan aangetoond tot 8 weken verblijftijd

	chloro- form	dichloor- broomme- thaan	dibroom- chloor- methaan	bromo- form	TTHM
<u>april-juni '81</u>					
Aanvoer (M ₁)	113 (100)	101 (100)	92 (100)	23 (100)	329 (100)
Pand 9 (M ₂)	56 (50)	59 (58)	51 (55)	20 (87)	178 (54)
8 dagen (M ₄)	57 (50)	44 (43)	16 (17)	1 (4)	118 (36)
24 dagen (M ₆)	55 (50)	21 (20)	4 (5)	0 (0)	80 (24)
<u>okt.-nov. '80</u>					
Aanvoer (M ₁)	76 (100)	77 (100)	109 (100)	38 (100)	300 (100)
Pand 9 (M ₂)	34 (45)	47 (61)	73 (67)	26 (68)	180 (60)
8 dagen (M ₄)	33 (43)	33 (43)	22 (20)	2 (5)	90 (30)
24 dagen (M ₆)	37 (49)	23 (30)	8 (7)	1 (3)	69 (20)

Tabel 4.14 - Gehalten van THM en TTHM in nmol l⁻¹ in pand 9 en bij bodempassage in het infiltratiegebied bij Wijk aan Zee (1980, 1981). Tussen haakjes staat het genormaliseerd gehalte (aanvoer is 100)

(zie fig. 4.19). Bromoform kon worden aangetoond tot circa 3 weken verblijftijd (tabel 4.14).

b) Overige organohalogenen:

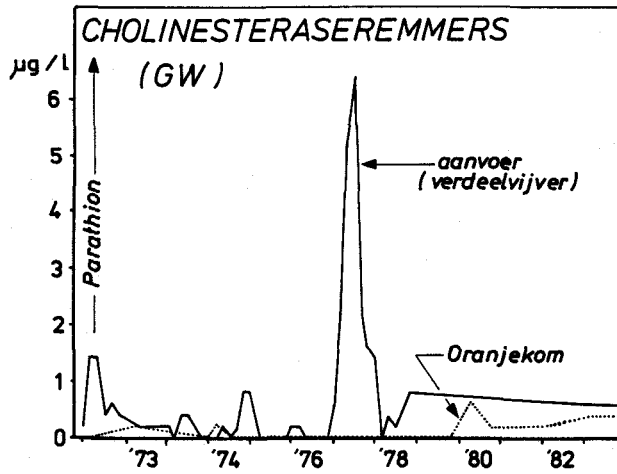
Uit tabel 4.13 blijkt, dat dichlooretheen en dichloorpropanen tijdens bodempassage snel in concentratie dalen. Na 7 weken in het aerobe pakket zijn deze verbindingen niet meer aangetoond.

4.3.12 Cholinesteraseremmers

Bij GW zijn na duininfiltratie slechts een beperkt aantal metingen uitgevoerd. Globaal duidt het beeld in fig. 4.10 op een behoorlijke concentratieverlaging. De opvallende piek in 1977 behoeft een nadere toelichting.

Vermoedelijk houdt dit verschijnsel direct verband met het feit, dat deze bepaling met ingang van 1977 elders en volgens een andere procedure is uitgevoerd. Aangezien het hier om een "groeps"bepaling gaat, zijn systematische veranderingen dan te ver-

wachten. Voor interpretatie moeten de perioden vóór 1977 en daarna dus apart beschouwd worden. Vóór 1977 is de concentratieverlaging praktisch steeds volledig, met gehalten na duininfiltratie nabij de detectiegrens. De laatste twee jaar suggereren een zekere stijging in de niveau's na duininfiltratie, alhoewel de concentratieverlaging nog steeds circa 50 % bedraagt.



Figuur 4.10 - Verloop in gehalte aan cholinesteraseremmers vóór en na duininfiltratie bij GW, van 1972-1983

Aanvoer infiltratie	bovenwater		bodempassage			
	pan 8.1	pan 8.2	1 m		69 m	
			pan 8.1	pan 8.2	pan 8.1	pan 8.2
100	52	62	13	15	21	18

Tabel 4.15 - Concentratieverandering van cholinesteraseremmers, tijdens het verblijf in infiltratiepannen en bij 1 en 69 m bodempassage in het infiltratiegebied van de DWL. Gehalten genormaliseerd op aanvoer = 100

Aan de duininfiltratie te Scheveningen is gedetailleerder onderzoek verricht (tabel 4.15). Hieruit blijkt, dat de concentratieverlaging reeds tijdens het verblijf in infiltratiemiddelen circa 40 %

bedraagt. Tijdens bodempassage wordt de concentratie na één meter nog eens 40 % verlaagd, terwijl er na 69 meter bodempassage geen verdere verwijdering meer optreedt.

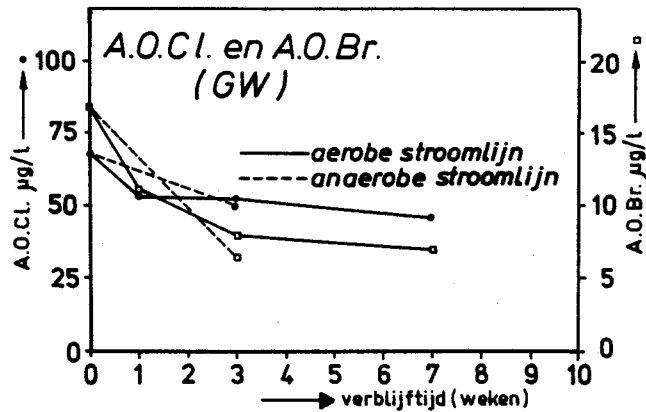
4.3.13 Actieve kool adsorbeerbaar organohalogeen (AOH)

Zowel GW als de DWL hebben gegevens beschikbaar van AOH, opgesplitst in AOCl en AOBr. Figuur 4.11 toont de gegevens van GW. Hieruit blijkt, dat AOCl na zeven weken verblijftijd voor circa 25-30 % wordt verlaagd. De verlaging van AOBr verloopt, net als de tendens bij THM liet zien, enigszins beter, deze bedraagt namelijk circa 50-55 % na 7 weken verblijftijd. Duidelijk blijkt dat het grootste deel hiervan in de eerste drie weken verblijftijd wordt gerealiseerd. Er zijn geen aanwijzingen, dat sterk verschillende redoxniveaus wat deze parameters betreft een ander resultaat opleveren.

Bij duininfiltratie te Scheveningen (zie tabel 4.16) blijkt het AOH-gehalte tijdens het verblijf in infiltratiemiddelen circa 13 % lager te worden. Aan deze tabel kan worden ontleend, dat het AOH-gehalte na circa 7 weken verblijftijd nog eens 20 % verlaagd wordt. Bij onttrekking via de hoofdader blijkt het AOH-gehalte ten opzichte hiervan, ver-

	Aan- voer	pan 13	pp 351	pp 195	pp 191	na infil- tratie (HA)
tijd (d)	0	2	7	21	49	60
Conc.	58 (100)	50 (87)	40 (70)	46 (80)	38 (66)	33 (57)

Tabel 4.16 - Verandering van het AOH-gehalte tijdens het verblijf in infiltratiepan 13 en bij bodempassage bij de DWL. Concentraties in $\mu\text{g l}^{-1}$, tussen haakjes het genormaliseerde gehalte (aanvoer = 100)

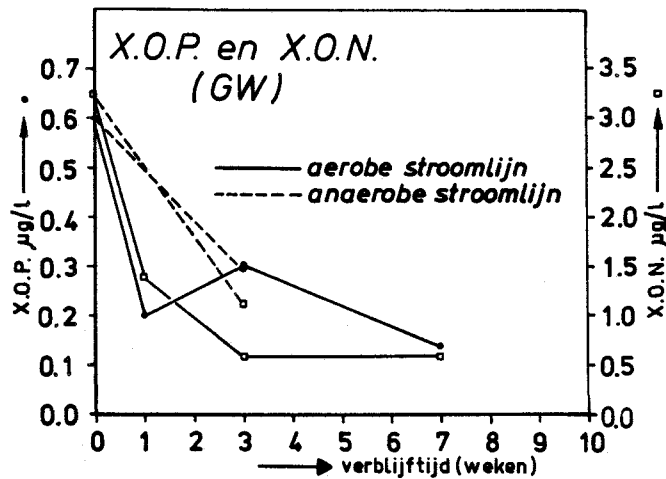


Figuur 4.11 - Het adsorbeerbaar organochloor en organobroomgehalte (respectievelijk AOCl en AOBr) van water in het infiltratiegebied van GW, als functie van de verblijftijd bij bodempassage langs een aerobe (onvolledige NO_3 -reductie) en anaerobe (SO_4 -reductie) stroomlijn (april-juni 1981)

moedelijk als gevolg van verdunning, nog eens met 9 % gedaald.

4.3.14 XAD-adsorbeerbaar organostikstof en organofosfor (XON; XOP)

Van GW zijn gegevens beschikbaar over aan XAD-hars adsorbeerbare organostikstof en organofosforverbindingen (zie fig. 4.12). Het blijkt, dat de verlaging van organostikstof reeds na 3 weken verblijftijd maximaal is (circa 80 %). Het betreft hier voornamelijk materiaal van natuurlijke oorsprong. Voor organofosfor bedraagt de concentratieverlaging na 7 weken circa 75 %. In deze groep treft men hoofdzakelijk xenobiotische stoffen aan.



Figuur 4.12 - Het adsorbeerbaar organofosfor en organostikstofgehalte (respectievelijk XOP en XON) van water in het infiltratiegebied van GW, als functie van de verblijftijd bij bodempassage langs een aerobe (onvolledige NO_3 -reductie) en anaerobe (SO_4 -reductie) stroomlijn

4.3.15 Olie

Het met infrarood bepaalde oliegehalte ondergaat tijdens infiltratie bij GW maar een zeer geringe verandering in de periode 1975-1979 (4 %). De gehalten bewegen zich zowel vóór als na duininfiltratie op detectiegrensniveau ($10\text{-}50 \mu\text{g l}^{-1}$). Hetzelfde verschijnsel doet zich voor bij de DWL in 1975. Met behulp van GC-MS onderzoek zijn voor het gedrag van enkele koolwaterstoffen, waaronder alkanen, meer specifieke gegevens beschikbaar gekomen (zie tabel 4.17). Zo heeft het onderzoek bij GW bijvoorbeeld aangetoond, dat de hogere alkanen ($\text{C}_{16}\text{-C}_{26}$) na duininfiltratie een gemiddelde concentratietoename vertonen van 160 %. Bij onderzoek naar de concentratieveranderingen van alkanen tijdens bodempassage zijn na 7 weken verblijftijd

sterke stijgingen in gehalte waargenomen bij n-C₁₁-alkanen en C₁₆H₂₆ (zie tabel 4.17). Deze laatste verbinding vertoont dit beeld trouwens ook al na één week, in tegenstelling tot de overige verbindingen. Voor C₆-alkaan zijn daarentegen sterke gehalteredalingen tot 100 % na 7 weken waargenomen. Sommige alkanen (n-C₁₀; C₁₂?; C₁₄?) worden wel in gehalte verlaagd maar vertonen duidelijk doorslag (18-60 % van invoergehalte na 7 weken aanwezig). Cyclohexaan daalt zeer sterk in gehalte, maar blijft aantoonbaar (1 %).

	geul 12	337-6	336-6	337-5	335-6
redoxniveau verblijftijd (d)	aeroob -	aeroob 7	aeroob 21	SO ₄ -red -	aeroob 49
C ₆ -alkaan	100	7	65	0	0
Alkaan (C ₆ ?)	100	10	0	0	0
n-C ₁₀ -alkaan	100	75	35	45	18
n-C ₁₁ -alkaan	100	15	190	250	200
Alkaan C ₁₂ ?	100	35	10	180	60
Alkaan C ₁₄ ?	100	100	50	35	44
C ₁₆ H ₂₆	100	600	200	100	1400
cyclohexaan	100	1	1	1	1

Tabel 4.17 - Concentratieverandering van een aantal koolwaterstoffen tijdens bodempassage bij GW (april-juni 1981). Alle gehalten zijn genormaliseerd op een gehalte van 100 in de geul

4.3.16 Anionische detergenten

De gehalten zijn bij GW en de DWL zowel vóór als na duininfiltratie op detectiegrensniveau (<50 µg l⁻¹; DWL = 1977-1979; GW = 1979, 1981, 1982). De daling tijdens duininfiltratie bedraagt 25 % bij GW en 20 % bij de DWL. Onderzoek naar het effect van bodempassage te Scheveningen in 1978 onthult, dat het gehalte aan anionische detergenten na 3 weken verblijftijd gehalveerd is. Bij langere verblijftijden treedt geen verdere daling meer op.

4.3.17 Overzicht van concentratieveranderingen bij duininfiltratie

In de navolgende tabel 4.18 is een overzicht gegeven van de concentratieveranderingen, die ten gevolge van duininfiltratie op de verschillende locaties zijn geconstateerd. Waar mogelijk is het totaal effect opgesplitst in deeleffecten. Uit de resultaten blijkt, dat reeds tijdens het verblijf in infiltratiemiddelen behoorlijke concentratiedalingen kunnen optreden (THM, cholinesteraseremmers). Een relatief korte verblijftijd van circa één week is eveneens in staat tot grote concentratieverminderingen. Daarnaast komen ook gehaltestijgingen voor. Het effect is echter sterk afhankelijk van de specifieke verbinding. Een verschil in redoxpotentiaal kan soms betekenis hebben voor het bodempassage-effect. Een sulfaatreducerend milieu werkt ten aanzien van bepaalde esters, ethers en gealkyleerde aromaten minder goed dan een aeroob milieu. Voor chloroform is dat precies andersom. Bij de vergelijking van totaal- en deeleffecten moet bedacht worden, dat het nogal eens om verschillende meetperioden gaat. Bovendien is van belang, dat de mate waarin de verschillende redoxniveau's een aandeel hebben gehad tijdens de bodempassage, van betekenis is voor het totaal resultaat en dus voor de mate van overeenkomst tussen totaal- en deeleffecten.

Een aantal gehaltestijgingen bij duininfiltratie hangt nauw samen met de aanwezigheid van veen in de grond en de daarmee gepaard gaande anaerobie (zuren, esters, terpenoïden/sterolen). De onder deze omstandigheden optredende microbiologische activiteit wordt onder andere gekenmerkt door de produktie van organische zuren en esters. De toename van terpenoïden zou daarnaast ook nog als gevolg

van directe afgifte uit het veenpakket kunnen plaatsvinden. Een en ander ziet men zeer uitgesproken optreden bij GW (zuren, esters, terpenoïden/sterolen) en te Ouddorp (organische zuren). In Scheveningen is dit slechts in zeer geringe mate het geval. Concentratieverhogingen worden verder nog waargenomen in Zandvoort bij de groepen PCB's, alkylaromaten en alifaten en in Scheveningen bij de groepen ethers en alcoholen. In het algemeen geldt, dat grote concentratieverlagingen (>90 %) bij duin-infiltratie mogelijk zijn, alhoewel tussen de locaties grote verschillen kunnen optreden. Naast de bodemsamenstelling spelen hierin de kwaliteit van het aangevoerde water (aantal verbindingen en gehalten in Maaswater geringer), alsmede de wijze van terugwinning (open winning bij GW met atmosferische introductie) en de mate van verdunning met duinwater (verdunning varieert van 5-73 %) een grote rol. Deze aspecten zullen in par. 4.5 meer in detail worden besproken.

Er zij op gewezen, dat het geschetste beeld van concentratieverlagingen in sterke mate wordt bepaald door de gehanteerde analysemethodiek. Zie ter illustratie hiervan fig. 4.13, waarin de op verschillende wijzen bepaalde groepen organohalogenen met het bijbehorende bodempassage-effect zijn weergegeven. Een soortgelijke indicatie komt naar voren uit de resultaten van gelpermeatie chromatografie (GPC) te Ouddorp (lit 35; zie fig. 4.14).

Uit fig. 4.14 blijkt, dat verbindingen met een molecuulgewicht van circa 2000 in de XAD pH₂-fractie hier een dominerende rol spelen. De overeenkomst met het chromatogram van een veenextract in fig. 4.14 geeft aan, dat deze verbindingen vermoedelijk afkomstig zijn van veen in de grond. De toename van

Organische Verbinding	Scheveningen					Zandvoort				Ouddorp	Wijk aan Zee							
	Totaal	Aanvoer (pan 13)	Bodempassage a				Totaal	Aanvoer (geul 12)	Bodempassage a, w,b				Totaal	Totaal m	Aanvoer	Bodempassage ^a		
			1 week	3 weken	7 weken	40 weken			1 week aerob	3 weken aerob	3 weken anaerob	7 weken aerob				1 week	3 wk	8 wk
Zuren	-6 j						-437 k						-472					
Esters	14 j						-17 k	100/-300	100/-30	100/-230	0-100	57						
- fosfaten	-						49	97/-100	0/ 97	100/- 40	0-100	61						
- ftalaten	-20						-69	96/-300	98/-30	100/-230	0-100	55						
- overigen	100						-13	100/- 50	0/100	100/- 80	60/100	92						
Fenolen	- u						82 k					97						
- halogeenderivaten	-						100					98						
- nitroderivaten	-						88					93						
Ethers	-8 j						70 k	30/ 100	85/100	85/- 10	70/100	96						
- Cl derivaten	-8						51	30/ 100	85/100	85/- 10	70/100	96						
- Br derivaten	-						100											
Aromaten	33 j						79 k	100/-150	100/-10	100/-100	30/100	96						
- PCA	-						3	100/-150	- 10	-100	60	100						
- PCB	-						-350					100						
- chloorderivaten	-	37/-3 d	19/71		22/76		100	100	100	100	85-100	100						
- nitroderivaten	-						100	100	100	100	85	99						
- alkylderivaten	-						-15	40/ 88	25/87	82/-10	30/98	100						
Basen	-						95 k	40/-100	70/-60	15/-120	45/-55	98						
- halogeenderivaten	-						93	-100	-60	-120	-55	100						
- anilines	-						95	40	70	50	100	100						
Alifaten	100 j						-161 k	95/-500	100/-100	100/-150	100/-1300	99						
Aldehyden-ketonen	-						59 k	22/60	80/95	60/90	90/100	90						
Alcoholen	-47 j						100 k	100	100	100	100	100						
EOH	44 j	25	25	60			95 k								62 h		68 h	
THM	91 r	45/57 c					99 k	60/97	50/95	94/98	75/100		40/46 u	64/70u	76/80u			
Overige vluchtige organohalogenen							88 k	100	99/100	97/100	100							
ACh (* AOCl; ** AOBr)		13 s	30 s	20 s	34 s		28 Q	24*/34**	24*/51**	28*/63**	34*/57**				33 g	33 g		
Terpenoïden/Sterolen							-139 k	30	-50	-130	10							
Cholinesteraseremmers	87 s	38/48 s	85/87s				79 n											
Olie	0 e						4 p											
	116 f																	
Anionische detergenten	20 t		50 t	50 t			25 i											
Organochloorpesticiden	74 s						71 p											
XCN w								55	80	60	80							
XOP w								66	50	50	75							

a: percentage ten opzichte van het aangevoerde water; b: twee stroomlijnen, respectievelijk geul 12, 1 week, 3 weken, 7 weken (aerob) en geul 12, 3 weken (anaerob); c: geen gegevens bromoform; d: pan 8.1 en 8.2; e: Lek; f: Maas; g: mei 1980; h: 1979; i: 1979; 1981 en 1982; j: maart tot en met december 1976; k: 1976 tot en met 1979; m: 1976 tot en met 1978; n: 1974 tot en met 1980; p: 1975 tot en met 1979; Q: 1982 (aanvoer; bodempassage 1981); r: 1978 tot en met 1980; s: 1973; t: 1978 tot en met 1979; u: 1980 tot en met 1981; w: 1981; negatieve waarden duiden op een toename

Tabel 4.18 - Overzicht van concentratieverlagingen te Scheveningen, Zandvoort, Ouddorp en Wijk aan Zee

organische zuren te Ouddorp (tabel 4.18) wees ook al in die richting. Het verschil in dominantie van de "molecuulgewicht 2000 groep" vóór en na duininfiltratie wordt ook duidelijk door een vergelijking in fig. 4.14 van het chromatogram van Lekwater met dat van Ouddorp ruw. In de figuren is aangegeven tot welke molecuulgewichtsgrens de GC-MS techniek bruikbaar is. De discriminatie van organische stoffen die hierdoor ontstaat, is duidelijk.

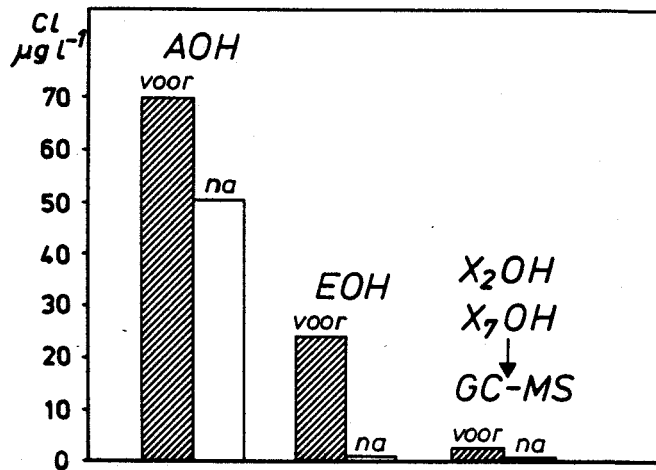
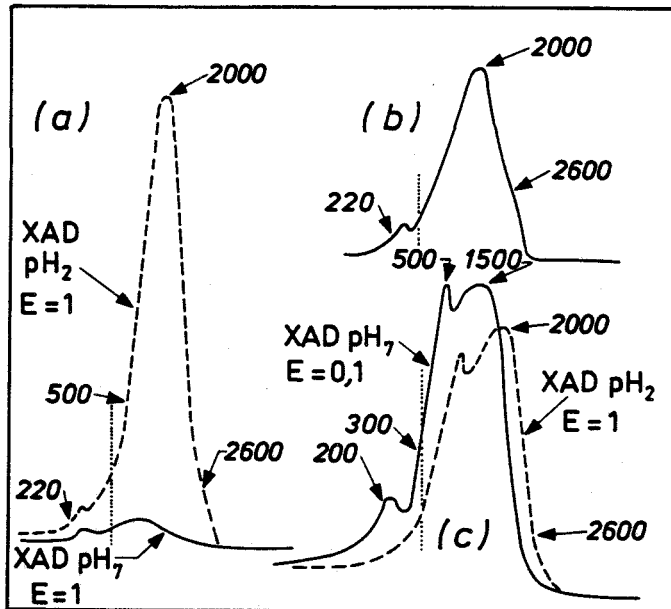


Fig. 4.13 - Organohalogeën vóór en na duininfiltratie bij GW in 1980 met verschillende bepalingsmethoden. X₂OH en X₇OH GC-MS = som van organohalogeenvverbindingen bepaald met behulp van gaschromatografie-massaspectrometrie na isolatie met XAD bij achtereenvolgens pH7 en pH2.



Figuur 4.14 - Moleculgewichtsverdeling van (a) gemengd ruwwater van de WMZ-Ouddorp, (b) een ethanol-extract van veen en (c) Lekwater. De puntjeslijn geeft de grens aan, waarboven (moleculgewicht = 400) stoffen met behulp van de GC-MS techniek onzichtbaar blijven

4.4 Interpretatie

4.4.1 Overzicht van processen

De drie hoofdcompartimenten water, bodem en atmosfeer spelen alleen een rol in de gegevens die hiervoor werden besproken. In fig. 4.15 is een schematisch overzicht van de belangrijkste relaties tussen deze compartimenten gegeven. Bovendien zijn een aantal belangrijke processen binnen de compartimenten aangeduid.

ATMOSFEER	ATMOSFEER omzetting onder invloed van (foto)chemische factoren					
	depositie	verdamping	depositie	verdamping	depositie**	verdamping**
WATER	WATER VOOR INFILTRATIE verdunning door regenwater bioaccumulatie omzetting o.i.v. licht m.b. *) en chemische factoren		WATER TIJDENS INFILTRATIE verdunning door regenwater hydrodynamische dispersie omzetting o.i.v. m.b. *) en chemische factoren bioaccumulatie		WATER NA INFILTRATIE verdunning door regenwater** omzetting o.i.v. m.b. *) chemische factoren, licht** bioaccumulatie	
	desorptie/mobilisatie	adsorptie/(co)precipitatie	desorptie/mobilisatie	adsorptie/(co)precipitatie	desorptie/mobilisatie	adsorptie/(co)precipitatie
GROND	bioaccumulatie omzetting o.i.v. m.b. *) en chemische factoren BODEMSLIB		bioaccumulatie omzetting o.i.v. m.b. *) en chemische factoren BODEMSLIB en WATERVOEREND PAKKET		bioaccumulatie omzetting o.i.v. m.b. en chemische factoren BODEMSLIB**	

*: m.b.: microbiologie; **: in geval van open winning

Figuur 4.15 - Relaties tussen milieucompartimenten bij duininfiltratie, alsmede een aantal kwaliteitsbeïnvloedende processen binnen de compartimenten

Bij de interpretatie van de meetgegevens moet dus met een zeer gecompliceerd systeem van processen rekening worden gehouden. De aard van het gegevensbestand maakt het onmogelijk om alle in fig. 4.15 genoemde processen te bespreken. Wel is het mogelijk om een aantal belangrijke fenomenen meer gedetailleerd toe te lichten.

Dat zijn achtereenvolgens: (a) verdunning (par. 4.4.2), (b) verdamping (par. 4.4.3), (c) atmosferische depositie (par. 4.4.4), (d) binding aan slib (filtratie; par. 4.4.5) en (e) transport in de bodem (binding aan bodembestanddelen, microbiologische processen; par. 4.4.6).

4.4.2 Verdunning

Verdunning vindt plaats met ondiep en meestal ook diep duinwater. In par. 3.4.1 is uiteengezet op welke wijze en in tabel 2.2 in welke mate dit gebeurt. Voor de interpretatie van de hier beschouwde

gegevens is bij de concentratieveranderingen ten gevolge van het infiltratieproces met de volgende percentages verdunning rekening gehouden: GW 20 %, DWL 20 % en WMZ-Ouddorp 73 %. Daar er bij de WMZ vóór infiltratie alleen Haringvlietwater uitvoerig op organische micro's is onderzocht, is het tevens geïnfiltreerde polderwater gemakshalve als verdunnende component beschouwd en in de 73 % inbegrepen. Tabel 4.19 geeft een overzicht van de invloed van verdunning op de totaal effecten uit tabel 4.18 door naast de totaal bereikte concentratieverlagingspercentages ook de waarden te vermelden, die gerealiseerd zouden worden zonder verdunning met duinwater. Hierbij is ervan uitgegaan, dat het verdunningswater de genoemde stoffen niet bevat, hetgeen voor een aantal stoffen en met name voor het polderwater (WMZ) niet het geval is. Uit de in de tabel naar voren komende verschillen tussen het effect zonder en met verdunning volgt, dat bijmenging van duinwater het grootste aandeel heeft in de concentratieverlaging bij duininfiltratie van anionische detergenten, olie-achtigen, AOH, PCA (alleen GW), esters (DWL en WMZ) en aromaten (DWL).

4.4.3 Verdamping

Vóór de infiltratie in het bodempakket staat het water in open verbinding met de atmosfeer. Als gevolg van het atmosferisch contact kunnen verbindingen met een zekere vluchtigheid verdampen. Aangezien het steeds om oppervlaktewater gaat, zal alleen de verdamping van kort voor de infiltratie geïntroduceerde stoffen van belang zijn.

Een belangrijke categorie vormen in dit verband de vluchtige stoffen, die resulteren als gevolg van de chloring die het te infiltreren water soms vóór transport naar de infiltratiegebieden ontvangt.

	Zandvoort		Scheveningen		Ouddorp	
	totaal (geme- ten)	excl.* ver- dunning	totaal (geme- ten)	excl.* ver- dunning	totaal (geme- ten)	excl.* ver- dunning
Org. zuren	-437	-571	-6	-33	-472	-2019
Esters	- 17	- 46	14	-8	57	-59
- fosfaten	49	36	-	-	61	-44
- ftalaten	- 69	-111	-20	-50	55	-67
- overigen	- 13	- 41	100	100*	92	70
Fenolen	82	78	-	-	97	89
- Br/Cl-derivaten	100	100	-	-	98	93
- NO ₂ -derivaten	88	85	-	-	93	74
Ethers	70	62	-8	-35	96	85
- Cl-derivaten	51	39	-8	-35	96	85
- Br-derivaten	100	100	-	-	-	-
Aromaten	79	74	33	16	96	85
- PCA	3	- 21	-	-	100	100
- PCB	-350	-462	-	-	100	100
- Cl-derivaten	100	100	-	-	100	100
- NO ₂ -derivaten	100	100	-	-	99	96
- alkylderivaten	- 15	- 44	-	-	100	100
Basen	95	94	-	-	98	93
- Br/Cl-derivaten	93	91	-	-	100	100
- anilines	95	94	-	-	100	100
Alifaten	-161	-225	100	100	99	96
Aldehyden-ketonen	59	49	-	-	90	63
Alcoholen	100	100	-47	-84	100	100
EOH	95	94	44	30	-	-
THM	99	99	91	99	-	-
Overige vluchtige OH _x	88	85	-	-	-	-
Terpenoïden-sterolen	-139	-199	-	-	-	-
AOH	28	10	-	-	-	-
Cholinesteraseremmers	79	74	87	84	-	-
Olie	4	- 20	0 _β /-116 _γ	-25 _β /-170 _γ	-	-
Anion. detergenten	25	6	20	0	-	-
Organochloorpesticiden	71	64	74	67	-	-

α = organochalogenen; β = Lekwater infiltratie; γ = Maaswater infiltratie; * be-
rekening volgens exclusief verdunning = $100 - \frac{100}{100 - \%B} \cdot \{100 - \text{totaal gemeten}\}$,
waarin %B = verdunningspercentage; negatieve waarden duiden op een toename

Tabel 4.19 - Overzicht van procentuele concentratieverlagingen bij duininfiltratie door GW (Zandvoort), de DWL (Scheveningen) en WMZ (Ouddorp) zoals gemeten (totaal) alsmede exclusief verdunning (dus het gemeten resultaat gecorrigeerd voor bijmenging)

Deze stoffen, waarvan de trihalomethanen (THM) een belangrijke groep uitmaken, kunnen, afhankelijk van de toegepaste chloordosering, voorkomen in gehalten tot circa $100 \mu\text{g l}^{-1}$. In het infiltratiegebied bij Zandvoort kan tijdens het transport naar en het verblijf in de infiltratiegeulen, afhankelijk van de verblijftijd, 10-90 % van deze groep vervluchtigen (zie fig. 4.8). De gemiddelde verwijdering door verdamping bedraagt 50 % bij een gemiddelde verblijftijd in de infiltratiepanden van circa 5 dagen. Deze waarneming wordt bevestigd door gegevens van de DWL en het PWN (tabel 4.20). Bij een gemiddelde verblijftijd in pan 13 en pand 9 tot het bemonsteringspunt van circa 2 dagen verdampt gemiddeld 40-60 %. Het effect van de verdamping in Ouddorp is niet bekend. Zoals verwacht neemt het verdampingseffect af met toenemend broomgehalte (zie tabel 4.20).

Locatie	CHCl_3	CHBrCl_2	CHBr_2Cl	CHBr_3
<u>Wijk aan Zee (pand 9)</u>				
(okt.-nov. 1980)	55	39	33	32
(apr.-jan. 1981)	50	42	45	13
<u>Den Haag (pan 13)</u>				
(jan.-dec. 1981)	48	57	47	-

Tabel 4.20 - De concentratieverlaging van THM (in %) ten opzichte van de aanvoer als gevolg van verdamping in een infiltratiemiddel te Wijk aan Zee en Scheveningen

4.4.4 Atmosferische depositie

Onder atmosferische depositie wordt verstaan het totaal aan "droge" en "natte" depositie. De droge depositie heeft betrekking op het neerslaan van

stofdeeltjes; de natte depositie houdt verband met de aanvoer van stoffen door regenwater. Met de gebruikelijke regenvanger wordt het totaal van beide deposities gemeten. De verontreiniging van regenwater met organische stoffen is op diverse locaties vastgesteld (lit. 37, 38). Een onderzoek naar PCA's in regenwater boven de kuststrook tussen Sassenheim en Valkenburg leverde voor de Borneffgroep 760 ng l⁻¹ op. In wolkenwater werd 605 ng l⁻¹ aangetroffen (lit. 39).

In onderstaande tabel 4.21 zijn gegevens van regenwateronderzoek te Ouddorp in verhouding gebracht tot de aanvoer van de gemeten organische stoffen in het te infiltreren Haringvlietwater.

Stof	Aandeel regenwater in totale aanvoer (%)	Stof	Aandeel regenwater in totale aanvoer (%)
EOCl	0,43	Organochloor- pesticiden	5,2
VOCl	3,4		

Tabel 4.21 - Het aandeel van regenwater in de totale aanvoer van enige organische stofgroepen in het infiltratiegebied te Ouddorp. Gegevens 1980, regenwater; 1982 infiltratiewater

Een aanwijzing voor de aanwezigheid van atmosferische depositie van organische stoffen wordt nog verkregen uit de gegevens betreffende polycyclische aromaten en polychloorbifenylen te Leiduin (zie fig. 4.6).

Uit tabel 4.18 blijkt, dat de concentratieverlaging van deze verbindingen bij GW in zeer sterke mate afwijkt van de gehaltesdaling te Ouddorp. In Ouddorp bedraagt deze voor beide groepen 100 %, terwijl bij GW voor PCA's slechts 3 % daling wordt gerealiseerd en het gehalte aan PCB's met 350 % toeneemt. Van

dergelijke, bij uitstek lipofiele, dat wil zeggen overwegend aan slib gebonden groepen verbindingen (zie par. 4.4.5.1 en 4.4.6.2) mag een volledige verwijdering bij duininfiltratie worden verwacht. De waarnemingen bij Zandvoort wijzen op een introductie vanuit de atmosfeer. Dit is gezien de open winning aldaar zeker niet denkbeeldig. In het open winningssysteem (kanalen, Oranjekom) vindt een voortdurende slibproductie plaats (uitvloeking opgelost ijzer, resten van biomassa), waarvan een groot deel in de Oranjekom tot bezinking komt. Het vanuit de atmosfeer geïntroduceerde materiaal, zoals PCA's en PCB's, zal door zijn lipofiele aard overwegend aan dit slib geadsorbeerd worden. Het resultaat over jaren is een accumulatie van deze verbindingen in de Oranjekom. Het is nu juist dit punt, dat model gestaan heeft voor het punt "na duininfiltratie" bij GW. Wanneer men bedenkt, dat de sliblaag in de Oranjekom ten tijde van het onderzoek circa 60 jaar oud was en dat bij de bemonstering en analyse tevens dit slib wordt meegenomen, dan worden de geconstateerde effecten plausibel. Remobilisatie van PCA's uit het slib onder invloed van oppervlakte-actieve stoffen mag ook niet worden uitgesloten (zie par. 4.4.6.3). Onderzoek van het slib heeft inderdaad de aanwezigheid van PCB's aangetoond. PCA's uit de Borneffgroep werden in gehalten van 100-500 $\mu\text{g kg}^{-1}$ aangetroffen, hetgeen een factor 10 hoger is dan vóór infiltratie in bodemslib van een infiltratiegeul werd bepaald. Remobilisatie van PCA's uit deze sliblagen onder invloed van microbiologische activiteit is zeker niet ondenkbaar. Stofwisselingsproducten als boter- en melkzuur blijken een detergerende werking op PCA's te hebben (lit. 95). PCA's (en soms ook PCB's) worden in het drinkwater in zeer lage concentraties aangetoond.

4.4.5 Binding aan slib (filtratie)

4.4.5.1 Theorie

Organische stoffen kunnen op verschillende manieren in het aangevoerde water aanwezig zijn: in opgeloste vorm, als colloïdaal deeltje of in geadsorbeerde toestand hetzij aan andere moleculen (detergenten) dan wel aan vaste bestanddelen. De verschillende groepen in een organisch molecuul kunnen een uitgesproken lipofiel karakter ($-C_nH_{2n+1}$) dan wel een duidelijk hydrofiele aard ($-COOH$; $-CH_2OH$) hebben. Lipofiele groepen zullen via van der Waals-krachten een intensieve wisselwerking vertonen met overeenkomstige groepen. Hydrofiele groepen kunnen via waterstofbrugvorming en dipool-dipoolinteractie een sterke interactie geven met polaire stoffen, als water en (organische) ionen.

Voor een systeem met een vaste en waterige fase, zoals hier het geval, betekent dit, dat lipofiliteit veelal leidt tot het voorkomen in colloïdale of geadsorbeerde vorm (vooral aan slib of humus). Hydrofiliteit heeft tot gevolg, dat de stof overwegend in de waterfase opgelost voorkomt. In veel organische moleculen bevinden zich zowel uitgesproken lipofiele als hydrofiele groepen. De competitie tussen de hierboven beschreven interacties bepaalt dan het uiteindelijke gedrag van de verbinding.

Het is mogelijk om het bovenstaande enigszins te kwantificeren. Als maat wordt daarvoor gebruikt de verdeling van een organische verbinding over een lipofiele fase (n-octanol) en een hydrofiele fase (water), ook wel beschreven door middel van de zogenaamde octanol-watercoëfficiënt (K_{ow}). Deze coëfficiënt is als volgt gedefinieerd:

$$K_{owi} = \frac{C_{oi}}{C_{wi}} \quad (4.1)$$

waarin: C_{oi} = de concentratie van een organische verbinding i in n-octanol; C_{wi} = de concentratie van een organische verbinding i in water.

Uitgesproken lipofiele verbindingen hebben een log K_{ow} van circa 4-6 (hexachloorbenzeen, bepaalde polycyclische aromaten).

Dergelijke verbindingen blijken een zeer grote affiniteit voor het lipofiele organische materiaal in slib aan de dag te leggen. Zo heeft men in een bepaalde praktijksituatie met een 14 % organisch koolstofhoudend slib gevonden, dat de concentratie van 1,2,3,4 tetrachloorbenzeen een factor 1000 hoger was dan in de waterfase (lit. 40).

Voor de verdeling van een verbinding i over een vloeibare fase en een vaste fase wordt de verdelingscoëfficiënt K_i gehanteerd. Voor K_i geldt overeenkomstig (4.1):

$$K_i = \frac{S_i}{C_{wi}} \quad (4.2)$$

waarin S_i = de concentratie van verbinding i in de vaste fase.

Experimenteel is vastgesteld, dat vergelijking (4.2) in het lage concentratiegebied ($C_{wi} < 100 \mu\text{g l}^{-1}$) goed voldoet (lit. 41). Het adsorptiegedrag kan in de praktijk dus beschreven worden met een lineaire adsorptie-isotherm. Experimenteel blijkt, dat K_i voor een bepaalde verbinding een zeer significante correlatie met de in het adsorbent aanwezige hoeveelheid organische koolstof vertoont (lit. 42-46). Een en ander is voor een verscheidenheid aan natuurlijke sedimenten met een uiteenlopende fractie organisch koolstof (f_{oc}) varieërend van 10^{-3} - $5 \cdot 10^{-2}$. voor diverse lipofiele verbindingen vastgesteld.

Daarom kan het volgende gedefinieerd worden:

$$K_{oci} = \frac{K_i}{f_{oc}} \quad (4.3)$$

waarin K_{oci} = de verdelingscoëfficiënt K_i , die geldt voor de verdeling van verbinding i tussen water en een vaste fase met $f_{oc} = 1$.

Afhankelijk van de onderzochte sorbentia wordt voor het verband tussen K_{oci} en K_{owi} gegeven (respectievelijk lit. 41 en 48):

$$\log K_{oci} = \log K_{owi} - 0,21 \quad (4.4)$$

en
$$\log K_{oci} = 0,72 \log K_{owi} + 0,49 \quad (4.5)$$

Alhoewel deze relaties niet algemeen geldig zijn, is het belang ervan toch duidelijk, omdat op deze manier in principe uitspraken te doen zijn over de verdeling van organische stoffen over een waterfase en een vaste fase. Voor de duininfiltratie is dit om verschillende redenen van belang. Allereerst kan inzicht verkregen worden in de rol die filtratie speelt in de verwijdering van organische stoffen alvorens de echte infiltratie begint.

Vervolgens is het in principe mogelijk om prognoses te doen over de retentie van organische stoffen in het duinpakket. Verder kunnen te verwachten looptijden en beladingen getaxeerd worden.

4.4.5.2 Experimentele gegevens

Combinatie van de vergelijkingen (4.3) en (4.4) leidt tot een betrekking, waarmee de verdeling van een organische stof i over de vaste fase en de waterfase voorspeld kan worden.

$$\log K_i = \log K_{owi} + \log f_{oc} - 0,21$$

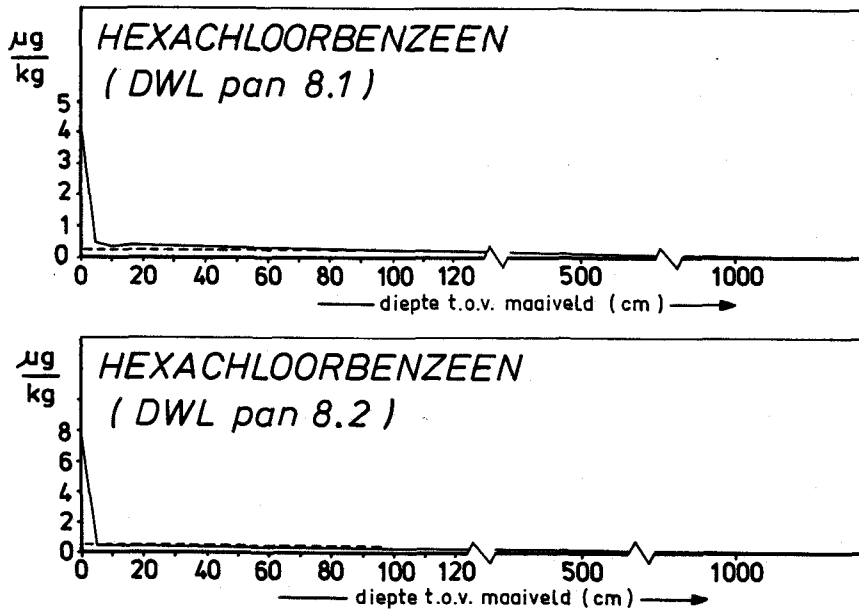
oftewel
$$K_i = 0,63 \cdot K_{owi} \cdot f_{oc} \quad (4.6)$$

Onderstaande tabel 4.22 geeft een indruk van de K_i -waarden, die bij verschillende waarden van K_{ow} mogelijk zijn. Als voorbeeld is hier gebruik gemaakt van gegevens van de sliblaag uit een infiltratiepan van de DWL. Het organisch stofgehalte van deze sliblaag komt overeen met dat van slibsoorten die in de literatuur (lit. 47) voor adsorptiestudies zijn gebruikt.

Verbinding	K_{ow}	K_i
Chloroform	93	1,23
Benzeen	135	1,79
Tolueen	1.412	18,7
Trichloorbenzeen	10.000	132,3
Hexachloorbenzeen	316.000	4.180

Tabel 4.22 - K_i -waarden voor een aantal verbindingen in infiltratiepan 8.1, waarbij f_{oc} op basis van COD berekend is op 0,021

Uit deze tabel blijkt, dat het effect van filtratie snel toeneemt met grotere K_{ow} , als gevolg van een grotere binding aan slib. Eén en ander wordt geïllustreerd in fig. 4.16, waarin de belading van de grond bij twee infiltratiepannen als functie van de afgelegde afstand in het watervoerend pakket is uitgezet. De onderzochte stof hexachloorbenzeen (HCB) heeft een zeer hoge K_{ow} , waardoor een zeer geprononceerde accumulatie in de sliblaag optreedt.

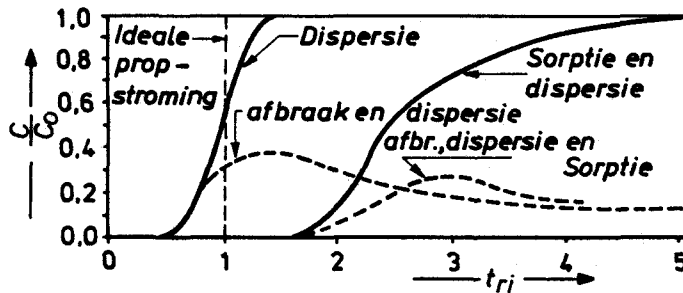


Figuur 4.16 - Belading van de grond met HCB als functie van de afgelegde afstand van water ondergronds. Bemonstering in maart 1974

4.4.6 Gedrag bij bodempassage

4.4.6.1 Algemeen

Tijdens bodempassage kunnen een aantal verschillende processen de concentratie van organische stoffen beïnvloeden. De volgende figuur geeft een indruk van de mogelijkheden.



Figuur 4.17 - Respons van een bodempassagesysteem op een stapvormige verandering in de invoerconcentratie van een organische stof i in relatie tot verschillende processen (lit. 50)

t_{ri} = relatieve retentietijd van verbinding i = t_i / t_{H_2O} ; t_i = verblijftijd van i ; t_{H_2O} = verblijftijd van het water; c = concentratie op tijdstip $t = t_{ri}$; C_0 = idem bij $t = 0$

Wanneer deze verschillende processen in een mathematisch verband worden gebracht, ontstaat de volgende transportvergelijking (lit. 51 en 52).

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = - \frac{\partial F_i}{\partial x} - \frac{\rho_b}{\Sigma_w} \cdot \frac{\partial S_i}{\partial t} + \left(\frac{\partial C_i}{\partial t} \right)_r \quad (4.7)$$

waarin: C_i = concentratie van opgeloste stof i (kg m^{-3}); t = tijd (s); F_i = flux van de opgeloste stof i ($\text{kg m}^{-2} \text{ s}^{-1}$); x = afgelegde afstand in stroomrichting (m); ρ_b = gemiddelde dichtheid van de grond (kg m^{-3}); Σ_w = het met water gevulde porieënvolume ($\text{m}^3 \text{ m}^{-3}$); S_i = belading van de bodem met stof i (kg kg^{-1}); het suffix r bij de laatste term duidt op "als gevolg van reactie".

Indien lineair transport (dat wil zeggen in één dimensie, langs x -as) van toepassing is, kan (4.7) ook worden geschreven als:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - u \cdot \frac{\partial C_i}{\partial x} - \frac{\rho_b \cdot \partial S_i}{\Sigma_w \cdot \partial t} + \left(\frac{\partial C_i}{\partial t} \right)_r \quad (4.8)$$

waarin: D = dispersiecoëfficiënt ($\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$); u = lineaire stroomsnelheid van het water (m s^{-1})

In de laatste, algemene transportvergelijking beschrijft de eerste term de dispersie, de tweede het lineaire transport, de derde de binding aan de grond en de vierde de concentratieverandering als gevolg van microbiologische en/of chemische omzettingen. De betekenis van dispersie is elders toegelicht (lit. 49). Thans zal meer aandacht besteed worden aan achtereenvolgens binding en omzetting van organische stoffen in de grond.

4.4.6.2 Binding aan het watervoerend pakket

Bij de binding van organische stoffen aan (de vaste fase in) het watervoerend pakket kunnen zich in principe verschillende mogelijkheden voordoen, te weten (co)precipitatie, chemisorptie (irreversibel), fysische adsorptie (reversibel), waterstofbrugvorming en ionenwisseling. (Co)precipitatie kan zich bijvoorbeeld voordoen in een diep anaeroob bodempakket, waar sulfaatreductie en precipitatie van sulfiden optreedt. Remobilisatie kan optreden, indien door stijging van het redoxniveau oxydatie van deze sulfiden optreedt.

Alhoewel sulfaatreducerende omstandigheden alsmede sterke veranderingen hierin tijdens duininfiltratie voorkomen (bijvoorbeeld ten gevolge van seizoenswisselingen), is niet bekend in hoeverre hierdoor (co)precipitatie en mobilisatie tijdens duininfiltratie feitelijk optreden. Precipitatie zou ook kunnen optreden als gevolg van een chemische binding tussen organische zuren en anorganische kationen (Ca^{2+}).

Bij chemisorptie kan gedacht worden aan complexvorming zoals die bijvoorbeeld kan optreden tussen bepaalde organische stikstofverbindingen en aan humusgebonden metaalionen. Het optreden hiervan wordt in sterke mate bepaald door specifieke eigenschappen van het te binden organische molecuul en de eigenschappen van de bodemfase. Dit geldt ook voor fysische adsorptie, waterstofbrugvorming en ionenwisseling.

Zoals hiervoor werd beschreven, is het gedrag van organische stoffen afhankelijk van de aard van het molecuul. De verschillende aspecten hiervan met betrekking tot de verdeling over het onopgeloste slib en de waterfase werden in par. 4.4.5 besproken.

Bij bodempassage wordt het water-slibstelsel ver-

anderd in die zin, dat het water nu niet met slib doch met een ander type organische stof in contact wordt gebracht, namelijk humus.

De beschikbare informatie over de structuur van humus (lit. 54, 93) geeft aanleiding tot de veronderstelling, dat er een zeer gevarieerde wisselwerking tussen organische stoffen in water en dit materiaal moet kunnen optreden, zoals bijvoorbeeld interactie via van der Waalskrachten, waterstofbrugvorming, dipool-dipoolsystemen en ionenwisseling.

Een mathematische beschrijving van het totaal effect van deze wisselwerkingen kwam reeds ter sprake in par. 4.4.5. Aangezien de daar gegeven relaties (4.4) en (4.5) betrekking hebben op mogelijk andere typen organische sorbentia dan aanwezig in de onderzochte infiltratiesystemen is het de vraag of deze vergelijkingen zonder meer op andere situaties mogen worden toegepast.

Ter illustratie van verschillen in binding in afhankelijkheid van de aard van de verbinding is toepassing echter zinvol. De invloed van anorganische grondbestanddelen is naar verwachting gering ten opzichte van de organische bestanddelen (lit. 93) en blijft buiten beschouwing.

Wanneer de gedifferentieerde vormen van (4.2) en (4.8) worden gecombineerd, dan geldt in het geval van ideale propstroming (geen dispersie) en afwezigheid van omzettingsreacties:

$$u \cdot \frac{\partial c_i}{\partial x} = - \frac{\partial c_i}{\partial t} \left(1 + \frac{\rho_b}{\Sigma_w} \cdot K_i \right) \quad (4.9)$$

De term $(1 + \frac{\rho_b}{\Sigma_w} \cdot K_i)$ is te beschouwen als een vertraging- of retentiefactor. Deze retentie kan ook tot uitdrukking gebracht worden in de relatieve retentietijd t_{ri} (zie ook fig. 4.17), waarvoor geldt:

$$t_{ri} = \frac{t_i}{t_{H_2O}} = (1 + \frac{\rho_b}{\Sigma_w} \cdot K_i) \quad (4.10)$$

Onder de vermelde restricties kan (4.9) gecombineerd worden met (4.6) waaruit volgt:

$$t_{ri} = 1 + 0,63 f_{oc} \cdot K_{owi} \cdot \frac{\rho_b}{\Sigma_w} \quad (4.11)$$

Een voorbeeld van toepassing hiervan voor een monitorputstelsel (zie fig. 2.12) in het infiltratiegebied van GW wordt nu beschreven. In het bewuste systeem zijn grondmonsters genomen in de eerste meter van de ondergrond bij geul 12 en vervolgens op 3, 36 en 52 m afstand van geul 12 steeds ter hoogte van het voorkomen van "aeroob" respectievelijk "anaeroob" water.

In de aldus verkregen grondmonsters is f_{oc} bepaald volgens de methode zoals beschreven in lit. 55. Tabel 4.23 geeft een overzicht van de verkregen resultaten. In het algemeen is het beeld in deze tabel overeenkomstig de verwachtingen, dat wil zeggen overwegende anaerobie gaat meestal samen met een hogere waarde van f_{oc} . Een uitzondering wordt gevormd door 337-5. Wellicht is dit te wijten aan de inhomogeniteit van de ondergrond. Deze inhomogeniteit wordt geïllustreerd door het feit, dat in de veenlaag ter hoogte van 336 op 5 m-MV een f_{oc} -waarde bepaald is van 0,40 en 30 cm dieper één van 0,033, terwijl in de veenlaag die ter hoogte van

"Aerob"*			"Anaerob"**		
locatie	diepte (m-MV)	10 ² f _{OC}	locatie	diepte (m-MV)	10 ² f _{OC}
337-6	5,50	0,07	337-5	8,00	0,09
335-6	4,50	0,11	335-5	7,50	0,53
334-6	4,55	0,18	334-5	7,85	0,36
gemiddelde		0,115	gemiddelde		1,08

* = overwegend onvolledige NO₃-reductie; ** = overwegend volledige NO₃-reductie; bij 337-5 en 335-5 SO₄-reductie (zomerseizoen), van 334-6 en 334-5 geen gegevens

Tabel 4.23 - Gehalten aan organische stof in grondmonsters bij geul 12 van GW in 1983

337 op 3,60 m-MV werd aangetroffen, de f_{OC} "slechts" 0,066 bedroeg. Uiteraard wordt de anaerobie op een bepaald punt niet alleen bepaald door de hoeveelheid ter plaatse aanwezige organische koolstof, maar ook door aanwezigheid van sulfiden, verblijftijd en temperatuur.

Voor een aantal voorkomende organische verbindingen is vervolgens de retentiefactor t_{ri} bepaald, alsmede de doorslagtijd en het doorslagfront. Tabel 4.24 geeft hiervan een overzicht.

Verontreinigingen	log K _{OW}	aerob (100 f _{OC} = 0,12)			anaerob (100 f _{OC} = 0,33)		
		t _{ri}	doorslag-tijd (j)	afstand front** m	t _{ri}	doorslag-tijd (j)	afstand front** m
chloroform	1,97	1,3	0,2	> 60*	1,8	0,3	> 60*
benzeen	2,13	1,4	0,2	> 60*	2,1	0,4	> 60*
tolueen	2,69	2,5	0,4	> 60*	5,1	0,9	> 60*
xyleen	3,15	5,3	0,9	> 60*	12,9	2,2	> 60*
dichloorbenzeen	3,38	8,3	1,4	> 60*	21,2	3,5	> 60*
trichloorbenzeen	4,00	31,2	5,3	> 60*	85,3	14,2	> 60*
tetrachloorbenzeen	4,40	76,9	13,1	> 60*	213	35,5	42
pentachloorbenzeen	5,17	449	139	11	1250	208	7,2
hexachloorbenzeen	5,50	957	297	5,1	2670	445	3,4
fluorantheen	4,53	103	31,9	47	286	47,6	32
3,4-benzofluorantheen	5,63	1294	400	3,8	3596	600	2,5
11,12-benzofluorantheen	5,70	1513	470	3,2	4216	700	2,1
3,4-benzopyreen	5,88	2316	720	2,1	6386	1060	1,4
1,12-benzopyryleen	6,40	7597	2355	0,6	21200	3530	0,4
indeno (1,2,3-c,d)pyreen	6,44	8326	2580	0,6	23250	3875	0,4

* = doorslag indien de ondergronds af te leggen afstand 60 meter bedraagt, hetgeen bij geul 12 het geval is. ** = berekend na 25 jaar infiltratie

Tabel 4.24 - Vertragsingsfactoren (t_{ri}), doorslagtijden (jaren na start infiltratie) en locatie van doorslagfronten voor een aantal organische verbindingen in relatie tot de aanwezige hoeveelheid organische koolstof (aerob weinig; anaerob veel).

Uit tabel 4.24 blijkt, met de genoemde beperkingen uiteraard, dat doorslag eerder op zal treden naarmate de $\log K_{ow}$ van een verbinding lager is. Onder "aerobe" omstandigheden treedt doorslag weer eerder op dan onder "anaerobe" condities, doordat het organisch stofgehalte van het "aerobe" pakket lager is dan dat van het "anaerobe". Volgens tabel 4.24 zou medio 1984 doorslag van een aantal verbindingen met $\log K_{ow}$ tot circa 4,4 kunnen plaatsvinden ("aerobe" pakket).

Een verbinding als dichloorbenzeen zou reeds 25 jaar geleden onder "aerobe" condities kunnen zijn doorgeslagen. Deze verbinding is inderdaad na duininfiltratie vanaf 1976 in sporen aangetroffen ($<0,01-0,1 \mu\text{g l}^{-1}$). Ten opzichte van de invoerconcentraties ($<0,1-0,7 \mu\text{g l}^{-1}$) zijn de gehalten na duininfiltratie echter zeer laag, zodat de doorslag minimaal genoemd kan worden. Wellicht vormt dit een aanwijzing, dat andere factoren zoals bijvoorbeeld omzetting in deze gehalteredaling een rol spelen. Een andere mogelijkheid is nog die van atmosferische introductie; de opzet van het verrichte onderzoek sluit dit niet uit (bemonstering Oranjekom). Medio 1984 werd dichloorbenzeen echter ook in zeer lage gehalten in het water direct na duininfiltratie (U-bak) aangetroffen, zodat doorslag waarschijnlijk is.

Een ander voorbeeld van een verbinding, die zou kunnen doorslaan, is xyleen. Inderdaad blijkt bij het bodempassage onderzoek van GW, dat na 7 weken in het "aerobe" pakket nog duidelijk xyleen wordt aangetroffen (zie tabel 4.9). Het gehalte is ten opzichte van de aanvoer echter behoorlijk gedaald, zodat hier eveneens een aanwijzing voor omzetting

gevonden kan worden. Onder sulfaatreducerende condities verloopt de omzetting van xylenen kennelijk veel slechter, aangezien deze groep hier volledig doorslaat.

De in tabel 4.24 gegeven retentie van CHCl_3 komt goed overeen met de bepaalde waarde aan de hand van metingen in het infiltratiegebied te Wijk aan Zee (zie tabel 4.25).

Verblijftijd (dagen)	CHCl_3 $\log K_{\text{ow}} = 1.97$	CHBrCl_2 $\log K_{\text{ow}} = 2.44$
7	1,2	1,5
21	1,3	1,7

Tabel 4.25 - Retentie van THM als functie van de ondergrondse verblijftijd bij duininfiltratie te Wijk aan Zee

Uit deze tabel komt naar voren, dat een kleinere retentie gepaard gaat met een lagere waarde van $\log K_{\text{ow}}$. Het verschil in $\log K_{\text{ow}}$ van de diverse THM's ($\text{CHBr}_2\text{Cl} = 2,63$; $\text{CHBr}_3 = 2,82$; zie voorts tabel 4.25) is dan ook in principe één van de oorzaken, waardoor het aandeel van de verbindingen met een lagere $\log K_{\text{ow}}$ in het totaal tijdens bodempassage geleidelijk groter wordt (zie tabel 4.26). Verschillen in omzettingssnelheid spelen hierbij overigens ook een rol (zie par. 4.4.6.4.2).

Verblijftijd (dagen)	CHCl_3 %	CHCl_2Br %	CHClBr_2 %	CHBr_3 %
0	19-31	26-33	29-41	7-14
8	37-48	37	14-24	1-2
24	54-69	26-33	5-12	1

Tabel 4.26 - Het relatieve aandeel van diverse THM's in het totaal aantal molen THM als functie van de ondergrondse verblijftijd te Wijk aan Zee (1980; 1981)

Locatie	Reistijd (dagen)	CHCl ₃ (%) ₃	CHBrCl ₂ (%) ₂	CHBr ₂ Cl (%) ₁	CHBr ₃ (%) ₃
Wijk aan Zee (april-juni 1981)	8	-2; 3	25;30	69;70	95;92
	24	2;-9	64;51	92;89	100;96
Scheveningen (jan.-dec. 1981)	5	-18	50	>90	-
	8;22	-43	44	>90	-
	45;54	39	65	>90	-
Zandvoort (april-juni 1981)	7	60	92	95	97
	21	50	98	97	97
	49	75	98	99	100

Tabel 4.27 - De concentratieverlaging van THM in procenten ten opzichte van het infiltratiewater als functie van de ondergrondse verblijftijd. Negatieve waarden duiden op een toename

Tabel 4.27 geeft een samenvatting van de relatieve concentratieverlaging van diverse THM's als functie van de ondergrondse verblijftijd in drie infiltratiegebieden. De algemene tendens is, dat de concentratieverlaging beter verloopt naarmate het THM-molecuul meer broom bevat. Zoals gezegd spelen hierin naast verschillen in adsorptie ook verschillen in omzettingssnelheid mee.

De mate van concentratieverlaging is tevens afhankelijk van de locatie. In het algemeen is de concentratieverlaging bij Zandvoort het grootst. Opvallend is, dat in de resultaten te Scheveningen bij 45-54 dagen verblijftijd een aanzienlijke concentratieverlaging van THM optreedt ten opzichte van de kortere verblijftijden. Mogelijk is dit een aanwijzing voor een grote invloed van een andere bodemsamenstelling ter plaatse op CHCl₃. Het verschil in concentratieverlaging tussen de 3 infiltratiegebieden (tabel 4.27) wijst eveneens in deze richting. Uit tabel 4.13 bleek ook reeds, dat CHCl₃ onder sulfaatreducerende condities bij GW aanzien-

lijk sterker in concentratie wordt verlaagd (97 %) dan onder "aerobe" omstandigheden (50 %) bij 3 weken verblijftijd.

In dit verband zij ook nog eens verwezen naar de bespreking van de groep EOH in par. 4.3.10. Daar bleek, dat de EOH-verlaging te Scheveningen beduidend lager uitviel dan elders. Het is niet uit te sluiten, dat ook hier een andere grondsamenstelling (type organische stof, organisch stofgehalte) resulteert in een lagere sorptiecapaciteit en daardoor een eerder optredende doorslag. Daarbij kan de grondsamenstelling eveneens de omzetting van stoffen beïnvloeden, doordat het redoxniveau in sterke mate bepaald wordt door de in het pakket aanwezige organische stof (zie par. 4.4.6.4.2).

4.4.6.3 Belading van de grond

Met gebruikmaking van de beschreven theorie en inachtneming van de genoemde beperkingen kan eveneens de belading van de grond onder evenwichtscondities berekend worden. Substitutie van (4.3) en (4.4) in (4.2) levert:

$$S_i = 0,63 \cdot f_{oc} \cdot K_{owi} \cdot C_i \quad (4.12)$$

In grondmonsters genoemd in tabel 4.23, alsmede in een aantal monsters uit de eerste meter van de grond direct onder geul 12, werden de gehalten van een aantal organische stoffen bepaald (lit. 56). De resultaten zijn weergegeven in tabel 4.2.8. Naar aanleiding hiervan kunnen de volgende opmerkingen gemaakt worden.

(a) De belading met 1,4-dichloorbenzeen neemt met de afstand in de grond snel af, zowel in het "aerobe" als in het "anaerobe" deel. De gevonden ni-

$\mu\text{g kg}^{-1}$	Gemeten belading in bodempakket					Berekende belading bij adsorptie-evenwicht ($f_{oc}=0,006$)	Gemeten belading gemiddeld over aerobe en anaerobe stroomlijn			Berekende belading bij adsorptie-evenwicht		
	20	40	60	80	100		0-100	-	-	-	ae-roob	anae-roob
an onder geul	20	40	60	80	100	0-100	-	-	-	-	-	-
m vanaf geul	-	-	-	-	-	-	3	36	52	-	-	0-60
Chlooraromaten												
1,4 DCB ^a	4,4	6,2	0,7	1,5	1,0	2,7	<0,2	<0,2	<0,2	0,53	1,49	
1,2,4 TriCB ^b	-	-	-	-	-	0,38	0,15	0,10	0,15	0,07	0,21	
1,3,5 TriCB ^c	-	0,3	0,1	1,2	0,4	0,38	<0,03	<0,03	<0,03	0,07	0,21	
TeCB ^d	0,1	0,4	0,6	0,2	0,3	0,94	0,04	0,04	0,04**	0,18	0,52	
QCB ^e	1,0	1,2	0,7	1,0	1,2	0,56	0,1	0,25*	0,03*	0,11	0,31	
HCB ^f	0,6	0,9	0,2	0,3	1,2	1,2	0,08	0,02*	0,02*	0,24	0,66	
Polycyclische aromaten												
3,4 BFlu ^g	32	-	26	24	15	1,6	2,0**	4,5*	1,25*	0,33	0,88	
Flu ^h	30	-	37	24	34	1,3	<0,001**	<0,001 ^x	<0,001*	0,26	0,72	
11,12 BFlu ⁱ	10	-	6	7	4	1,9	<0,005**	<0,005	<0,005*	0,38	1,11	
3,4 BPy ^k	14	-	8	9	6	2,9	<0,005*	<0,005	<0,005*	0,58	1,6	
11,12 BPe ^m	21	-	5*	2,2*	1,3*	9,5	<0,01*	<0,01	<0,01*	1,9	5,2	
IndenoPy ⁿ	31	-	2,6*	2,4*	1,3*	10,4	<0,006*	<0,006	<0,006*	2,1	5,7	

* = geen evenwicht volgens berekening tabel 4.24; ** = als *, echter in aerobe deel wél evenwicht;
x = in anaerobe deel 0,8 $\mu\text{g kg}^{-1}$.

- | | | |
|--|---------------------------|-----------------------------|
| a = 1,4 Dichloorbenzeen | e = Pentachloorbenzeen | i = 11,12 Benzofluorantheen |
| b = 1,2,4 Trichloorbenzeen | f = Hexachloorbenzeen | k = 3,4 Benzopyreen |
| c = 1,3,5 Trichloorbenzeen | g = 3,4 Benzo luorantheen | m = 1,12 Benzoperyleen |
| d = Tetrachloorbenzeen
(1,2,3,4 en 1,2,3,5) | h = Fluorantheen | n = Indeno(1,2,3,c,d)pyreen |

Tabel 4.28 - Overzicht van gemeten belading en berekende evenwichtsbelading van de grond bij geul 12 van GW met diverse organische microverontreinigingen als functie van de afgelegde afstand van infiltratiewater ondergronds (1982-1983).

veau's bewegen zich steeds onder de berekende evenwichtsbeladingen. Nader onderzoek omtrent de toepasbaarheid van het gehanteerde adsorptiemodel zal mede moeten uitwijzen of dit verschijnsel inderdaad wijst op omzetting. In de literatuur is er op gewezen (lit. 85, 86), dat organische stoffen soms uitermate moeilijk zijn vrij te maken van humushoudende grond. De gebruikelijke bepalingmethoden zouden aldus tot te lage waarden voor de bodembelading kunnen leiden. Dit aspect zal eveneens nader onderzocht moeten worden. Een andere verklaring voor het verschil tussen gevonden en berekende waarden zou nog kunnen zijn, dat de voor de berekening gehanteerde C_i -waarden te hoog zijn. Daartegen pleit, dat in een aantal gevallen met name in de bovenlaag van het watervoerend pakket een goede overeenkomst tussen berekende en gemeten waarden is gevonden.

(b) Een soortgelijk beeld als 1,4-dichloorbenzeen vertoont 1,3,5-trichloorbenzeen.

(c) Een zeer afwijkend patroon geeft 1,2,4-trichloorbenzeen te zien. In de eerste meter van het pakket kon deze verbinding niet aangetoond worden. Verder in het aerobe deel van het pakket bewegen de gehalten zich echter boven de berekende evenwichtsniveaus. Wellicht is het patroon ervan te verklaren door aan te nemen, dat de invoerconcentratie C_i van 1,2,4-trichloorbenzeen in het verleden veel hoger is geweest dan in de berekening op grond van relatief recent materiaal (1974-1982) werd gehanteerd.

Dat zou kunnen betekenen, dat de verbinding desorbeert zonder echter direct na bodempassage aangetroffen te zijn (onder "aerobe" omstandigheden zou doorslag te verwachten zijn).

(d) Tetrachloorbenzeen (1,2,3,4 en 1,2,3,5) geeft een zelfde beeld als 1,4-dichloorbenzeen en 1,3,5-trichloorbenzeen.

(e) Voor pentachloorbenzeen blijken de beladingen in de eerste meter van het pakket weer hoger te zijn dan het berekende evenwichtsniveau. Ook de gehalten in het pakket op grotere afstand suggereren een grotere mate van doorslag dan op grond van de berekende retentie werd verwacht (maximale penetratie "aeroob" = 11 m; "anaeroob" = 7,2 m). Wellicht vormt dit verschijnsel net als bij 1,2,4-trichloorbenzeen een aanwijzing voor hogere C_i -waarden in het verleden. Verlaging van C_i in recentere tijd leidt dan tot desorptie en een grotere penetratie dan verwacht. Een andere verklaring voor dit verschijnsel kan zijn, dat het adsorptiemodel geen rekening houdt met de invloed van oppervlakte-actieve stoffen. Bij aanwezigheid hiervan kan de lipofiliëteit van organische verbindingen in sterke mate verminderd worden, waardoor de penetratie in het watervoerend pakket kan toenemen. Dit is bijvoorbeeld geconstateerd bij PCA's, waarvan de oplosbaarheid in water toeneemt bij aanwezigheid van melk- en boterzuur (lit. 95). De gegevens van de bodempassage bij Zandvoort wijzen wat fluorantheen betreft niet en wat fenanthreen/antraceen betreft wèl op dit fenomeen (zie tabel 4.9). Er zijn tevens aanwijzingen voor het optreden van een dergelijk proces in de Oranjekom (zie par. 4.3.8, 4.4.4 en fig. 4.6).

Ook in de grond aanwezig humusmateriaal zou aan een dergelijke mobilisatie kunnen bijdragen. De oplosbaarheid van DDT in water blijkt in aanwezigheid van 0,5 % Natriumhumaat een factor 20 hoger (lit. 54 en 60). Bij het bodempassageonderzoek bij

Zandvoort zijn na een afstand van 36 m voor tetra-, penta- en hexachloorbenzeen gehalten in water aangetroffen van gemiddeld 4, 3 en 1 ng l⁻¹.

Onder de heersende omstandigheden (aeroob) zou volgens tabel 4.24 volledige doorslag van tetrachloorbenzeen te verwachten zijn. Voor penta- en hexachloorbenzeen zou de penetratie in het watervoerend pakket echter pas 11 respectievelijk 5,1 m gevorderd zijn. Een en ander illustreert de noodzaak om het adsorptiemodel nader te toetsen ten aanzien van de praktische bruikbaarheid.

(f) De beladingen van hexachloorbenzeen bewegen zich in het evenwichtstraject onder of op het te verwachten evenwichtsniveau. De beladingen dalen hierna zeer snel tot een laag niveau. Een zelfde gedrag is bij de DWL geconstateerd (zie fig. 4.16).

(g) De belading van fluorantheen beweegt zich in de eerste meter van het pakket ver boven het te verwachten niveau. Ter sprake kwam reeds (lit. 37 en 38), dat PCA's een veel voorkomend organisch bestanddeel van regenwater zijn. Mogelijk valt het beeld in tabel 4.28 dus te verklaren met atmosferische depositie. Ook in het water na duininfiltratie werd bij GW een opvallende verhoging van PCA's geconstateerd (fig. 4.6). De verhoogde beladingen in de eerste meter van het pakket worden ook waargenomen bij de andere PCA's.

(h) Verder in het pakket zijn de gehalten steeds lager dan de detectiegrens (tabel 4.28). Een uitzondering hierop wordt gevormd door 3,4-benzofluorantheen, waarvan met name in het "anaerobe" deel en in mindere mate in het "aerobe" pakket op grotere afstanden dan berekend relatief hoge niveau's werden aangetroffen. Mogelijk heeft ook dit verschijnsel te maken met hogere C₁-waarden in het verleden. Opvallend is evenwel, dat een dergelijk effect ver

der alleen bij fluorantheen en dan nog veel minder geprononceerd is gevonden (belading $0,8 \mu\text{g kg}^{-1}$ na 36 m in het anaerobe deel).

Van het infiltratiegebied te Scheveningen zijn gegevens bekend betreffende cholinesteraseremmers in de grond (zie tabel 4.29). Tegen de achtergrond van een duidelijke concentratieverlaging in water bij bodempassage (zie par. 4.3.12) zijn de gehalten zeer laag. Dit vormt een aanwijzing, dat ook deze verbindingen mogelijk worden omgezet.

4.4.6.4 Microbiologische processen

De gehalten aan organische stoffen kunnen door micro-organismen (m.o.) op verschillende wijzen beïnvloed worden, namelijk door bioaccumulatie (par. 4.4.6.4.1) en omzetting (par. 4.4.6.4.2).

4.4.6.4.1 Bioaccumulatie

Opslag van organische stoffen oftewel bioaccumulatie is volgens Kobayashi (lit. 57) veelvuldig geconstateerd, speciaal voor lipofiele stoffen zoals de organochloorbestrijdingsmiddelen, PCA's en cholinesteraseremmers (lit. 58). Schimmels, actinomyceten, bacteriën en algen blijken allen in dit opzicht actief te kunnen zijn. Zelfs minder lipofiel materiaal als aromaten en nitrobenzeen blijkt door algen goed opgeslagen te kunnen worden. Bioaccumulatie is aan dezelfde principes onderworpen als de reeds besproken adsorptie. Dit betekent, dat de neiging tot bioaccumulatie toeneemt met een grotere waarde van de octanol-waterconstante.

Een voorbeeld van deze bioaccumulatie is gevonden in infiltratiepannen van de DWL en betreft de opslag van cholinesteraseremmende stoffen in algen (zie tabel 4.29). Ter vergelijking zijn in de tabel

infiltratiemiddel	in alg op slib	in bodemslib	zandpakket (cm tot bodemslib)						
			5	10	15	50	200	500	1000
Pan 8.1	15	10	5	5	10	1	1	1	1
Pan 8.2	62,5	5	5	5	10	1	1	1	1

Tabel 4.29 - Gehalten van cholinesteraseremmers in algen, slib en duinzand in het infiltratiegebied te Scheveningen Vóór bemonstering in 1974 hebben de pannen enige tijd droog gelegen, pan 8.1 langer dan pan 8.2

ook de gehalten van cholinesteraseremmers in het op de bodem van de pan aanwezige slib vermeld. De accumulatie in alg in pan 8.2 is zeer duidelijk. In pan 8.1 is geen duidelijke accumulatie in alg waargenomen. Ongetwijfeld speelt het droog liggen (langer dan pan 8.2) hierin een rol.

4.4.6.4.2 Omzetting

Algemeen

Een groot aantal organische stoffen is onder de condities van het natuurlijk milieu niet stabiel. Dat deze verbindingen veelal toch niet merkbaar ontleden, wordt veroorzaakt door de hoge activeringsenergie. Hierdoor resulteert een zeer lage ontledingssnelheid. Een andere situatie ontstaat wanneer deze activeringsenergie verlaagd kan worden door middel van een katalysator. Veel reacties verlopen dan toch met een redelijke snelheid. In het natuurlijk milieu zijn het vooral de micro-organismen, die door middel van biokatalysatoren (enzymen) deze reacties laten verlopen. Van de mogelijke omzettingen van organische stoffen, die hierna nog verder in detail zullen worden besproken, maken

oxydatie- en reductiereacties een zeer belangrijk deel uit.

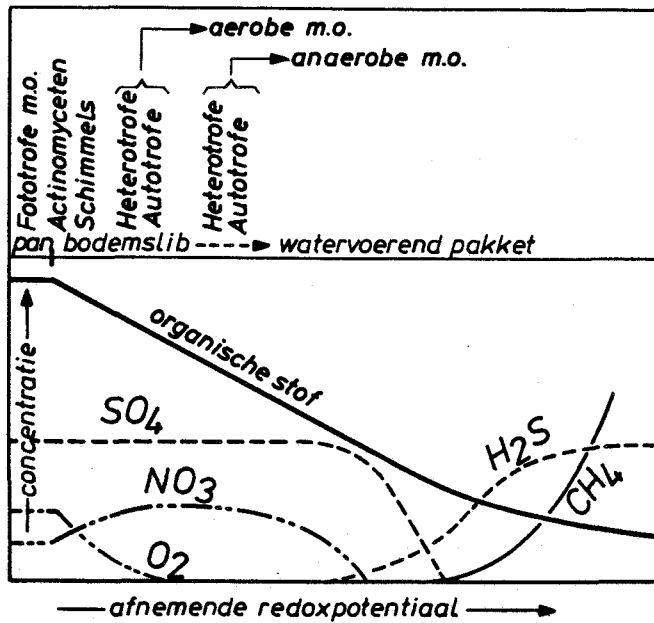
Tabel 4.30 geeft een overzicht van een aantal belangrijke via m.o. verlopende oxidatie en reductiereacties, waarmee men bij bodempassage te maken heeft.

<i>Oxidatie</i>	<i>Combinatie</i>	<i>Reductie</i>
$\text{CH}_2\text{O} + \frac{1}{4}\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \frac{1}{4}\text{CO}_2 + \text{H}^+ + \text{e}$	<i>Aerobe ademhaling</i>	$\frac{1}{4}\text{O}_2 + \text{H}^+ + \text{e} \rightleftharpoons \frac{1}{2}\text{H}_2\text{O}$
	<i>Denitrificatie</i>	$\frac{1}{5}\text{NO}_3^- + \frac{6}{5}\text{H}^+ + \text{e} \rightleftharpoons \frac{1}{10}\text{N}_2 + \frac{3}{5}\text{H}_2\text{O}$
	<i>Nitraat-reductie</i>	$\frac{1}{8}\text{NO}_3^- + \frac{5}{4}\text{H}^+ + \text{e} \rightleftharpoons \frac{1}{8}\text{NH}_4^+ + \frac{3}{8}\text{H}_2\text{O}$
$\frac{1}{2}\text{CH}_2\text{O} + \frac{1}{2}\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \frac{1}{2}\text{HCOO}^- + \frac{3}{2}\text{H}^+ + \text{e}$	<i>Vergisting</i>	$\frac{1}{2}\text{CH}_2\text{O} + \text{H}^+ + \text{e} \rightleftharpoons \frac{1}{2}\text{CH}_3\text{OH}$
$\text{CH}_2\text{O} + \frac{1}{4}\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \frac{1}{4}\text{CO}_2 + \text{H}^+ + \text{e}$	<i>Sulfaat-reductie</i>	$\frac{1}{8}\text{SO}_4^{2-} + \frac{9}{8}\text{H}^+ + \text{e} \rightleftharpoons \frac{1}{8}\text{HS}^- + \frac{1}{2}\text{H}_2\text{O}$
$\text{CH}_2\text{O} + \frac{1}{4}\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \frac{1}{4}\text{CO}_2 + \text{H}^+ + \text{e}$	<i>Methaan-vergisting</i>	$\frac{1}{8}\text{CO}_2 + \text{H}^+ + \text{e} \rightleftharpoons \frac{1}{8}\text{CH}_4 + \frac{1}{4}\text{H}_2\text{O}$

Tabel 4.30 - Overzicht van enige belangrijke redoxreacties bij bodempassage, waarbij organische stoffen en m.o. betrokken zijn (lit. 59). N.B.: de gebruikte formule voor organische stof is niet specifiek bedoeld

Uit deze tabel blijkt, dat de oxidatie van organische stoffen door verschillende elektronenacceptoren kan geschieden. Een en ander wordt bepaald door de heersende fysisch-chemische condities, die op hun beurt bepaald worden door het verloop van de verschillende redoxreacties. Hierdoor ontstaat een bepaalde volgorde in redoxreacties die in fig. 4.18 wordt weergegeven. Uiteraard schetst deze figuur een sterk vereenvoudigd beeld. Afwijkingen zijn te verwachten door de lokale aanwezigheid van organische stoffen in de grond.

Aanvankelijk treedt O_2 op als elektronenacceptor bij de oxidatie van organische stof. Nadat O_2 is verbruikt, gaat NO_3 fungeren als elektronenacceptor, op zijn beurt gevolgd door SO_4 . Onder streng anaerobe omstandigheden kan tevens CH_4 gevormd worden.



Figuur 4.18 - Globaal verloop op macroschaal in het gehalte van enige stoffen in relatie tot de fysisch-chemische condities bij duininfiltratie. Globale relatie (op macroschaal) met het voorkomen van enige belangrijke groepen microörganismen (m.o.; lit 63)

De aldus optredende variatie in fysisch-chemische omstandigheden verschaft ontwikkelingsmogelijkheden voor verschillende groepen microörganismen, zoals in de figuur is aangegeven. Hierdoor zijn verschillende omzettingswegen voor organische stoffen aanwezig, welke hierna zullen worden besproken.

Overzicht van mogelijkheden

De betekenis van het fysisch-chemisch milieu voor de afbraak van organische stoffen wordt geïllustreerd door enige literatuurgegevens, welke zijn samengevat in tabel 4.31. Voor verdere informatie wordt verwezen naar lit. 53 en 70 t/m 84.

Organische verbinding verbinding	Fysisch-chemisch milieu		
	Aeroob	Nitraat- reductie	Methano- geen
Trichlooretheen	-	-	+
Tetrachlooretheen	-	-	+
Hexachloorbutadieen	-	-	
1,1,1 trichloorethaan	-	-	+
Hexachloorethaan	-		+
Chloorbenzeen	+	-	-
1,4;1,2 Dichloorbenzeen b	+	-	-
Xyleen	+	+	
Ethylbenzeen	+	-	
Styreen	+		
Naftaleen	+	-	
Tetrachloormethaan		+	+ a
Broomdichloormethaan		+	+
Dibroomchloormethaan		+	+
Bromoform		+	+
C ₁ en C ₂ gesubstitueerd gechloreerde aromaten			+
Chloroform	-	-	+
1,2 dibroomethaan		-	
1,2,4 Trichloorbenzeen	+	-	-
1,2 Dichloorethaan			-
Tetrachloorethaan			+
1,2 Dibroomethaan		-	+

a = omzetting in CHCl₃; b = omzetting 1,3 dichloorbenzeen is aeroob mogelijk, maar komt zeer traag op gang.

Tabel 4.31 - Overzicht van omzettingen van enige organische stoffen door micro-organismen (lit. 63, 64, 65, 66). + = omzetting; - = geen omzetting

De gegevens in tabel 4.31 tonen aan, dat de selectie die het milieu uitoefent op de ontwikkeling van diverse groepen microorganismen grote invloed heeft op de omzettingmogelijkheden van organische stoffen. Met de globale indicaties betreffende het voorkomen van microorganismen in fig. 4.18 in gedachten, is het daarom van belang na te gaan welke omzettingmogelijkheden deze microorganismen hebben (lit. 57, 67). In de navolgende beschouwing over omzetting door groepen microorganismen geldt, dat er op het globale beeld veel uitzonderingen zijn voor specifieke verbindingen.

Fotoautotrofe microorganismen

Deze groep, waaronder algen, cyanofyten en fototrofe bacteriën vallen, is in het algemeen niet in staat tot complete omzetting (mineralisatie) van milieuvreemde stoffen. Voor een aantal stoffen zoals bijvoorbeeld naftaleen geldt, dat de omzetting minstens zo goed gebeurt als door autotrofe en heterotrofe bacteriën. Een belangrijke eigenschap van deze groep microorganismen is bioaccumulatie van onder andere aromaten, gechloreerde aromaten, nitroaromaten, PCA's en organochloorpesticiden. Het is waarschijnlijk, dat de opgeslagen stoffen ook in zekere mate omgezet worden. Van de fototrofe bacteriën is ten aanzien van de omzetting van xenobiotische (milieuvreemde) stoffen nog niet veel bekend. "Natuurlijke" stoffen zoals koolhydraten, vluchtige vetzuren, benzoaten en trihydroxybenzeen worden goed afgebroken.

Actinomyceten

Van deze groep microorganismen is bekend, dat een grote variëteit aan organische stoffen kan worden afgebroken, waarbij genoemd kunnen worden: fenolen, pyridines, glycerides, steroïden, gechloreerde en niet-gechloreerde aromaten, alifatische koolstofketens en ligninecellulose. Meestal is de omzetting niet volledig en worden metabolieten geproduceerd, die eventueel door andere groepen microorganismen kunnen worden omgezet. Omzetting van stikstofhoudende verbindingen (aminozuren) is beperkt.

Schimmels

Sommige schimmels kunnen in tegenstelling tot bacteriën zeer goed vertakte koolwaterstoffen met een grote ketenlengte of een complexe structuur omzetten. Een voorbeeld is de volledige omzetting van

DDT. In het algemeen leidt de omzetting door schimmels tot metabolieten die door andere microorganismen verder kunnen worden omgezet.

Aerobe en facultatief anaerobe bacteriën

(a) De chemo-autotrofe bacteriën in deze groep gebruiken hoofdzakelijk CO_2 als koolstofbron en zetten dus hoegenaamd geen organische stoffen om. Zij zijn echter wel van belang vanwege de vorming van organische stoffen, hoofdzakelijk in de vorm van eiwitten, vetten en koolhydraten. Voor hun energiewinning gebruiken zij O_2 als elektronenacceptor en NH_4^+ en NO_2^- als elektronendonor.

(b) De heterotrofe bacteriën kunnen een groot assortiment aan stoffen omzetten, waaronder "natuurlijke" stoffen zoals cellulose, suikers, organische zuren, eiwitten, koolwaterstoffen en heterocyclische verbindingen, maar ook milieuvreemde verbindingen zoals chlooraromaten. De omzetting van natuurlijke stoffen verloopt onder aerobe omstandigheden veelal snel tot (vooral) CO_2 en H_2O . Voor milieuvreemde stoffen is dat in veel mindere mate het geval.

Anaerobe en facultatief anaerobe bacteriën

(1) In deze categorie komen autotrofe bacteriën voor, die voor hun energiewinning zijn aangewezen op NO_3^- als elektronenacceptor en waterstof of S^{2-} als elektronendonor.

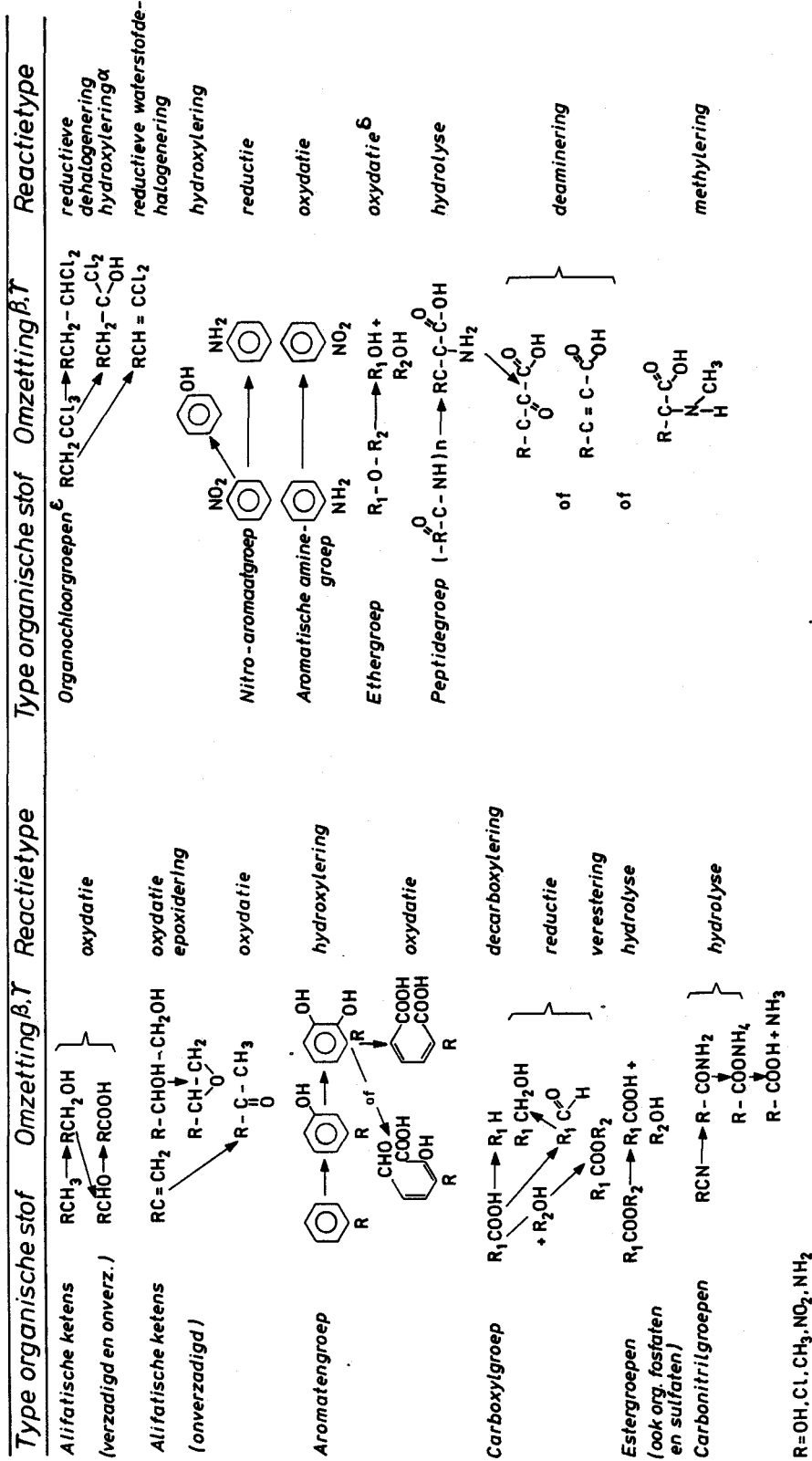
(2) Heterotrofe bacteriën zijn vooral van belang vanwege de vergistingen, waarbij H_2 , organische zuren (bijvoorbeeld azijnzuur, boterzuur, propionzuur), ketonen (aceton), alcoholen (ethanol) en aldehyden kunnen worden gevormd. Deze producten kunnen weer verder worden omgezet door andere bacteriën. Indien er een externe waterstofacceptor

aanwezig is, kunnen sommige organismen tevens nitraatreductie, sulfaatreductie en de vorming van CH_4 bewerkstelligen. Verschillende omzettingen zoals van organochloorverbindingen, nitrosamines, epoxidegroepen, aromatische nitrogroepen (nitrofenol naar aminofenol) en aromaten zijn bekend. Hierbij ontstaan metabolieten, die verder worden omgezet en/of afgebroken.

Samenvattend kan ten aanzien van de omzettingmogelijkheden van organische stoffen door microorganismen het in fig. 4.19 gepresenteerde, globale schema gehanteerd worden. Dit schema pretendeert niet volledig te zijn. Voor meer informatie zij verwezen naar lit. 68 en 93.

Biotische versus xenobiotische stoffen

Zoals hiervoor werd opgemerkt verloopt de aerobe omzetting van biotische stoffen in het algemeen sneller en vollediger dan van xenobiotische stoffen. Toch zullen van beide categorieën in de praktijk metabolieten te vinden zijn. In het voorgaande zijn enige indicaties gegeven over het type product, dat gevormd kan worden. In deze sectie zal dit aspect op basis van literatuurgegevens verder toegelicht worden. Het biotische organische materiaal is afkomstig van planten, dieren en mensen. Veelal zal dit materiaal, dat oorspronkelijk in de vorm van cellulose, lignine, chitine, eiwitten, vetten en dergelijke aanwezig was in meer of mindere mate zijn omgezet. In tabel 4.32 is weergegeven welke stoffen men dan kan verwachten (lit. 59). Verdere informatie omtrent afbraakproducten van natuurlijk organisch materiaal geeft lit. 88. Onvolledige afbraak kan optreden als een gevormd metaboliet slecht afbreekbaar is. Dit is nogal eens



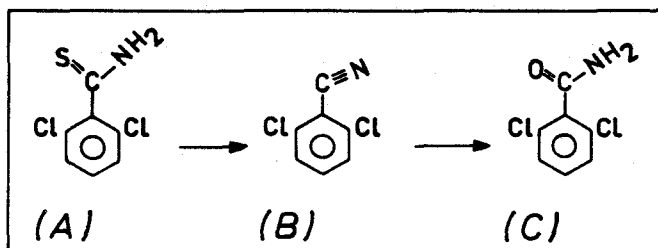
Figuur 4.19 - Schema van belangrijkste omzettingen van organische stoffen door microorganismen (gedeeltelijk naar lit. 93). Mineralisatieproducten als CO₂, N₂, NH₄, H₂O etc. zijn niet vermeld

α = Waarschijnlijk ook mogelijk met SH in plaats van OH onder anaerobe omstandigheden; vorming van mercaptanen (R-SH), sulfiden. Aerobe vorming van disulfiden uit mercaptanen (lit. 69); β = Verschillende van de gevormde producten kunnen onderling reacties aangaan. Voorbeelden zijn de reacties van fenolen, catecholen en aminogroepen tot melanine etc. en de reacties van afbraakproducten van koolhydraten en aminogroepen tot humus, fulvinezuren en dergelijke; γ = De in de tabel bij een bepaald omzettingstype vermeldde verdere omzettingen suggereren geen volledigheid. Uiteraard kan bijvoorbeeld een aminozuur (omzettingstype van peptide) verder omgezet worden volgens de bij de carboxylgroep aangegeven routes; δ = zelfde type reactie ook bij sulfiden (R₁-S-R₂); ϵ = ook mogelijk met aromatisch gesubstitueerd chloor.

Oorspronkelijk	Tussenprodukten	In praktijk aangetroffen organische stoffen
Proteïnen	→ RCOOH RCH ₂ OHCOOH RCH ₂ OH RCH ₃ RCH ₂ NH ₂	Peptiden, aminozuren, ureum, fenolen, indol, vetzuren, mercaptanen, fosfaten
nucleotiden	→ purine en pyrimidine basen	
Vetten	→ Glycerol RCH ₂ OH RCOOH RCH ₃ RH	CH ₄ , diverse alifatische zuren, azijn-, melk-, citroen-, maleïne-, palmitine-, stearine- en oleïnezuur, koolhydraten, kool- water- stoffen
Koolhydraten	→ hexosen pentosen glucosamine aromatische alcoholen	glucose, fructose, galactose arabinose, ribose, xylose
Pigmenten Porphyrine	→ koolwaterstoffen	pristane carotenoïden

Tabel 4.32 - Omzettingsprodukten van natuurlijke stoffen (lit. 59). Reacties van tussenprodukten onderling kunnen onder speciale omstandigheden tot vorming van humus, fulvine, melanine structuren leiden.

Bij wijziging van de omstandigheden (bijvoorbeeld door O₂ toevoer) worden deze complexe organische structuren wederom versneld afgebroken onder afgifte van organische zuren, fenolachtigen, terpeenachtigen, cyclische stikstofverbindingen en dergelijke



Figuur 4.20 - Omzettingen van 2,6-dichloorthiobenzamide

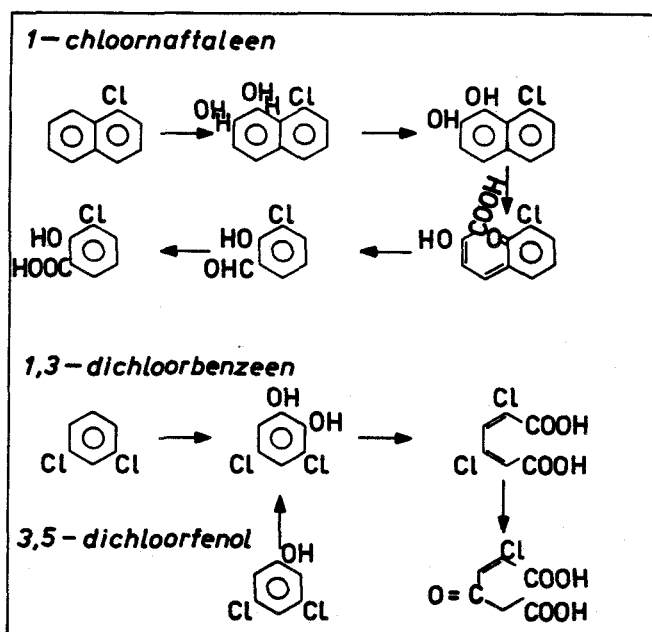
het geval bij milieuvreemde stoffen. Een voorbeeld hiervan is de omzetting van het herbicide 2,6-dichloorthiobenzamide (zie fig. 4.20).

Het herbicide (A) zet zeer snel om in 2,6-dichloorbenzonitril (B), dat op zijn beurt hydrolyseert tot 2,6-dichloorbenzamide (C). Deze laatste verbinding is zeer persistent (lit. 86).

Er zijn aanwijzingen, dat de metabolieten van meta-gesubstitueerde chlooraromaten de meest toxische afbraakprodukten voor de betrokken bacteriën zijn en daardoor de verdere omzetting danig kunnen vertragen (lit. 70). Een belangrijk aspect van de omzetting van organische stoffen en uiteraard vooral van de onvolledige of trage omzetting is, dat de ontledingsprodukten veelal geheel andere fysisch-chemische eigenschappen hebben dan de oorspronkelijke stof. Dit wordt geïllustreerd door de voorbeelden in fig. 4.21.

Uit deze figuur blijkt duidelijk, dat de omzetting leidt tot produkten die aanzienlijk meer polair zijn dan de oorspronkelijk verbinding. Voor de gebruikelijke analytisch-chemische procedures (extractie en XAD-adsorptie bij pH 7) heeft dit tot gevolg, dat de kans op isolatie van de verbinding aanzienlijk afneemt.

Daarnaast betekent de toegenomen polariteit, dat de mobiliteit in het watervoerend pakket toeneemt, waardoor de kans op doorslag vergroot wordt. Zonder inzicht in het verwijderingsmechanisme dient men dus zeer terughoudend te zijn ten aanzien van conclusies over het "verdwijnen" van stoffen bij bodempassage. Het is namelijk niet uitgesloten, dat een "verwijderde" verbinding in een andere, met de gebruikelijke analytisch chemische methoden "onzichtbare" vorm is omgezet, die bovendien aanzienlijk mobieler zal zijn. Zo is bijvoorbeeld in het



Figuur 4.21 - Afbraakprodukten van 1-chloornaftaleen, 1,3-dichloorbenzeen en 3,5-dichloorfenol (naar lit. 70, 5 en 82)

infiltratiegebied van GW geconstateerd, dat cholinesteraseremmers (als parathion) grotendeels worden omgezet bij bodempassage. Bij de ontleding ontstaat trimethylthiofosfaat, dat na enkele weken bodempassage inderdaad werd gedetecteerd, zonder in hetzelfde waterpakket vóór infiltratie aanwezig te zijn geweest. Bij de ontleding ontstaat echter tevens nitrofenol, dat met de toegepaste isolatie (XAD-adsorptie pH 7) evenwel "onzichtbaar" bleef (lit. 5, 90).

Kinetiek van omzetting door microorganismen

In de praktijk van duininfiltratie heeft men in het algemeen te maken met lage tot zeer lage invoerconcentraties van de verschillende organische stoffen ($0,01-1 \mu\text{g l}^{-1}$). De theorie van de kinetiek van enzymgekatalyzeerde reacties stelt, dat voor het on-

derhoud van een bacteriecultuur een minimale substraatconcentratie (S_{\min}) vereist is.

$$S_{\min} = \frac{b \cdot X \cdot K_s}{K_x - b \cdot X} \quad (4.13)$$

waarin: K_x = de maximale specifieke groeisnelheid van de bacterieën (tijd^{-1}); K_s = de substraatconcentratie, waarbij de groeisnelheid de helft bedraagt van K_x ; b = de afbraaksnelheidsconstante (afbraak van bacterieën); X = de concentratie van bacterieën

Het is niet te verwachten, dat de extreem lage concentraties aan diverse organische stoffen op zich aan de onderhoudsbehoeften van de met omzetting "belaste" microorganismen kunnen voldoen. Desondanks is gebleken (lit. 65), dat verbindingen als 1,2-dichloorbenzeen etc. in experimentele situaties in concentraties ver beneden S_{\min} toch goed (min 90 %) werden omgezet. Een voorwaarde hierbij is dan wel, dat in het onderhoud en de eventuele groei wordt voorzien door een zogenaamd primair substraat. De concentratie hiervan bevindt zich minimaal op S_{\min} -niveau. De betrokken organische microverontreiniging fungeert als secundair substraat (cometabolisme).

4.4.6.4.3 Interpretatie meetresultaten

Organische zuren, alcoholen, ketonen, aldehyden en esters

Deze stoffen komen algemeen voor als omzettingsproducten bij de afbraak van natuurlijk organisch materiaal. Alcoholen kunnen gevormd worden onder anaerobe condities door reductie van organische stof. Vorming is ook mogelijk onder aerobe conditie door oxidatie van alifatische koolwaterstoffen.

Zoals verwacht, is er verder een duidelijke samenhang zowel bij GW als bij de DWL (na correctie voor sommige ftalaten), tussen de gegevens van organische zuren en esters. Het verschil tussen "vóór" en "na" is echter niet altijd gelijk. Ondanks het feit, dat ftalaten aan microbiologische afbraak onderhevig zijn (lit. 96), leidt duininfiltratie op alle onderzochte locaties in het algemeen tot een toename van ftalaten (tabel 4.18). Bij bodempassageonderzoek door GW werden voor 3 ftalaten (Di-n-butyl, Di(iso?)butyl, Dioctyl) sterke gehaltesdalingen gevonden, echter niet voor diethylftalaat.

Het beeld van de fosfaatesters bij Zandvoort (fig. 4.4) wordt in principe net als bij de overige hiervoor besproken groepen bepaald door microbieële afbraak (hydrolyse van triethylfosfaat) en vorming (bijvoorbeeld van trimethylthiofosfaat uit parathion). Er zijn grote verschillen tussen individuele verbindingen: tri(2-chloorethyl)fosfaat vertoont sterke doorslag (tabel 4.7).

Fenolen

Van deze groep verbindingen is de afbreekbaarheid door microorganismen bekend. Daarnaast worden fenolen gevormd als tussenprodukt bij de afbraak van aromaten en humus. Het vóórkomen van (lage) concentraties fenolen na duininfiltratie is daarom overeenkomstig de verwachtingen.

Aromaten

Alhoewel de onderlinge verschillen in afbraaksnelheid (afhankelijk van de substitutie van de kern) groot kunnen zijn, is de afbraak van deze groep door microorganismen diverse malen beschreven (lit. 82, 63, 62, 68).

Uit de gegevens in par. 4.4.6.2 en 4.4.6.3 kwam

naar voren, dat omzetting door microorganismen voor een groot aantal chlooraromaten waarschijnlijk een belangrijke rol speelt. Deze conclusie is gebaseerd op het feit, dat een aantal organochloorverbindingen, waarvan de doorslag op basis van het adsorptiegedrag voorspeld wordt, desalniettemin nauwelijks wordt aangetroffen na duininfiltratie. Een andere aanwijzing is, dat gemeten beladingen van de grond vrijwel steeds lager zijn dan op basis van het adsorptiegedrag verwacht mag worden.

Eenzelfde beschouwing geldt ook voor toluen en benzeen (zie tabel 4.24 en 4.9). Een andere verbinding die volgens tabel 4.24 kan doorslaan, xyleen, wordt daarentegen minder goed omgezet.

Indien de waargenomen concentratieverlaging van nitro-aromaten eveneens hieraan toe te schrijven is, dan zou de vorming van anilines verwacht mogen worden (lit. 68). Dit is inderdaad waargenomen (tabel 4.11).

Op dezelfde wijze zou de omzetting van gechloreerde aromaten kunnen leiden tot de vorming van achtereenvolgens chloorfenolen en gechloreerde alifatische carbonzuren (lit. 53, 70). Dat de aanwezigheid van deze verbindingen niet geconstateerd is, hoeft niet te betekenen, dat deze vorming inderdaad achterwege is gebleven. Enerzijds is de gehanteerde analysemethodiek niet geschikt voor de isolatie van gechloreerde alifatische carbonzuren, anderzijds is de bemonstering niet op een dergelijke vraagstelling gericht geweest.

Organische basen

Zowel bij GW als in Ouddorp is de concentratieverlaging van anilines zeer aanzienlijk (tabel 4.18). Vermoedelijk speelt aerobe omzetting hierbij een rol.

Cholinesteraseremmers

Het gevonden beeld stemt overeen met de bekende goede afbreekbaarheid van deze groep stoffen (lit. 91). Dit geldt zowel voor de water- als bodemfase.

Trihalomethanen

Uit onderzoek is gebleken, dat chloroform aeroob niet wordt omgezet (tabel 4.31). De onder aerobe condities waargenomen doorslag (tabel 4.13) stemt hiermee overeen. Onder anaerobe condities (sulfaat-reductie) wordt chloroform wel omgezet, hetgeen de waarnemingen bevestigen. Ook de waargenomen gehaltesdeling van de gebromeerde THM, waarvoor net als voor chloroform op grond van het adsorptiegedrag doorslag verwacht mocht worden, kan in verband worden gebracht met de gegevens in tabel 4.31.

Olie

Bodempassageonderzoek bij Zandvoort toont aan, dat hogere alkanen als C_{11} en C_{14} sterk in gehalte kunnen toenemen. Met behulp van GC-MS-onderzoek is na duininfiltratie eveneens een concentratietoename van 160 % vastgesteld voor de reeks C_{16} - C_{26} . In oude sliblagen in de Oranjekom (na duininfiltratie bij GW) is ook een grote verscheidenheid aan koolwaterstoffen aangetoond, waaronder ook onverzadigde verbindingen. Vorming van hogere alkanen onder sterk anaerobe condities door reductie van zuurstofhoudende organische verbindingen speelt hierbij wellicht een rol.

AOH, AOCl, AOBr

Bij de bepaling van AOH is de isolatie zodanig ingericht (pH 2), dat een aantal verbindingen met

(zwak) zure eigenschappen geïsoleerd wordt. Bij de gebruikelijke isolatie met behulp van extractie of adsorptie aan XAD-hars bij neutrale pH worden deze verbindingen niet of nauwelijks geïsoleerd. In deze groep kan men (onder andere) omzettingsprodukten verwachten van meer lipofiele organohalogenen zoals de chlooraromaten. Uit het voorgaande is gebleken, dat een aantal van deze aromatische organohalogenen zeer waarschijnlijk wordt omgezet door microorganismen. De relatief geringe concentratieverlaging van de AOH-groep bij duininfiltratie stemt hiermee overeen. Opgemerkt moet worden dat ook oorspronkelijk aanwezige stoffen met een polair karakter voor deze geringe verlaging verantwoordelijk kunnen zijn.

Resumé

De omzetting van organische stoffen door microorganismen is in principe niet uit te sluiten. Gegevens van GW hebben hiervoor enkele aanwijzingen opgeleverd. Eén van deze aanwijzingen heeft betrekking op de nieuwvorming van organische stoffen zoals trimethylthiofosfaat en chlooraniline uit respectievelijk parathion en chloornitrobenzeen. Andere aanwijzingen worden gevonden in de nieuwvorming van in tabel 4.33 genoemde verbindingen. Het mechanisme van de nieuwvorming van N-methyl(C-methyl)aniline (tabel 4.11) is voorlopig onbekend. Amides zouden kunnen ontstaan bij de omzetting van carbonitrillen (zie fig. 4.19).

In verband met de prognoses ten aanzien van de bruikbaarheid van duininfiltratie is onderzoek naar het feitelijk optreden van omzettingsreacties door microorganismen bij duininfiltratie van groot belang. Literatuurgegevens over microbiologische omzettingen hebben vaak betrekking op hogere concentratieniveaus en zijn derhalve noch kwantitatief noch kwalitatief direct te vertalen naar een praktijksituatie met lagere gehalten (lit. 94).

Hierbij gaat het er tevens om de aard van de eventueel gevormde omzettingsprodukten vast te

	geul 12	337-6	336-6	337-5	335-6
redoxniveau verblijftijd d	aeroob -	aeroob 7	aeroob 21	SO ₄ -red 21	aeroob 49
amide (onbekend)	0	100	120	170	65
N-gesubstitueerd acetylamide	0	100	0	180	0

Tabel 4.33 - Concentratieveranderingen van enige organische verbindingen tijdens bodempassage in het infiltratiegebied van GW als functie van de verblijftijd en het redoxniveau (april-juni 1981). De gehalten zijn genormaliseerd op 100 in 337-6

stellen. Het is aannemelijk, dat een groot aantal omzettingsprodukten, gezien de aard, aan de gebruikelijke isolatiemethoden ontsnapt. Dit houdt in, dat op de eerste plaats gestreefd moet worden naar een meer complete isolatie van organische verbindingen uit water, gevolgd door een snelle toxicologische screening en voor zover mogelijk aangevuld met een fysisch-chemische karakterisering (moleculgewicht).

4.5 Duininfiltratie vergeleken met voor- en nazuivering

4.5.1 GW

Een overzicht van de bijdrage van voorzuivering, duininfiltratie en nazuivering in de totale concentratieverandering van organische stoffen bij GW is gegeven in tabel 4.34.

De voorzuivering draagt voor 50 % of meer bij in de concentratieverlaging van zuren, esters, aromaten (PCB's, PCA's, halogeen- en nitroderivaten). Concentratieverhogingen worden geconstateerd bij de groepen aromaten (alkylderivaten), basen (halogeenderivaten), aldehyden/ketonen, alcoholen, EOH en THM. Ongetwijfeld draagt de transportchloring, die gerekend wordt tot de laatste trap van de

voorzuiivering, hier in belangrijke mate aan bij door halogenering, niet alleen bij EOH en THM, maar kennelijk ook bij de basengroep. De oxyderende werking van het chloor blijkt ook uit de aldehyden/ketonen, alcoholen, alifaten, overige vluchtige organohalogenen, terpenoiden/sterolen en olie.

Duininfiltratie draagt voor circa 50 % of meer bij aan de concentratieverlaging van fenolen (halogeenen nitroderivaten), ethers (broomderivaten), aromaten (halogeenderivaten), basen (halogeenderivaten, anilines), aldehyden/ketonen, alcoholen, EOH en THM. Concentratieverhogingen tijdens duininfiltratie doen zich voor bij de groepen zuren, esters (ftalaten, overigen), aromaten (PCA's, PCB's en alkylderivaten), alifaten en terpenoïden/sterolen. De invloed van veen (zuren, terpenoïden/sterolen), (micro)biologische activiteit (esters, alifaten) en atmosferische introductie (PCA's en PCB's) werd reeds besproken.

De nazuiivering draagt voor circa 50 % of meer bij aan de concentratieverlaging van de groepen aromaten (PCB's, alkylderivaten), aldehyden/ketonen en terpenoïden/sterolen. Concentratieverhogingen tijdens de nazuiivering worden waargenomen in geringe mate bij de groepen aromaten (halogeenderivaten) en in grotere mate bij EOH, THM en AOH. Zoals bekend zijn de laatste drie het gevolg van de nadesinfectie van het reine water. Het gedrag van de eerste groep kan wellicht een gevolg zijn van het reeds besproken open winningseffect. Als gevolg van atmosferische introductie en bezinking treedt in het slib in de Oranjekom, als eindpunt van de open winning, een accumulatie van PCA's en PCB's op. Hetzelfde is wellicht mogelijk met gehalogeneerde aro-

maten, die afhankelijk van het type en de fysisch-chemische condities in de grond niet verwijderd worden tijdens bodempassage. Een en ander heeft tot gevolg, dat direct voor het nazuiveringssysteem over langere tijd een depot van deze verbindingen is gevormd. Afgifte van gehalogeneerde aromaten zou kunnen optreden als gevolg van afbraak van het slib, hetzij in de Oranjekom, hetzij tijdens de nazuivering. Ook de produktie van microbiologische stofwisselingsprodukten met detergerende eigenschappen in de sliblaag zou afgifte kunnen veroorzaken, getuige de ervaringen met PCA's (lit. 95). De lipofiliteit speciaal van lagere gehalogeneerde aromaten is zo gering, dat van het nazuiveringssysteem weinig concentratieverlaging meer mag worden verwacht.

Het effect van de totale zuivering is te beoordelen aan het over de totale zuivering gesommeerde percentage. Een nagenoeg volledige concentratieverlaging (90 % of meer) wordt voor de meeste groepen verbindingen gerealiseerd. Uitzonderingen zijn esters (ftalaten en overigen), aromaten (alkylderivaten), basen (halogeenderivaten), alifaten, EOH, THM, terpenoiden/sterolen, organochloorpesticiden en AOH.

Wanneer tevens het gehalte in drinkwater in beschouwing wordt genomen, dan blijkt dat van deze lijst de basen (organohalogeenderivaten) en organochloorpesticiden zich op detectiegrensniveau bewegen. Op een dergelijk concentratieniveau kunnen de gevonden percentages van 89 % respectievelijk 84 % toch nog zeer goed genoemd worden. Voor de andere genoemde groepen geldt, dat de totale concentratieverlaging duidelijk onvolledig is. Voor de groepen

THM en EOH is dit volledig toe te schrijven aan de nadesinfectie van het drinkwater in de beschouwde periode. In principe is dit ook het geval voor de AOH-groep. De concentratieverlaging bij duinpassage is voor deze groep echter zo gering, dat indien tijdens de voorzuivering een transportchloring zou worden toegepast (in de beschouwde periode niet het geval), de AOH-verhoging als gevolg hiervan direct in de AOH-concentratie van het drinkwater zichtbaar zou worden.

Voor de resterende groepen met een onvolledige concentratieverlaging te weten esters (ftalaten en overigen), aromaten (alkylderivaten), alifaten en terpenoïden/sterolen kan vastgesteld worden, dat hierbij steeds sprake is van concentratieverhogingen tijdens duinfiltratie.

In het voorgaande is de suggestie gedaan, dat het gedrag van de estergroep in hoge mate door (micro)-biologische activiteit bepaald zou kunnen zijn. Hetzelfde geldt ten aanzien van de alifatengroep. De aanwezigheid van veen in de grond leidt tot een toename van terpenoïden/sterolen.

Over de introductie van PCB's en PCA's tijdens de open winning is reeds gesproken. Deze stofgroepen vertonen een zodanig lipofiel karakter, dat de nazuivering toch nog voor een goed totaal effect kan zorgen. Het is niet uit te sluiten, dat als gevolg van de open winning introductie van veel gebruikte (en dus mogelijk in de atmosfeer voorkomende) stoffen als ftalaten en aromaten kan plaatsvinden.

Groepen verbindingen, waarvoor een nagenoeg volledige concentratieverlaging geldt, maar waarvan desalniettemin nog niveau's duidelijk boven de detectiegrens worden aangetroffen, zijn: zuren,

Organische microverontreiniging	gehalte waterloop ($\mu\text{g l}^{-1}$)	voorzui- vering (%)	duinin- filtra- tie d (%)	nazuivering (%)	totale zuivering (%)	gehalte drinkwater ($\mu\text{g l}^{-1}$)
Zuren	4,0	86	-34	44	96	0,12
Esters	2,0	54	-10	23	67	0,66
- fosfaten	1,0	65	17	10	92	0,08
- ftalaten	6,8	94	-69	4	29	0,46
- overigen	0,2	32	- 8	32	46	0,11
Fenolen	1,4	36	51	13	100	0,01
- halogeenderivaten	0,5	35	64	0	99	0,01
- nitroderivaten	0,6	42	49	8	99	0,01
Ethers	1,5	25	55	15	95	0,07
- Chloorderivaten	1,1	33	41	22	96	0,04
- Broomderivaten	n.a.	-	100	0	100	n.a.
Aromaten	6,9	36	50	11	97	0,30
- PCA	0,7	61	- 6	38	93	0,05
- PCB	0,1	86	-57	62	91	0,01
- halogeenderivaten	2,4	52	48	-1	99	0,03
- nitroderivaten	6,4	65	35	0	100	0,01
- alkylderivaten	0,5	-28	-13	87	72	0,13
Basen	3,9	30	66	3	96	0,03
- halogeenderivaten	0,5	-23	112	0	89	0,02
- anilines	2,4	44	54	3	101	0,01
Alifaten	11,6	88	-16	7	79	0,99
Aldehyden/ketonen	0,2	-63	62	96	95	0,01
Alcoholen	0,1	-10	100	10	100	n.a.
EOH	5,4	-138	228	-31	59	2,2
THM	3,4	-3716	3756	-955	-915	34,2
Overige vluchtige OH*	9,3	67	29	4	100	0,05
Terpenoïden/sterolen	2,2	79	-60	69	88	0,27
Olie (IR) b	149	89	0	2	91	13
Organochloorpesticiden b	0,12	42	42	0	84	0,02
Cholinesteraseremmers	3,3a	42a	16c	0	96	0,25b
Anion. detergenten h	47	21	43	30	94	13
PCA (Borneff) b	-	-	-	40	-	0,03
AOH g	25f	0	28	-100	-75	50

a = 1977; b = 1975-1979; c = 1974-1980; d = niet gecorrigeerd voor verblijftijd; f = Vreeswijk jan-maart 1982; g = 1982; h = 1979, 1981 en 1982; n.a. = niet aantoonbaar; *:OH = organohalogenen; - = geen waarnemingen; negatieve waarden duiden op een toename.

Tabel 4.34 - Overzicht van concentratieveranderingen tijdens voorzuivering, duininfiltratie en nazuivering bij Gemeentewaterleidingen (1976-1979). Percentages ten opzichte van gehalte in waterloop. Tevens zijn de gehalten in de waterloop en het drinkwater aangegeven.

Organische microverontreiniging	gehalte waterloop e		voorzui- vering		duinin- filtra- tie n		nazuive- ring n		totale zuivering		gehalte drink- water n	
	(µg l ⁻¹)		(%)		(%)		(%)		(%)		(µg l ⁻¹)	
	Lek	Maas a	Lek	Maas	Lek	Maas	Lek	Maas	Lek	Maas	Lek	Maas
Zuren	-	2,5	-	93	-	0	-	3	-	96	-	0,10
Esters	-	0,7	-	68	-	5	-	-42	-	41	-	0,50
- fosfaten	-	0,2	-	100	-	0	-	0	-	100	-	n.a.
- ftalaten	-	1,1	-	77	-	3	-	-23	-	57	-	0,43
- overigen	-	0,2	-	65	-	6	-	0	-	71	-	n.a.
Fenolen	-	0,7	-	100	-	0	-	0	-	100	-	0,01
- halogeenderivaten	-	n.a.	-	-	-	-	-	-	-	-	-	n.a.
- nitroderivaten	-	0,1	-	100	-	0	-	0	-	100	-	n.a.
Ethers	-	n.a.	-	int.	-	-7q	-	50q	-	43	-	0,2
- Chloorderivaten	-	n.a.	-	int.	-	-7q	-	50q	-	43	-	0,2
- Broorderivaten	-	n.a.	-	-	-	-	-	-	-	-	-	n.a.
Aromaten	-	0,2	-	100	-	0	-	0	-	100	-	0,01
- PCA	-	n.a.	-	-	-	-	-	-	-	-	-	n.a.
- PCB	-	n.a.	-	-	-	-	-	-	-	-	-	n.a.
- halogeenderivaten	-	n.a.	-	-	-	-	-	-	-	-	-	n.a.
- nitroderivaten	-	n.a.	-	-	-	-	-	-	-	-	-	n.a.
- alkylderivaten	-	0,1	-	100	-	-	-	-	-	100	-	n.a.
Basen	-	0,08	-	44	-	19	-	16	-	79	-	0,02
- halogeenderivaten	-	n.a.	-	-	-	-	-	-	-	-	-	n.a.
- amilines	-	n.a.	-	-	-	-	-	-	-	-	-	n.a.
Alifaten	-	0,9	-	92	-	8	-	-4	-	95	-	0,04
Aldehyden/ketonen	-	0,4	-	100	-	0	-	0	-	100	-	n.a.
Alcoholen	-	n.a.	-	int.	-	47q	-	0	-	47	-	0,3
EOH	-	-	-	-	-	44q	-	11q	-	33	-	6
THM m	-	-	-	-	-	91q	-	-	-	-	-	-
Overige vluchtige OH*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Terpenoïden/sterolen	-	4,6	-	100	-	0	-	0	-	100	-	n.a.
Olie (IR)	112e	83h	73	64f	20	-42h	-1i	41h	92	63	21i	31h
Organochloorpesticiden k	-	-	-	-	74q	-	-	-	-	-	-	-
Cholinesteraseremmers k	-	-	-	-	87q	-	-	-	-	-	-	-
Anion. detergenten	85b	40c	18	38	-	12q	-	0c	-	50	20b	20c
PCA (Borneff)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
AOH	-	38	-	53	-	67	-	7	-	7	-	35p

a = één waarneming in april 1977; b = 1969-1975; c = 1977-1979; d = 1972-1975; e = 1975; f = april-september 1978; g = 1974-1975; h = 1977-1978; i = 1973-1975; k = jan-juni 1973; m = 1978-1980; n = april-dec. 1976, olie t/m AOH en THM uitgezonderd; p = 1981; q = ten opzichte van aanvoer infiltratie; s = 1978-1979; n.a. = niet aantoonbaar; OH = organohalogenen; int = verbinding niet aantoonbaar in waterloop, wel in navolgende zuivering; negatieve waarden duiden op een toename

Tabel 4.35 - Overzicht van concentratieveranderingen tijdens voorzuivering, duininfiltratie en nazuivering bij de DWL. Tevens zijn de gehalten in de waterloop en het drinkwater aangegeven.

esters (fosfaten), ethers (chloorderivaten), aromaten (halogeenderivaten) en basen.

4.5.2 De DWL

Tabel 4.35 geeft een overzicht van de bijdragen van voorzuivering, duininfiltratie en nazuivering te Scheveningen. Bedacht moet worden, dat van het ten behoeve van de voorzuivering bemonsterde water slechts één serie waarnemingen beschikbaar is voor zover het de parameters zuren tot en met alcoholen en terpenoiden/sterolen betreft. Voorzichtigheid is dan ook geboden met de interpretatie van de gegevens, die voor deze groep verbindingen in de tabel staan vermeld.

4.5.3 Vergelijking GW en DWL

In het door de DWL voorgezuiverde, aangevoerde water komt in vergelijking met dat van GW een aanzienlijk minder grote variatie aan organische verbindingen voor. Dit is direct terug te voeren op de in dit opzicht betere waterkwaliteit van de Maas ten opzichte van de Rijn. De in de voorzuivering behaalde percentages ten aanzien van olie en anionische detergenten komen zowel voor Lek- als Maaswater redelijk overeen met de gegevens van de voorzuivering in Jutphaas. Bepaalde verschillen tussen de duininfiltratie door de DWL en GW, zoals bij de zuren, terpenoïden/sterolen en AOH, kwamen hiervoor reeds ter sprake. De kleinere afgifte van organische zuren en terpenoïden/sterolen alsmede de geringere verwijdering van EOH werden in verband gebracht met het minder voorkomen van humus in de grond bij Scheveningen. Ook het ontbreken van een

open winning kan leiden tot lagere gehalten organische zuren en terpenoïden/sterolen. Uit de vergelijking van tabel 4.34 en 4.35 blijken nog enkele verschillen bij de ethergroep, anionische detergenten, AOH en ftalaten voor te komen. De concentratieverlaging van de eerste twee is bij GW groter en die van de laatste twee bij de DWL. Voor olie is de concentratieverlaging te Scheveningen op basis van Lekwater gunstiger, met Maaswater ongunstiger.

Net als de duininfiltratie vertoont de nazuivering bij GW in het algemeen een grotere bijdrage in de concentratieverlagingen dan bij de DWL. Dit hangt samen met het feit, dat een aantal stoffen bij GW in hogere concentraties worden aangevoerd. Dat vindt zijn oorzaak om te beginnen in de, wat organische stoffen betreft, slechtere kwaliteit van het Rijnwater, maar ook in de afgifte van een aantal organische stoffen bij bodempassage in het infiltratiegebied van GW en de introductie van stoffen hierna tijdens de open winning.

De totale concentratieverlagingen zijn in doorsnee bij beide bedrijven hoog. Minder goed voor beide bedrijven zijn de resultaten verkregen met esters (ftalaten). Minder goed bij GW is het totale resultaat voor esters, aromaten (alkylderivaten), basen (halogeenderivaten), alifaten, terpenoïden/sterolen en organochloorpesticiden. Niet genoemd zijn verbindingen welke door de nadesinfectie zijn beïnvloed. Soms is er ook sprake van een goed concentratieverlagingspercentage, maar is de verbinding toch nog duidelijk aanwezig in het drinkwater (fosfaten, ethers, aromaten, PCA's, PCB's, halogeenderivaten, basen).

Naar verwachting speelt hierin de open winning,

alsmede de langdurige accumulatie van gecontamineerd slib in de Oranjekom vlak voor de nazuivering een belangrijke rol. Minder goed bij de DWL verloopt de concentratieverlaging van ethers (chloorderivaten), basen en EOH (geen nadesinfectie). De drinkwaterkwaliteit is wat betreft al de beschouwde verbindingen duidelijk beter dan bij GW, hetgeen vooral verband lijkt te houden met de betere kwaliteit van het aangevoerde water.

4.6

Conclusies

(1) Het uiteindelijke effect van duininfiltratie wordt bepaald door onder meer het type organische stof, gehalte, verblijftijd, temperatuur, bodemsamenstelling, verdunning en winningssysteem (open/-gesloten). Hierdoor kunnen tussen de verschillende locaties grote verschillen in concentratieveranderingen van organische stoffen voorkomen.

(2) Het gedrag van individuele verbindingen binnen een groep van organische stoffen kan sterk variëren. Dit is geconstateerd bij de groepen esters (ftalaten, fosfaten en overigen); ethers (chloorderivaten); aromaten (PCA's, alkylderivaten); basen (halogeenderivaten), alifaten en THM. Uitspraken over het gedrag van groepen organische stoffen hebben dan ook slechts globale betekenis.

(3) Gecorrigeerd voor verdunningseffecten blijkt duininfiltratie (in de onderzochte locaties) tot concentratieverlagingen te leiden bij de volgende groepen: fenolen (78-89 %), ethers (62-85 %) (te Zandvoort en Ouddorp), aromaten (74-85 %), basen (93-94 %), alifaten (96-100 %; te Scheveningen en Ouddorp), aldehyden/ketonen (49-63 %, alcoholen

(100 %; te Zandvoort en Ouddorp), EOH (30-94 %), THM (89-99 %), overige vluchtige organohalogenen (85 %), AOH (10 %), cholinesteraseremmers (74-84 %) anionische detergenten (6 %; bij GW) en organochloorpesticiden (64-67 %).

(4) Gecorrigeerd voor verdunningseffecten blijkt duininfiltratie in de onderzochte locaties tot concentratieverhogingen te leiden bij de groepen organische zuren (33-2019 %) en esters (8-59 %). Daarnaast zijn bij GW ook nog verhogingen geconstateerd bij alifaten (225 %), terpenoïden/sterolen (199 %), aromaten (PCA's 21 %; PCB's 462 %; alkylderivaten 44 %) en olie (20 %).

Bij de DWL zijn verhogingen vastgesteld bij ethers (35 %), alcoholen (84 %) en olie (25-170 %)

(5) Geen concentratieverandering werd vastgesteld bij de DWL voor anionische detergenten.

(6) Reeds tijdens het verblijf in infiltratiemiddelen kunnen voor sommige groepen organische verbindingen concentratiedalingen optreden (THM 40-60 %; cholinesteraseremmers 40-50 %; AOH 13 %; EOH 25 %). Het effect is onder meer afhankelijk van de verblijftijd in het infiltratiemiddel, de temperatuur en de aard van de betrokken verbindingen (chloroform 50-55 %; bromoform 13-32 %).

(7) Uit het bodempassageonderzoek blijkt, dat de maximale veranderingen soms na één week (aeroob) en in andere gevallen pas na 7 weken aeroob worden bereikt. Dit verloop is in sterke mate afhankelijk van de individuele verbinding, hetgeen betekent, dat ook binnen een groep van verbindingen wat dit betreft grote verschillen kunnen voorkomen.

(8) In een aantal gevallen is een duidelijke invloed van de heersende redoxpotentiaal (aerobie-anaerobie) vastgesteld, namelijk bij sommige esters, ethers, gealkyleerde aromaten, aromatische basen, chloroform en limoneen.

Alleen in het geval van chloroform blijkt een anaeroob (sulfaatreducerend) milieu een grotere concentratiedaling te bewerkstelligen dan een aerobe omgeving. In de overige gevallen is het resultaat van de anaerobe toestand ongunstiger. Trimethylthiofosfaat werd alleen in anaerobe omstandigheden aangetroffen, net als N-methyl(C-methyl)aniline. Het gehalte diethylftalaat was in vergelijking met een aerob milieu hoog. Hetzelfde kan gezegd worden voor bis(dichloor-n-propyl)ether, ethylbenzeen, p/m-xyleen en chlooraniline.

De redoxpotentiaal wordt in hoge mate bepaald door de aanwezigheid van oxideerbaar materiaal, zoals veen in de grond. Dit manifesteert zich in een verhoogde afgifte van limoneen in sulfaatreducerend milieu ten opzichte van een aerobe omgeving.

(9) Concentratieverhogingen zoals geconstateerd bij organische zuren, esters, terpenoïden/sterolen en olie houden nauw verband met organische stof in de grond, de redoxpotentiaal en de hierdoor bepaalde microbiologische activiteit.

Dit effect komt in sterke mate in Ouddorp, in geringe mate bij GW en het minst bij de DWL naar voren. Bij GW is er bovendien waarschijnlijk ook nog een bijdrage vanuit tijdens de open winning in de Oranjekom geaccumuleerd slib.

(10) Concentratieverhogingen na duinfiltratie bij GW van PCB's (462 %) en PCA's (21 %) moeten zeer waarschijnlijk toegeschreven worden aan atmosferi-

sche depositie en accumulatie in de Oranjekom. De verhoogde niveau's in de Oranjekom ontstaan, doordat bij bemonstering en analyse slib wordt meegenomen; tevens moet rekening worden gehouden met remobilisatie onder invloed van microbiologische activiteit.

Overwegingen hierbij zijn de onwaarschijnlijkheid van bodempassage door de hoge lipofiliteit, het feit dat fluorantheen als enig voorkomend vertegenwoordiger van de "Borneff"groep PCA's na een week bodempassage niet meer aangetroffen werd, het feit dat PCA's en PCB's frequent in aanmerkelijke gehalten in regenwater (ook aan de Nederlandse kust) worden aangetoond, alsmede de goede concentratieverlaging van PCA's bij duininfiltratie te Ouddorp, waar een open winning ontbreekt.

Overigens zijn in de PCA-groep grote verschillen gevonden in retentie bij bodempassage. Fenanthreen (niet behorend tot de Borneffgroep) slaat wél door bij bodempassage te Zandvoort.

Als gevolg van microbiologische activiteit in het na de winning geaccumuleerde slib kan tevens een toename van alifaten en olie worden vastgesteld.

(11) In Ouddorp is het aandeel van de atmosferische depositie in de totale depositie van VOCl en organochloorpesticiden door atmosfeer en infiltratiewater circa 5 %.

(12) Inzicht in het gedrag van organische stoffen bij duininfiltratie is overwegend beperkt tot verbindingen met een lipofiel tot matig polair karakter en een molecuulgewicht van max. circa 400.

Dit betekent dat effecten, zoals de afgifte van hoog moleculaire (molecuulgewicht circa 2000), polaire stoffen uit veen en de vorming van polaire

omzettingsprodukten, maar ook het gedrag van dergelijke stoffen die reeds in het aangevoerde water aanwezig zijn, praktisch volledig buiten beeld blijven.

In het gegevensbestand zijn enige parameters voorhanden, die in mindere mate aan deze beperkingen onderhevig zijn, te weten: AOH (apolair-polair; laag-hoog molecuulgewicht); EOH (apolair; laag-hoog molecuulgewicht); XON (apolair; laag-hoog molecuulgewicht); XOP (apolair; laag-hoog molecuulgewicht).

(13) Verschillen tussen de infiltratiegebieden doen zich behalve bij de reeds besproken parameters nog bij de groepen EOH, chloorethers en organische basen voor. De concentratieverlagingen zijn voor deze groepen te Scheveningen lager dan in Ouddorp en Zandvoort. Mogelijk speelt hierin het verschil in bodemsamenstelling een belangrijke rol.

(14) Het gebruik van de octanol-water-constante (K_{ow}) van organische stoffen ter beoordeling van de verwijdering van organische stoffen bij filtratie tijdens de eerste cm's bodempassage geeft aan, dat stoffen met hoge K_{ow} -waarden sterk accumuleren in de bovenlaag van het pakket, mede afhankelijk van het organisch koolstofgehalte van de bovenlaag. Dit is aan de hand van gegevens betreffende HCB in Scheveningen en diverse chlooraromaten en PCA's bij GW bevestigd.

(15) In een proefraai bij Zandvoort zijn in de grond organische koolstofgehalten vastgesteld van 0,07-3,34 %. In een aanwezige veenlaag werd 40 % gemeten.

Ten aanzien van de adsorptie van organische stoffen

kan dit betekenen, dat plaatselijk grote verschillen in retentie van organische stoffen tijdens bodempassage kunnen voorkomen. Indien adsorptie het bepalende mechanisme in de concentratieverlaging zou zijn, dan kan op basis van een literatuurmodel berekend worden, dat bij GW in 1984 voor een aerobe stroomlijn doorslag zou kunnen optreden van stoffen met een $\log K_{ow} < 4,4$ (tetrachloorbenzeen).

Voor een anaerobe stroomlijn kan dan berekend worden, dat doorslag mogelijk is van stoffen met $\log K_{ow} < 4,0$ (trichloorbenzeen).

(16) Een stof als dichloorbenzeen, die volgens het gehanteerde model kan doorslaan, is inderdaad na duininfiltratie aangetroffen, zij het ten opzichte van de aanvoer in zeer lage gehalten. Hetzelfde geldt voor xyleen en chloroform. Een en ander duidt wellicht op microbiologische omzettingen van deze stoffen tijdens duininfiltratie.

(17) De evaluatie van de doorslagschattingen met behulp van het gehanteerde adsorptiemodel worden bemoeilijkt door het ontbreken van gegevens die verkregen zijn direct na bodempassage.

In de beschikbare gegevens na duininfiltratie kan aanwezigheid van een verbinding in principe ook een atmosferische oorzaak hebben. Aan de andere kant hoeft afwezigheid nog niet te betekenen dat er geen doorslag optreedt. Een concentratieverlaging tijdens open winning door omzetting, verdamping en coagulatie is in principe mogelijk. Opvallend is, dat bij het bodempassageonderzoek penta- en hexachloorbenzeen, weliswaar op $ng\ l^{-1}$ niveau, verder in de grond werden aangetroffen dan verwacht op basis

van het adsorptiemodel. Dit pleit voor nader onderzoek naar de toepasbaarheid van dit model (invloed van detergerende stoffen uit water en veen).

(18) De concentratie van een aantal organische verbindingen blijkt alleen in de bovenste laag (circa 1 m) van de grond bij Zandvoort overeen te stemmen met de op basis van het adsorptiemodel verwachte waarden. Dit wijst erop, dat de schattingen die ten behoeve van de berekening van de doorslagtijden gedaan moesten worden in het algemeen reëel zijn (1,2,4-trichloorbenzeen en pentachloorbenzeen wijken echter af).

Verder in de grond zijn de gehalten steeds lager dan verwacht, hetgeen mogelijk wijst op andere oorzaken voor concentratieverlaging, zoals (microbiologische) omzetting.

(19) De beladingen van de bovenlaag (circa 1 m) van de grond bij Zandvoort met PCA's blijken aanzienlijk hoger dan verwacht op basis van het adsorptiemodel. Mogelijk heeft dit te maken met atmosferische depositie. Verderop in het pakket zijn de gehalten steeds op detectiegrensniveau.

(20) In het infiltratiegebied te Scheveningen is bio-accumulatie van cholinesteraseremmers in algen aangetoond.

(21) Uit de literatuur blijkt, dat een zeer groot aantal xenobiotische stoffen aan microbiologische omzettingen onderhevig is, ook bij zeer lage gehalten. De redoxpotentiaal is veelal bepalend voor het al of niet optreden van deze omzettingen. Als gevolg van meestal hoge concentraties en afwijkende bacteriepopulaties kunnen literatuurgegevens even-

wel niet zonder meer naar de praktijk van kunstmatige infiltratie in Nederland vertaald worden.

(22) Tijdens bodempassage bij Zandvoort blijken enige "nieuwe" stoffen te ontstaan (chlooraniline, trimethylthiofosfaat, een amide en een N-gesubstitueerde acetylamide). Dit vormt een aanwijzing voor het optreden van omzettingsreacties.

(23) Bij gedeeltelijke omzettingen van organische stoffen worden veelal meer polaire produkten gevormd, die als gevolg daarvan mobieler zijn. Tegelijkertijd neemt veelal de "zichtbaarheid" van deze produkten met de gebruikelijke analysemethoden af.

(24) Op basis van literatuurgegevens en eigen onderzoek wordt verwacht, dat microbiologische activiteit bij het gedrag van de volgende stofgroepen een rol speelt: organische zuren, alcoholen, ketonen/ aldehyden, esters, fenolen, aromaten, cholinesteraseremmers, THM, olie, organische basen, AOH en EOH.

(25) Vergeleken met voor- en nazuivering draagt de duinfiltratie van GW het grootste deel in de totale concentratieverlaging bij voor de volgende groepen: fenolen (halogeen- en nitroderivaten), ethers (chloor- en broomderivaten), aromaten (halogeenderivaten), basen (halogeenderivaten en anilines), aldehyden/ketonen, alcoholen, EOH, THM, AOH en anionische detergenten.

(26) Concentratiestijgingen na duinfiltratie worden veelal volledig opgevangen door de nazuivering. Een zwakke plek in de als totaal toch aanzienlijke barriere tegen organische stoffen vormt

echter de introductie van PCA's en PCB's tijdens de open winning.

De belading van slib met PCA's in de open winning van GW (Oranjekom) blijkt circa 10 keer hoger dan in de bodem van de infiltratiegeulen. PCB's zijn eveneens in dit slib aangetoond. De accumulatie van dit slib in de Oranjekom gedurende lange tijd moet als een bijkomende ongunstige factor gezien worden. Als gevolg hiervan neemt de kans toe, dat dit slib in de nazuivering doordringt, waar door afbraak van het slib de geadsorbeerde stoffen vrijkomen en doorslag in het reine water kan optreden.

Remobilisatie van deze stoffen uit het slib behoort blijkens de literatuur ook tot de mogelijkheden. PCA's en PCB's zijn in zeer lage gehalten (ng l^{-1} niveau) in het reine water aangetroffen.

(27) In het ten behoeve van de duininfiltratie te Scheveningen onttrokken Maaswater is het gehalte aan organische stoffen lager en de diversiteit kleiner dan in het ten behoeve van GW onttrokken Lekwater. De voorzuivering neemt meestal het grootste deel van de concentratieverlaging voor zijn rekening. Duininfiltratie levert hier ten opzichte van de andere zuiveringstrappen de grootste bijdrage aan verwijdering van EOH, THM en AOH.

(28) Een onvolledige concentratieverlaging (< 90 %) over de totale zuivering manifesteert zich bij GW vooral bij de groepen esters (ftalaten en overigen), alifaten, terpenoiden/sterolen en AOH. Stoffen op detectiegrensniveau en chlooringseffecten zijn hierbij buiten beschouwing gelaten.

Groepen verbindingen, waarover een nagenoeg volledige concentratieverlaging over de totale zuivering

geldt (> 90 %), maar waarvan desalniettemin na de zuivering nog gehalten duidelijk boven de detectiegrens worden aangetroffen, zijn zuren, esters (fosfaten), ethers (chloorderivaten), aromaten (halogeenderivaten) en basen.

4.7 Aanbevelingen

1. Gegevens over het vóórkomen van organische microverontreinigingen vóór en na duininfiltratie zijn beperkt. Langer durende meetprogramma's en hogere meetfrequenties zijn noodzakelijk om meer inzicht te verschaffen in trendmatige veranderingen, seizoenseffecten en de gevolgen van wisselende invoergehalten. Bij de bemonstering dient rekening gehouden te worden met bijkomende effecten als verdamping en introductie uit de atmosfeer.

2. Een goede interpretatie van processen, waarbij omzetting een rol speelt zoals duininfiltratie, vereist dat men beschikt over analytisch chemische methodieken die de bepaling mogelijk maken van meer polaire verbindingen. De eerste prioriteit ligt hier bij polaire organohalogenen.

3. Het gehanteerde adsorptiemodel dient voor de vóórkomende verbindingen getoetst te worden door bepaling van adsorptie-isothermen met praktisch infiltratiewater en bodemmateriaal.

4. De gehalten van organische microverontreinigingen in het bodemslib en het watervoerend pakket dienen te worden geïnterpreteerd. Van belang is met name in hoeverre met de gangbare methoden de werkelijke belading wordt bepaald. De gegevens kunnen geïnterpreteerd worden op basis van het getoetste adsorptiemodel.

5. Er bestaat behoefte aan oriënterend onderzoek naar de mogelijkheden voor omzetting van organische microverontreinigingen (met name organohalogenen) in het infiltratiepakket (mineralisatiegraad, effect fysisch chemische condities).

6. Een kinetische en mechanistische karakterisering van de omzetting (effect fysisch chemische condities en concentratieniveau's alsmede wisselingen hierin) vormt een logisch gevolg van aanbeveling 5.

7. De microbiologische populatie in het infiltratiepakket dient gekwantificeerd te worden naar werkzame soort en fysiologische activiteit ten behoeve van het omzettingsmodel.

8. Het slib in de open winning te Leiduin blijkt beladen met onder andere PCA's en PCB's. In verband met remobilisatie zowel in de Oranjekom als bij afbraak van het slib tijdens de nazuivering neemt de kans op doorslag van deze verbindingen (en eventueel ander geadsorbeerd materiaal) in het reine water toe. Langdurige accumulatie over tientallen jaren is daarom niet gewenst.

9. Er zijn aanwijzingen, dat microbiologische omzettingen een belangrijke rol spelen bij concentratieveranderingen van organische stoffen bij duininfiltratie. Microbiologische processen zijn met name gevoelig voor grote wisselingen in de bedrijfsvoering. Uit dit oogpunt is van belang: een kwaliteitsbewaking van de ruwwaterinname, het vermijden van wisselingen in transportchloring (bij voorkeur geen transportchloring) en een zo constant mogelijke bedrijfsvoering van de duininfiltratie zelf (voorkomen van droogvallen van infiltratiepanden, grote wisselingen in grondwaterstand en dergelijke).

4.8

Literatuur

1. Stuyfzand, P.J. (1984): "Kwaliteitsveranderingen van voorgezuiverd Lekwater bij kunstmatige infiltratie in de Amsterdamse Waterleidingduinen ten zuiden van Zandvoort". KIWA-rapport SWE-367.
2. Stuyfzand, P.J. (1983): "Kwaliteitsveranderingen van voorgezuiverd Lekwater bij kunstmatige infiltratie in het duingebied ten westen van Castricum." KIWA-rapport SWE-366.
3. Stuyfzand, P.J. (1984): "Kwaliteitsveranderingen van voorgezuiverd rivierwater bij kunstmatige infiltratie in het wingebied van de Duinwaterleiding van 's-Gravenhage. KIWA-rapport SWE-369.
4. Stuyfzand, P.J. (1984): "Kwaliteitsveranderingen van Haringvliet- en polderwater bij kunstmatige infiltratie in het duingebied ten noordoosten van Ouddorp, Goeree-Overflakkee". KIWA-rapport SWE-370
5. Smeenk, J.G.M.M. & A. Noordsij (1983): "Interpretation problems in the analysis of organic Contaminations in groundwater". First Atlantic Workshop Proceedings (AWWA-IWSA), Nashville, Tennessee, December 8-10-1982, p. 79-93
6. Meyers, A.P. (1970): "Onderzoek naar organische stoffen in rivierwater en drinkwater". Proefschrift Technische Hogeschool Delft.

7. Noordsij, A. (1975): "Onderzoek naar het voorkomen van organische stoffen in diverse zuiveringstrappen van Gemeentewaterleidingen Amsterdam. KIWA-rapport, oktober 1975.
8. De bepaling van de met petroleumether extraheerbare fractie van het organochloorgehalte (EOCl) in water". Voorschrift KIWA-Werkgroep Analyse Organische Microverontreinigingen. November 1976
9. "Analyse van THM in drinkwater". Voorschrift van R-AOM 78-27.
10. "Gaschromatografische bepaling van vluchtige gehalogeneerde koolwaterstoffen". Voorschrift van afdeling waterkwaliteitsbewaking Gemeentewaterleidingen van 28 december 1981.
11. Piet, G.J. et al. (1978): "Determination of very volatile halogenated organic compounds by means of direct head space analysis". Analytical Letters, A (11) 5, pp. 437-448.
12. "Semikwantitatieve bepaling van de totale cholinesteraseremmende activiteit in water". Voorschrift KIWA-werkgroep Analyse Organische Microverontreinigingen, november 1976.
13. "De bepaling van cholinesteraseremmers met behulp van de autoanalyzer". Voorschrift afdeling waterkwaliteitsbewaking Gemeentewaterleidingen van 24 december 1982.

14. "De bepaling van het gehalte halogeen in op actieve kool adsorbeerbare organische verbindingen". Voorschrift KIWA-werkgroep analyse organische microverontreinigingen. R-AOM-84-15.
15. Smeenk, J.G.M.M. (1983): "Some experiences with methods for the determination of adsorbable organohalogen". Report Workshop Working Party 8. Specific Anal. Problems 2-4 March 1983. The Hague, part 2 - Organic group parameters and phenolic compounds (presentations).
16. Piet, G.J. en J.G.M.M. Smeenk (in druk): "Behaviour of Organic Pollutants in pretreated Rhine-water during Dune infiltration" in "Chemistry and Biology of Groundwater". Ed. C.H. Ward, P.L. McCarty & W. Giger (1985).
17. "Bepaling van olie in water met gaschromatografie". Voorschrift KIWA-werkgroep Analyse Organische Micro-verontreinigingen. November 1975.
18. NEN-voorschrift 1056 VI 9. December 1965.
19. "Het bepalen van organo-halogeenvbindingen in grondmonsters". Voorschrift afdeling waterkwaliteitsbewaking Gemeentewaterleidingen, december 1982.
20. Fishman, M.J. et. al. (1963): "Indirect spectrophotometric determination of traces of bromide in water." An. Chem. 35 (2), p. 146-149.
21. Lehmann, E.L. (1975): "Non parametrics: Statistical Methods based on ranks". 457 pp.

22. Kampert, H.G.A. et al: "Onderzoek naar het voorkomen van organische microverontreinigingen bij de drinkwaterbereiding van de Duinwaterleiding van 's-Gravenhage". KIWA-rapport april 1978.
23. "Onderzoek organische microverontreinigingen in watermonsters van het zuiveringswerk Ouddorp". KIWA-rapport juli 1978.
24. "Onderzoek organische microverontreinigingen in een watermonster van het zuiveringswerk Ouddorp. KIWA-rapport oktober 1978.
25. Meent, W. v.d.: "Onderzoek organische microverontreinigingen in een aantal watermonsters van het zuiveringswerk Ouddorp". KIWA-rapport juni 1977.
26. Onderzoek naar het voorkomen van organische stoffen in diverse zuiveringstrappen van Gemeentewaterleidingen Amsterdam. Periode februari-maart 1976. KIWA-rapport juni 1976.
27. Meent, W. v.d.: "Onderzoek organische microverontreinigingen in de zuiveringswerken te Jutphaas, Leiduin en Weesperkarspel". KIWA-rapport, oktober 1978.
28. Onderzoek organische microverontreinigingen in de zuiveringswerken te Jutphaas, Leiduin en Weesperkarspel. KIWA-rapport april 1978.
29. Onderzoek organische microverontreinigingen in de zuiveringswerken te Jutphaas, Leiduin, Weesperkarspel en Hilversum. KIWA-rapport oktober 1978.

30. Onderzoek organische microverontreinigingen in de zuiveringswerken te Jutphaas, Leiduin, Weesperkarspel en Hilversum. KIWA-rapport maart 1979.
31. Onderzoek organische microverontreinigingen in de zuiveringswerken van de Gemeentewaterleidingen Amsterdam. KIWA-rapport november 1979.
32. Baardolf, B. et al (1973): "Het vóórkomen en de verwijdering van een aantal bestrijdingsmiddelen in water, dat van belang is voor de Duinwaterleiding van 's-Gravenhage. Rapport DWL.
33. Baardolf, B. et al (1973): "De verwijdering van een aantal bestrijdingsmiddelen in water door de infiltratie in de duinen van de Duinwaterleiding van 's-Gravenhage. Rapport van de Duinwaterleiding van 's-Gravenhage, december 1973.
34. Onderzoek naar het voorkomen van organische microverontreinigingen in de zuiveringswerken van het pompstation Scheveningen. KIWA-rapport juli 1979.
35. Onderzoek organische microverontreinigingen in een aantal watertypes van het waterzuiveringsproces van het WMZ-pompstation te Ouddorp. KIWA-rapport SWO-436, september 1982.
36. Verboon-Beukers, C.G.M.; "Onderzoek naar de verwijdering van een zestal polycyclische aromaten in het zuiveringsproces van de Duinwaterleiding." Stagerapport Duinwaterleiding van 's-Gravenhage, november 1976.

37. Quaghebeur, D. et al, 1982: "Regenwater als verspreider van organische vervuiling: een voorbeeld met polycyclische aromatische koolwaterstoffen en TOC". Water nr. 7, november-december pp 234-238.
38. Piet, G.J. et. al.: "Polynuclear aromatic hydrocarbons in the water environment of the Netherlands: A presentation of measurements in 1973 and 1974". RID-mededeling 75-6.
39. Hoekstra, T. (1984). Persoonlijke mededeling.
40. Ypma, W.A. (1982): "Adsorptie van polychloorbenzenen aan bodemsediment". Stagerapport Gemeentelijk Centraal Milieulaboratorium".
41. Karickhoff, S.W. et. al. (1979); "Sorption of hydrophobic pollutants on natural sediments". Water Research 13. pp. 241-248.
42. Rogers, R.D., McFarlane, J.C. & Cross, A.J. (1980): "Adsorption and desorption of benzene in Two Soils and Montmorillonite Clay". Environmental Science and Technology, 14, p. 457
43. Means, J.C., Hasselt, J.J., Wood, S.G. & Banwart, W.L. (1979): "Sorption properties of energy related pollutants and sediments". in: Polynuclear Aromatic Hydrocarbons, Jones D.W., & Weber, D., (Eds); Ann Arbor Science Publishers: An Arbor, MI, p. 327.

44. Means, J.C., Hasselt, J.J., Wood, S.G. & Banwart, W.L. (1980): "Sorption of polynuclear aromatic hydrocarbons by sediments and soils." *Environmental Science and Technology*, 14, p. 1524.
45. Hasselt, J.P. & Anderson, M.A. (1982): "Effects of dissolved organic matter on adsorption of hydrofobic organic compounds by river- and sewage born particles." *Water Research*, 16, p. 681-686.
46. Briggs, G.G. (1973): "A simple relationship between soil adsorption of organic chemicals and their octanol-water partition coefficients." *Proceedings 7th. British Insecticide and Fungicide Conference*.
47. Schwarzenbach, R.P. et. al. (1983): "Behaviour of Organic Compounds during Infiltration of River Water to groundwater: Field Studies". *Env. Sci. Techn.* 17 (8), pp. 472-479.
48. Schwarzenbach, R.P. et. al. (1981): "Transport of nonpolar Organic compounds from surface water to Groundwater. Laboratory Sorption Studies". *Env. Sci. Techn.* 15 (11), pp. 1360-1367.
49. Stuyfzand, P.J. (1985): "Kwaliteitsveranderingen van oppervlaktewater bij kunstmatige infiltratie in de Nederlandse Kustduinen: Macroparameters". *KIWA-meded. nr. 82 in voorbereiding*.

50. Sontheimer, H., Jekel, M. & Roberts, P.V. (1981) "Probleme der Wasserqualität bei Verwendung von aufbereitetem Abwasser zur Grundwasser anreicherung".
In: Bewertung chemischer Stoffe im Wasserkreislauf, Karl Aurand (ed), Erich Schmidt Verlag Berlin. pp. 136-153.
51. Roberts, P.V. & Valocchi, A.J. (1981) "Principles of Organic contaminant behaviour during artificial recharge", International Symposium on the Quality of Groundwater, Noordwijkerhout. Ed. W. v. Duivenboden, p. 439.
52. Roberts, P.V. et. al. (1982): "Movement of Organic contaminants in Groundwater: implications for water supply". JAWWA, nr. 8, p. 408-413.
53. Grote, A. et. al. (1983): "Zum biologischen Abbau von 3,4-di-chloor-1-nitrobenzol unter den Bedingungen industriellen Kläranlagen". Vom Wasser, Band 60, p. 191-196.
54. Schitzer, M. & Khan, S.U. (1972): "Humic Substances in the environment". M. Dekkers Inc., New York.
55. Diekman, L.F.M. (1982): "Onderzoek naar een aantal kwaliteitsverbeteringen van water tijdens passage door de bodem". Rapport Gemeentewaterleidingen.
56. Maas, C. (1983): "Het gedrag van enige organische micro-verontreinigingen bij bodempassage". Sta-gerapport Gemeentewaterleidingen.

57. Kobayashi, H. & Rittmann, B.E., (1982): "Microbial removal of hazardous organic compounds". Environmental Science and Technology, 16, 3, p. 170a-181a.
58. Poels, C.L.M.: "Sublethale effecten van Rijnwater op regenboogforellen". KIWA-rapport december 1977.
59. Stumm, W. & J.J. Morgan (1970): "Aquatic Chemistry" Wiley-Interscience, New York, 583 p.
60. Wershaw, R.L., Burcas, P.J. & Goldberg, M.C. (1969): "Interaction of Pesticides with Natural Organic Material". Environmental Science and Technology 3, p. 271.
61. De gaschromatografische bepaling van organochloorbestrijdingsmiddelen in water. Voorschrift KIWA-werkgroep Analyse Organische microverontreinigingen. November 1976, R-AOM 78-6
62. Zehnder, A.J.B. (1984): "Biologische omzetting van organische microverontreinigingen tijdens de grondwatervorming". Workshop Microbiologische Bodemreiniging, Bunnik 8-9 maart.
63. Bouwer, E. (1983). Voordracht RID Leidschendam 4 mei.
64. Bouwer, E. et. al. (1983): "Transformation of 1 and 2-carbon halogenated Aliphatic Organic compounds under methanogenic conditions". Appl. and Env. Microbiol., p. 1286- 1294.

65. Bouwer, E. (1982): "Transformations of trace halogenated organic compounds in biofilms". Dissertation, Stanford University, Stanford.
66. Bouwer, E. et al (1983): "Transformation of halogenated organic compounds under denitrification conditions". Appl. and Env. Microbiol. p. 1295-1299.
67. Schlegel, H.G. (1972): "Allgemeine Microbiologie", II Auflage Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 461 p.
68. Alexander, M. (1981): "Biodegradation of chemicals of environmental concern." Science (211), p. 132-138.
69. Giger, W. et. al. (1981): "Groundwater pollution by volatile organic chemicals". in: Quality of Groundwater, Proceedings of an International Symposium, Noordwijkerhout, The Netherlands, 23-27 March, Eds. W. v. Duijvenboden et al. Studies in Env. Science. Vol. 17. Elsevier, The Netherlands.
70. Knackmuss, H.J. (1983): "Biological Transformation of organic micropollutants in the subsurface: Pathways and rates of transformation, formation and accumulation of metabolites". Presented at Specialist Conference on Contamination of groundwater by Organic Micropollutants, April 25-29, Wolfheze, The Netherlands.

71. Reineke, W. et al. (1984): "Microbial Metabolism of haloaromatics: Isolation and properties of a chlorobenzene degrading bacterium". Appl. and Env. Microbiol., p. 395-402.
72. Boyd, S.A. et al, (1984): "Anaerobic biodegradation of chlorophenols in fresh and acclimated sludge". Appl. and env. microbiol., p. 272-277.
73. Leatham, G.F. et al. (1983): "Degradation of phenolic compounds and ring cleavage of catechol by phanerochaete chrysosporium". Appl. and env. microbiol. p. 191-197.
74. Suflika, J.M. et al. (1982): "Dehalogenation: A novel pathway for the Anaerobic Biogradation of haloaromatic compounds". Science, vol. 218, p. 1115-1117
75. Wilson, J.T. et al (1983)": "Enumeration and characterization of Bacteria Indigenous to a Shallow Water-Table Aquifer". Groundwater vol. 21 (2), p. 134-142.
76. Edgehill, R.U. et al. (1983): Microbiol Treatment of Soil to remove Pentachloorphenol". Appl. and Env. Microbiol., p. 1122-1125.
77. Neilson, A.H. et al, (1983): "Bacterial Methylation of chlorinated phenols and guaiacols: Formation of verafrols from guinacols and High-molecular weight chlorinated lignin". Appl. and Env. Microbiol., p. 774-783.

78. Schmidt, E. (1983): "Degradation of chlorophenols by a defined mixed microbial community". Appl. and Env. Microbiol., p. 1038-1044.
79. Karns, J.S. et al. (1983): "Metabolism of Halophenols by 2,4,5 Trichlorophenoxy acetic Acid-Degrading Pseudomonas cepacia". Appl. and Environm. Microbiol. p. 1176-1181.
80. Balley, R.E. et al. (1983): "Biodegradation of the Monochlorobiphenyls and Biphenyl in River Water". Environm. Sci. Technol. (17) p. 617-621.
81. Kong, H.L. et al. (1983): "Degradation and Total Mineralization of Monohalogenated Biphenyls in Natural Sediment and Mixed Bacterial Culture". Appl. and Environm. Microbiol. p. 666-672.
82. Wood, J.M. (1982): "Chlorinated Hydrocarbons: oxidation in the Biosphere". Environm. Sci. Technol. (16) p. 291A - 297A.
83. Hallas, L.E. et al. (1983): "Microbial Transformation of Nitroaromatic Compounds in Sewage Effluent". Appl. and Environm. Microbiol. p. 1234-1241.
84. Ballschwiter, K. et al. (1980): "Mikrobielle Abbau von chlorierten Aromaten: VI. Bildung von Dichlorphenolen und Dichlorbrenzcatechinen aus Dichlorbenzolen in mikromolarer Lösung durch Pseudomonas Sp.". Chemosphere (9) p. 457-467.

85. Josephson, J. (1983): "Subsurface Organic Contaminants".
Environm. Sci. Technol. (17), p. 518A-521A.
86. Khan, S.U. (1982): "The Interaction of Organic Matter with Pesticides". Chapter 4 in Vol. 8 "Soil Organic Matter" M. Schnitzer and S.N. Khan uit de serie "Soil Chemistry" Elsevier Sci. Publ. Comp. Amsterdam.
87. Anoniem: "Losbladig Systeem" ten dienste van de beoordeling van het gebruik van bestrijdingsmiddelen in beschermingszones van waterwingebieden. Directoraat-Generaal voor de Milieuhygiëne, VROM.
88. Duursma, E.K. (1965): "The dissolved Organic Constituents of Sea Water" in "Chemical Oceanography" Vol. I. Ed. J.P. Riley and G. Skirrow. Ac. Press. London, New York.
89. Voorschrift voor de bepaling van polyaromaten. Voorschrift van de afdeling Waterkwaliteitsbewaking Gemeentewaterleidingen, 19 maart 1976.
90. Noordsij, A. (1981): "Isolatie van organische verbindingen uit water met XAD". KIWA SWE 258.
91. Meijers, A.P. (1972): "Pesticiden en drinkwatervoorziening". Mededeling nr. 1 van de Commissie Organische Stoffen. KIWA.
92. Bepaling van polycyclische aromaten met behulp van hoge druk vloeistofchromatografie". Voorschrift afdeling waterkwaliteitsbeheer Gemeentewaterleidingen van 11 juni 1980.

93. de Haan, F.A.M.: "Gedrag van organische bestrijdingsmiddelen in de bodem". Syllabus kandidaatscollege. Kennis van de bodemverontreiniging. Landbouw Hogeschool Wageningen.
94. Boethuis, R.S. and Alexander, M. (1979): Effect of concentration of organic chemicals on their biodegradation by natural microbial communities". *Appl. and Env. Microbiol.* 37, 1211-1216
95. Hrubec, J. et al (1984): Modelonderzoek betreffende het gedrag van verontreinigingen tijdens percolatie van voorgezuiverd oppervlaktewater door de zandbodem". RIVM-rapport maart, laboratorium voor Ecologie en Drinkwater.
96. Ingatt, R.H. et al (1984): "Shake flask biodegradation of 14 commercial phtalate esters"
Appl. and Env. Microbiol., p. 601-606.
- 97 Waterleidingbesluit, 1984: Besluit van 2 april 1984, houdende wijziging van het waterleidingbesluit (Stb. 1960, 345)".
Staatsblad van het Koninkrijk der Nederlanden 1984 (220), 36 p.

5 MICROBIOLOGISCHE ASPECTEN

5.1 Inleiding

Dit hoofdstuk behandelt de invloed van duininfiltratie op de verwijdering van micro-organismen uit fecaal verontreinigd oppervlaktewater, dat als grondstof dient voor de drinkwaterbereiding. Hiervoor zijn onderzoeksresultaten verwerkt van het Provinciaal Waterleidingbedrijf Noord-Holland (PWN) en de Duinwaterleiding van 's-Gravenhage (DWL).

Opgemerkt moet worden, dat slechts gedurende de laatste tientallen jaren, dat kunstmatige infiltratie een feit is, door de bedrijven meer op het duin gericht microbiologisch onderzoek wordt verricht. Dit is enerzijds het gevolg van betere bacteriologische bepalingmethoden en anderzijds van de toenomen belangstelling voor "natuurlijke" zuiveringsprocessen. Om deze redenen is in dit hoofdstuk het accent gelegd op onderzoeksresultaten van de laatste jaren.

Eerst zal in het kort worden ingegaan op in oppervlaktewater voorkomende micro-organismen en hun hygiënische betekenis in het algemeen (par. 5.2).

In par. 5.3 komen onderzoeksresultaten van de DWL en het PWN ten aanzien van de verwijdering van ongewenste micro-organismen bij duininfiltratie aan de orde. Paragraaf 5.4 wordt gewijd aan enige verwijderingsmechanismen bij langzame zandfiltratie. Conclusies en aanbevelingen volgen respectievelijk in par. 5.5 en 5.6.

5.2 Micro-organismen in oppervlaktewater en hun hygiënische betekenis

Oppervlaktewater is verontreinigd met excrementen

van humane en dierlijke herkomst en kan daardoor ongewenste bacteriën, enterovirussen en parasieten bevatten. Tabel 5.1 geeft een idee over de micro-organismen, die tot de bacterieflora van de darm behoren. Tabel 5.2 verschaft een overzicht van de humane enterovirussen, die in water kunnen voorkomen (lit. 1). Vele van deze organismen kunnen bij onvoldoende zuivering door drinkwater worden verspreid en ziekten veroorzaken.

Natuurlijke flora van de darm	gemiddeld aantal in 1 gram faeces	Infectieuze flora van de darm
Staphylococcus S.epidermidis S.aureus S.viridans S.pyogenes (soms)	8 x 10 ⁶	Salmonella Arizona spp. Campylobacter Shigella Escherichia coli (enterotoxigene)
Escherichia coli	4 x 10 ⁸	Escherichia coli (enteropathogene)
Citrobacter-levinea	1 x 10 ⁶	Escherichia coli (enteroinvasieve)
Klebsiella	5 x 10 ⁴	Yersinia enterocolitica
Enterobacter	1 x 10 ⁵	Vibrio cholera/parahaemolyticus
lactobacillen S.faecalis	1 x 10 ⁹	Streptococcus aureus Streptococcon (β-hemolytisch)
Corynebacterium Mycobacterium Candida Pseudomonas aeruginosa	10 ² - 10 ³	Mycobaterium tuberculosis Candida Clostridium perfringens C.difficile Bacillus cereus
NIET FERMENTERENDE ANAEROBEN		Schimmels, gisten Virussen
Bacteroides	10 ¹⁰	Protozoa
Fusobacterium Lactobacillen Actinomycetes	10 ⁹	Wormen
Clostridium	4 x 10 ⁶	
Peptostreptokokken Gisten	5 x 10 ⁴	

Tabel 5.1 - Micro-organismen, die tot de natuurlijke flora van de darm behoren, met het gemiddelde aantal in 1 gram faeces, alsmede micro-organismen, die bij infecties van de darm betrokken kunnen zijn (lit. 3 en 4)

Virusgroepen	Aantal typen
Poliovirussen	3
ECHO-virussen	34
Coxsackie-A-virussen	24
Coxsackie-B-virussen	6
"Nieuwe enterovirussen"	4
Hepatitis type A virus	1
Gastroenteritis virussen (Norwalk type)	2
Rotavirussen	*
Reovirussen	3
Adenovirussen	30
Parvovirussen	3

Tabel 5.2 - Humane "entero" virussen die in water kunnen voorkomen (lit 1)

De virussen, die via water infecties bij de mens teweegbrengen, behoren voornamelijk tot die typen, die zich kunnen vermenigvuldigen in het spijsverteringskanaal en dan in grote aantallen in de faeces en urine worden uitgescheiden. Deze virussen zijn alle pathogeen voor de mens en veroorzaken ziekten als huiduitslag, koorts, gastroenteritis, ontsteking van de hartspier (myocarditis) en van hersenen ruggemervliezen (meningitis), aandoeningen van luchtwegen en geelzucht (hepatitis) (lit. 2).

De meeste door drinkwater verspreide ziekten veroorzaken echter diarree door infecties van de wand van het spijsverteringskanaal (tabel 5.1; lit. 3). In een normaal functionerende maag is de zuurgraad lager dan $\text{pH} = 4$. In korte tijd wordt daardoor 99,9 % van de ingeslikte (eventueel pathogene) bacteriën gedood. Dit proces duurt veel langer bij personen met weinig maagzuur of met een gedeeltelijk verwijderde maag. Worden veel bacteriën aangetoond, dan duidt dit op een gestoorde maagfunctie. De resorptie van vocht kan dan door hun aanwezigheid in de dunne darm worden gestoord met als eventueel gevolg diarree. Door de bactericide werking van het maagzuur moeten bij gezonde mensen veel

bacteriën ingeslikt worden, voordat zij ziekten kunnen veroorzaken. Cysten en Shigella-soorten vormen hierop een uitzondering. Van Shigella, Giardia lamblia-cysten en Entamoeba histolitica zijn slechts aantallen van 10^{1-2} voldoende om enterites te veroorzaken. Van Salmonella zijn er 10^{5-8} , van E.coli 10^8 en van Vibrio cholera 10^8 nodig.

De darmwand is een zeer actief orgaan. Per dag komt aan gedronken water, met voedsel opgenomen vocht, speeksel, maagzuur etcetera ongeveer 8,5 liter de darm binnen, terwijl met de faeces slechts 0.15 liter dagelijks wordt afgescheiden. Er wordt dus ongeveer netto 8 liter (voor het grootste deel in de dunne darm) geresorbeerd in voortdurend intensief tweerichtingsverkeer. Onder invloed van hormonale, fysische en osmotische factoren wordt op deze manier onder andere de hoeveelheid Na^+ , K^+ en andere mineralen in het bloed constant gehouden. De totale hoeveelheid vocht, die aan dit tweerichtingsverkeer per dag deelneemt, bedraagt meer dan 50 liter.

Diarree is één van de eerste symptomen van een gestoorde fysiologische activiteit van de dunne en dikke darm. Zo vormen Vibrio cholera, sommige E.coli-soorten en Salmonella interditates-stammen en Aeromonas hydrophila enterotoxinen. De toxische werking ligt vooral in de verstoring van het osmotisch evenwicht tussen de inhoud van het darmlumen en het bloed in de capillairen van het dunne-darmgebied.

Na-ionen worden in hun beweging van darmlumen naar het bloed van de capillairen door het toxine in het darmepitheel geblokkeerd. De Cl-ionen worden niet geblokkeerd en bewegen zich vrij vanuit het bloed door het darmepitheel in het darmlumen. Het gevolg daarvan is, dat na uittreding van Na^+ en Cl^- uit het capillaire bloed ook watermoleculen de bloedstroom verlaten naar het darmlumen, om op die manier de concentratie van NaCl op peil te houden. Voor de patient betekent dit een heftige waterdunne diarree, die wegens het snelle vochtverlies tot levensbedreigende uitdroging kan leiden. Bij chole-rapatienten en ook bij patienten, die geïnfecteerd zijn met sommige enterotoxinevormende E.coli-soorten, komt dit ziektebeeld voor.

Kennis omtrent door drinkwater verspreide ziekten heeft geleid tot analysemethoden, die zijn gericht op het aantonen van een fecale verontreiniging van water. Bij voorkeur zou het water daarbij rechtstreeks op de aanwezigheid van pathogene ziekteverwekkende organismen moeten worden onderzocht. Dit is bij het routinematig onderzoek nog niet mogelijk, daar dit te veel tijd kost. De methoden, die wel snel kunnen worden uitgevoerd, zijn gericht op het aantonen van micro-organismen, die normaal in hoge aantallen voorkomen in faeces van mens en andere warmbloedige organismen (zie tabel 5.1). De aanwezigheid van deze micro-organismen in water toont de aanwezigheid van fecaal materiaal aan en derhalve de mogelijke aanwezigheid van darmpathogenen.

Een goed indicatororganisme voor fecale verontreiniging moet in hoge aantallen in faeces voorkomen, maar afwezig zijn of slechts in kleine aantallen aanwezig in andere bronnen. Verder moet het langer dan ziekteverwekkende organismen in water kunnen leven en resistenter zijn, met name in verband met de controle van desinfectieprocessen. *Escherichia coli* is een goed indicatororganisme, omdat alleen zij eenduidig van fecale herkomst is en in hoge aantallen in de menselijke darmbacterie-flora wordt aangetroffen.

Andere micro-organismen, die aan enkele van deze criteria voldoen, kunnen onder bepaalde omstandigheden als supplementaire indicatoren voor fecale verontreiniging worden beschouwd.

De vanouds meest bekende groep van indicatororganismen voor fecale verontreiniging omvat:

- (1) bacteriën van de coligroep, waaronder ook thermotolerante bacteriën, zoals *Escherichia coli*;
- (2) fecale streptococci (groep D-antigeen);

- (3) sulfietreducerende clostridia; en
- (4) de colifagen (bacterievirussen): tegenwoordig worden deze als mogelijke groep van indicator-organismen voor enterovirussen beschouwd.

Eén van de belangrijkste eigenschappen voor determinatie is, dat bacteriën van de coligroep in staat zijn het suiker lactose bij 37 °C binnen 48 uur om te zetten onder vorming van gas en zuur. Deze groep omvat de genera *Escherichia*, *Citrobacter*, *Enterobacter*, *Klebsiella* en *Aeromonas* (zie fig. 5.1). De laatste behoort tot de *vibrionaceae*. In de praktijk is voor het routine-onderzoek de coliformtest een betrouwbare bepaling gebleken voor de beoordeling van de microbiologische kwaliteit. Toch garandeert de afwezigheid van deze bacteriën in gedesinfecteerd oppervlaktewater niet de afwezigheid van resistente organismen als virussen, cysten van *Giardia lamblia*, amoeben en andere parasieten! Verder komen deze bacteriën van de coligroep (met uitzondering van *E.coli*) niet alleen in faeces voor van warmbloedige dieren maar ook elders, zoals in de bodem en in plantaardig materiaal. Toch mogen deze bacteriën niet in behandeld water worden aangetroffen, daar zij duiden op een onvoldoende zuivering. Indien zij echter ook in staat blijken te zijn, lactose bij 44,5 °C te vergisten (thermotolerante bacteriën van de coligroep, zoals sommige *Klebsiella*- en *citrobacteriesoorten*), dan is de kans zeer groot, dat ook zij primair met fecaal materiaal zijn geïntroduceerd. Volgens medewerkers van het Instituut Pasteur te Lille groeien fecale bacteriën van de coligroep niet bij 4 °C in tegenstelling tot niet-fecale colibacteriën (lit. 6).

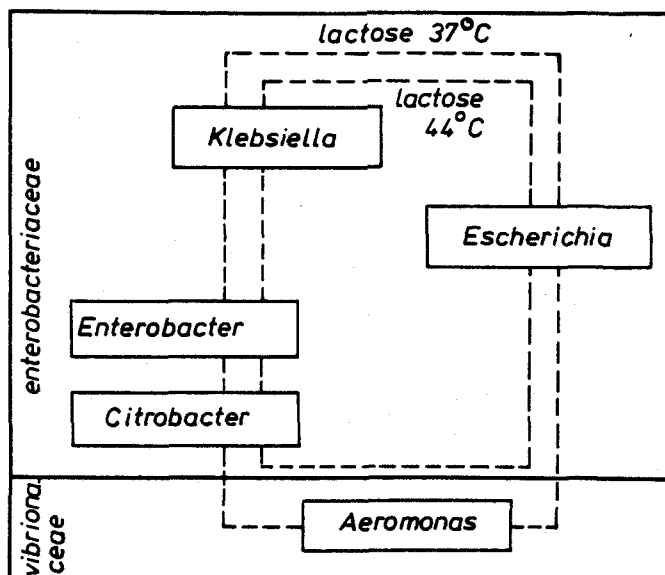


Fig. 5.1 - Taxonomie van bacteriën van de coligroep (lit. 6)

Nagroei van thermotolerante bacteriën treedt niet op in water met onvoldoende nutriënten, een BOD kleiner dan circa 14 mg/l en beneden een temperatuur van 13 °C. In afvalwater, dat afkomstig is van papier- en suikerfabrieken en rijk is aan makkelijk afbreekbare koolhydraten, kunnen hoge aantallen thermotolerante klebsiellae worden gevonden en wel tot 10⁶ per ml (lit. 7).

Indien 'er twijfel is, in het bijzonder wanneer bacteriën van de coligroep worden gevonden in afwezigheid van E.coli, kunnen fecale streptococci (o.a. S.faecalis en S.faecium die dominant in humane faeces voorkomen, S.durans, S.bovis en S.avium) en sulfietreducerende clostridia met name C.perfringens, worden gebruikt als additionele indicatororganismen. Deze bacteriën kunnen niet in water nagroeien en zijn resistenter, in het bijzonder de anaerobe, sporenvormende sulfietreducerende clostridia.

Zoals al eerder vermeld, is gebleken dat bij een goede coliverwijdering toch nog virussen kunnen worden aangetroffen! Slechts enkele zuurvaste bacteriën en een niet verder geïdentificeerde gist zijn uit rioolwater geïsoleerd, die resistenter zijn tegen chloor dan de enterovirussen.

Desondanks zijn de verschillen tussen virussen en bacteriën zo groot voor wat betreft gedrag, wijze van vermenigvuldigen en stabiliteit, dat alleen een virusindicator het enige geschikte model is voor virusgedrag.

Nu zijn colifagen (bacterievirussen, die zich met behulp van een colibacterie vermeerderen) mogelijke virusindicatoren, omdat (lit. 8):

(a) colifagen in grote aantallen in rioolwater en verontreinigd water worden aangetroffen; (b) colifagen in een hoger aantal voorkomen dan humane virussen; (c) beiden zich niet zonder gastheer kunnen vermeerderen; (d) colifagen op eenvoudige wijze geïsoleerd en met behulp van eenvoudige methoden geteld kunnen worden. De pathogene virussen in de darm (enterovirussen) verschillen van de colifagen, omdat zij gekweekt moeten worden op dierlijke cellen; (e) de tijd tussen bemonstering en analyseresultaat veel korter is dan die bij virussen; en (f) sommige colifagen, zoals F_2 resistenter zijn tegen ongunstige omstandigheden, met name ten aanzien van desinfectie, dan virussen.

Uit bovenstaande moge blijken, dat bij de drinkwaterbedrijven in eerste instantie het bacteriologisch onderzoek gericht is op het aantonen van een fecale verontreiniging in water. In dit verband was de ontdekking door Koch in 1912 belangrijk, dat drinkwater bereid uit rivierwater na langzame zandfiltratie geen cholerakiemen meer bevatte, indien

het 22 °C-koloniegetal op bouillongelatine (48 uur) lager dan 100 per ml was. Door de ontwikkeling van methoden, die indicatief zijn voor fecale besmetting, is evenwel de waarde van dit koloniegetal en ook, zij in mindere mate, het later ingevoerde koloniegetal van 37 °C op bouillonagar, als parameter voor fecale verontreiniging sterk verminderd. Niettemin worden nog steeds de volgende drinkwaternormen (richtniveau) gehanteerd: het aantal kweekbare kiemen bij 22 en 37 °C mag in het distributiegebied niet herhaaldelijk het geometrische gemiddelde van respectievelijk 100 en 10 ml⁻¹ te boven gaan (lit. 17).

Hoewel het mondiaal duidelijk is, dat de klassieke "waterborne diseases" nog steeds van belang zijn en waarvan Salmonella nog het grootste deel voor haar rekening neemt (zie tabel 5.3), wordt het steeds duidelijker dat ook andere bacteriën ziekten kunnen veroorzaken. Gedacht wordt daarbij aan bacteriën van de coligroep met pathogene vertegenwoordigers van E.coli, Yersinia spp, Serratia, Klebsiella en Enterobacter spp., maar ook aan bacteriën die niet verwand zijn aan bacteriën van de coligroep, zoals clostridia, Campylobacter, pseudomonaden, Acinetobacter, Flavobacterium, Brucella, Spirochaetae en Aeromonas hydrophila. Het betreft hier voor een deel de zogenaamde opportunistische pathogenen, die in grote aantallen in drink- of badwater infecties veroorzaken bij groepen van mensen, die om speciale redenen extra gevoelig zijn, zoals patiënten met brandwonden en/of met een onderdrukt afweersysteem. In dit verband kan ook de bacterie Legionella pneumophila genoemd worden, waarvan inademing via aerosolen de gevreesde veteranenziekte kan veroorzaken. Het valt te verwachten, dat in de nabije toekomst bij de bacteriologische beoordeling van water meer aandacht besteed gaat worden aan genoemde organis-

men en hun hygiënische betekenis. Voor coliformen en fecale streptococci geldt een maximaal toelaatbare concentratie (MTC) in drinkwater <3 per liter en voor sulfietreducerende clostridia een MTC van 10 (lit. 17).

Cholera	0 - 0.03
Typhus	0 - 9.1
Paratyphus	0 - 2.5
Andere Salmonellae	0.3 -54
Shigella	0.02-22
Yersinia*	0.04-10
Leptospirosis*	0 - 0.13
Brucella*	0 - 1.1
onbekend*	0.03-1935

* = niet in alle landen

Tabel 5.3 - Geregistreerde gevallen van infectieziekten per 100.000 inwoners (lit. 9)

5.3 Verwijdering van ongewenste micro-organismen bij duininfiltratie

5.3.1 Onderzoek door DWL

Uit het duin teruggewonnen water werd vóór 1975 wekelijks bemonsterd na toestroming in de zogenaamde open verzamelkom. Omdat hier weer besmetting met dierlijk fecaal materiaal plaatsvindt, kon geen exacte uitspraak worden verkregen over het reducerend vermogen van het duin voor deze micro-organismen. Na 1975 werden daarom monsters getrokken uit een continu stromende waterstraal via een speciale aanboring op de vacuümtransportleiding. Dit water is afkomstig uit de zogenaamde hoofdader en is representatief voor het grootste deel van het teruggewonnen water.

Tabel 5.4 toont percentages van voorkomen van bacteriën van de coligroep in wekelijks genomen monsters van een halve liter van het teruggewonnen water, gemiddeld over het hele jaar.

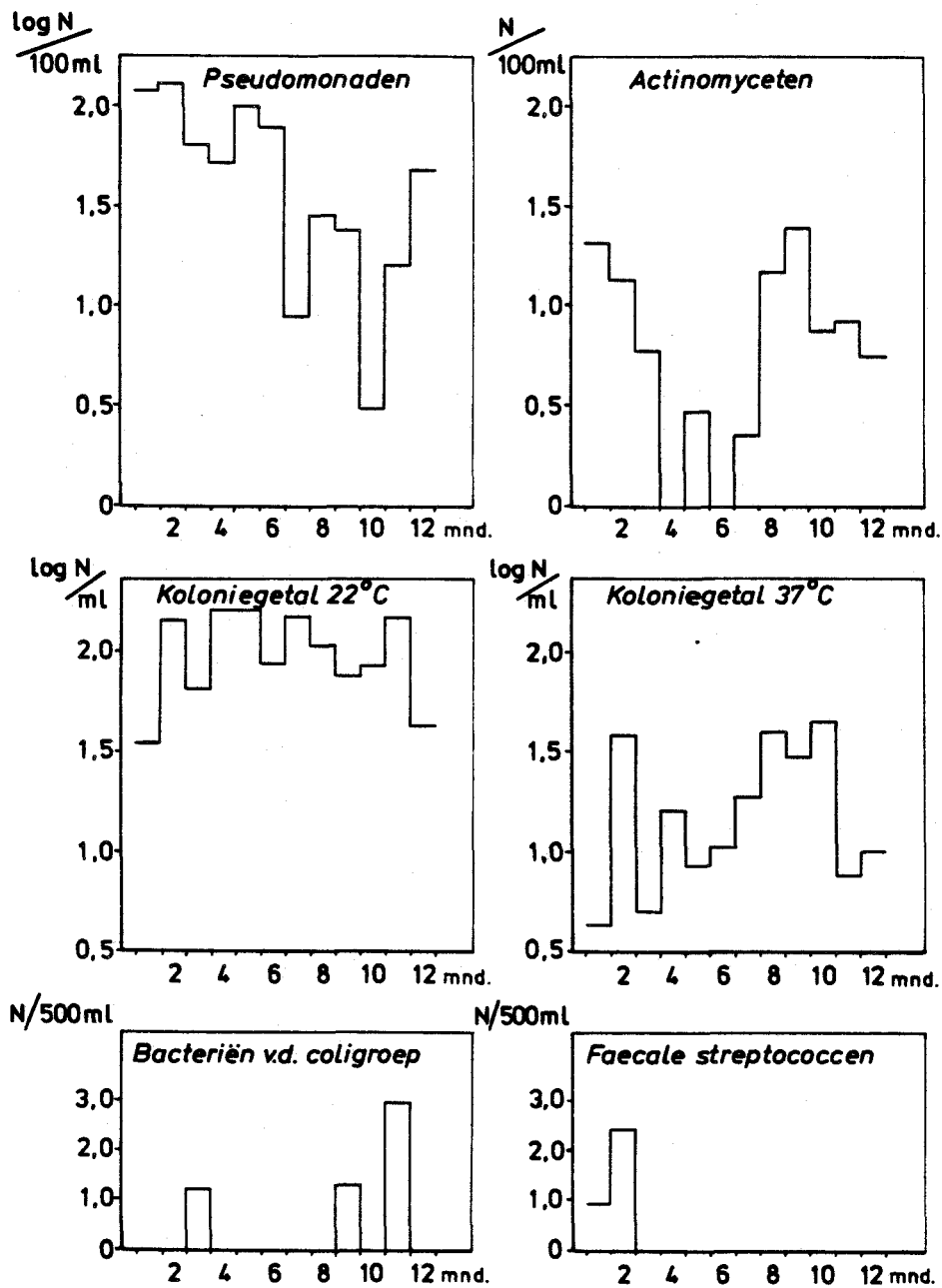
jaar	aantal bepalingen	% watermonsters positief		aantal l ⁻¹	
		gemiddelde hele jaar	dit deel in april-september	max.	gem.
1975	48	54	52	700	18
1976	52	58	63	360	35
1977	52	46	75	1000	59
1978	50	50	76	99	13
1979	51	55	50	166	22
1980	48	56	52	53	6
1981	52	10	100	6	1

Tabel 5.4 - Bacteriën van de coligroep na duininfiltratie bij de DWL van 1975 tot en met 1981

Tevens is aangegeven welk deel van het gemiddelde percentage in het zomerhalfjaar wordt aangetroffen en om welke aantallen bacteriën het gaat.

Dat toch zo vaak nog bacteriën van de coligroep in het geïnfiltrateerde water kunnen worden aangetoond, met name in het zomerseizoen, mag niet zonder meer worden geweten aan een ontoereikend bacterieverwijderend vermogen van het duin, maar eerder aan technisch gebreken bij de bedrijfsvoering. Zo ontstaan kortsluitingen, wanneer bij een te hoge grondwaterstand het water in de laag gelegen duinvalleien in contact komt met de open lucht en daar wordt verontreinigd met fecaal materiaal.

Dit water kan via niet geheel afsluitende mangaten op toegangskokers het water na duininfiltratie in de transportdrains verontreinigen. Verder is bij inspectie gebleken, dat oude aftakkingen van de ruwwateraanvoer tot de infiltratievijvers, die vlak naast de transportleiding van het teruggewonnen water liggen, ernstige lekkages kunnen vertonen. Mogelijk door (gedeeltelijke) opheffing van genoemde gebreken werden vanaf 1981 aanzienlijk minder bacteriën van de coligroep aangetoond. Figuur 5.2 geeft een overzicht van de bacteriologische gesteldheid van het in 1983 uit de hoofdader teruggewonnen water.



Figuur 5.2 - Overzicht van de bacteriologische gesteldheid van het in 1983 uit de hoofdader teruggewonnen water

Tabel 5.5 toont, dat er tijdens voorzuivering en duininfiltratie een verschuiving plaatsvindt tussen de genera van bacteriën van de coligroep. Gaande van de Maas bij Heusden naar het pompstation Brakel, het duin en tenslotte de nazuivering te Scheveningen neemt de trefkans* van Klebsiella af en die van E. Coli juist toe.

De trefkans* van Klebsiella is het grootst in de Maas, mogelijk omdat deze bacterie daar kan nagroeien op door papier- en suikerfabrieken geloosde, makkelijk afbreekbare organische verbindingen.

* Voor een definitie en bepaling van de trefkans zie pagina 230.

Organismen	Maas Heus- den	Pst. Bra- kel	Aan- voer Schev.	Pan 13	Hoofd ader	Uit- laat km	Snel fil- traat	L.Z fil traat
<i>Escherichia coli</i>	1	3	3	4	5	7	7	3
<i>Citrobacter freundii</i>	-	-	1	1	1	1	1	1
<i>C. spec.</i>	-	-	1	0	-	-	1	0
<i>Klebsiella pneumoniae</i>	3	2	1	1	1	1	1	1
<i>K. ozaenae</i>	-	-	0	-	1	-	-	-
<i>K. oxytoca</i>	4	3	1	1	1	0	1	1
<i>K. sp.</i>	-	-	1	-	-	0	-	0
<i>Enterobacter aerogenes</i>	1	1	2	1	1	0	1	1
<i>E. cfBaceae</i>	1	2	-	1	2	1	1	2
<i>E. hafnia (hafnia alvei)</i>	-	-	-	1	1	1	1	-
<i>E. agglomerans</i>	1	1	1	1	1	1	1	1
<i>E. sakazakii</i>	-	-	-	0	1	-	1	-
<i>Serratia liquefaciens</i>	-	-	1	0	-	0	-	1
<i>S. odorifera</i>	-	-	-	0	-	-	-	0
<i>S. rubidaea</i>	-	-	1	0	-	-	-	0
<i>S. sp.</i>	-	-	-	-	-	-	-	0
<i>Yersinia enterocolitica</i>	-	-	-	-	1	0	-	1
<i>Aeromonas hydrophyla</i>	-	-	2	1	1	1	-	1
<i>Spec. non. det.</i>	1	1	2	3	-	2	3	3
aantal determinaties (APIE)	110	94	236	227	198	574	396	447
periode van onderzoek	1979	1979	79-82	79-82	79-82	79-82	79-82	79-82

Tabel 5.5 - Trefkans (%) van bacteriën geïsoleerd van het Teepol-medium, in water, dat van links naar rechts een voortgaande behandeling ondergaat (0 = < 1 %, 1 = 1-10 %, 2 = 10-20 % enz.)

De toenemende trefkans van E. Coli bij duininfiltratie en nazuivering (tot en met snelfiltratie) houdt verband met herbesmetting. De verhoging zelfs na bodempassage (vergelijk pan 13 met de hoofdader) duidt vermoedelijk op de eerder genoemde kortsluitstromingen.

Door deze herbesmetting in de infiltratiepannen mag voor de bepaling van de reductiecapaciteit van het duinpakket niet alleen worden uitgegaan van het duinbevloeiende en teruggewonnen water, zoals blijkt uit tabel 5.6. In dat geval zou er zelfs sprake kunnen zijn van produktie aan bacteriën voor de jaren 1977 tot en met 1979 en zou de reductiecapaciteit ten hoogste slechts 1 log-eenheid bedragen.

Jaar	Aanvoer infiltratie	Teruggewonnen water Hoofdader	Reductie in log-eenheid
1976	2,6	1,5	1,1
1977	1,5	1,8	+ 0,3
1978	0,9	1,1	+ 0,2
1979	0,6	1,4	+ 0,8
1980	1,3	0,8	0,5
1981	1,4	0	1,4

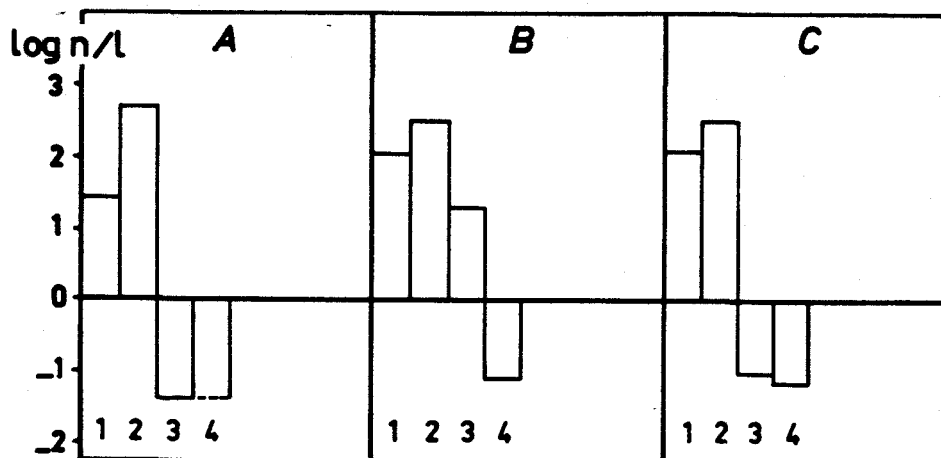
Tabel 5.6 - Bacteriën van de coligroep (aantal in log n/l)

* Onder trefkans wordt het percentage van voorkomen van afzonderlijk aangetoonde bacteriën verstaan. Het voorkomen wordt hier bepaald door achtereenvolgens membraanfiltratie van 500 ml water, incubatie van op het filter achtergebleven bacteriën op Teepolagar gedurende 14 uur bij 37 °C, tellen van het aantal kolonies en tenslotte het tellen van bacteriespecies afzonderlijk volgens de "Analytical Profile Index" voor Enterobacteriaceae (APIE), in een steekproef ter grootte van de wortel van het aantal kolonies.

Een juister beeld omtrent het zuiverende effect van duinzand wordt verkregen uit resultaten van bacteriologisch onderzoek van infiltratiepan 13 en peilput 351, die op 1,80 m afstand van het talud van deze pan is gelegen en peilput 195 op circa 10 m afstand. Het infiltratiewater heeft een reistijd tot beide peilputten van respectievelijk 2 en 10 dagen (zie voor een situatieschets van de monsterpunten hoofdstuk 2).

Duidelijk toont figuur 5.3, dat het voorgezuiverde Maasfiltratiewater sterk in kwaliteit vermindert door bacteriële verontreiniging door dieren in en op de infiltratievijvers.

Een verblijftijd van twee dagen in het duinpakket blijkt dan voldoende om bacteriën van de coligroep en fecale streptococci niet meer te kunnen aantonen, maar onvoldoende voor de sporen van sulfietreducerende clostridia, die door hun hogere resistentie langer overleven. Na een verblijftijd van 10 dagen kunnen echter ook deze organismen niet meer worden aangetoond.



Figuur 5.3 - Het gemiddelde aantal bacteriën van de coligroep (A), sulfietreducerende clostridia (B) en fecale streptococci (C) in 1981 (aantal waarnemingen = 27) bij: 1 = aanvoer infiltratiewater; 2 = pan 13; 3 = peilput 351 en 4 = peilput 195

De reductiecapaciteit van het duinpakket voor deze sporen bedraagt dan ruim 3 log-eenheden.

Extra vermeld dient te worden het voorkomen van *Clostridium botulinum* in bodemslib van de infiltratievijvers. Deze bacterie kan bij mens en dier onder bepaalde condities door toxineafscheiding de ziekte botulismus veroorzaken. In de zomer van 1971 werden zowel in bodemslib als vogelkadavers bacteriesporen van het type C aangetroffen.

Ook later onderzoek heeft uitgewezen, dat dit type altijd dominant wordt aangetroffen, doch dat ook een lichte contaminatie met type B aanwezig is, terwijl slechts éénmaal het type E werd aangetroffen. Hoewel hiernaar geen onderzoek heeft plaatsgevonden, zal verwijdering van deze sporen door het duinpakket vermoedelijk in dezelfde mate geschieden als van de reeds eerder behandelde sporen van sulfietreducerende clostridia.

Desondanks werd zowel in 1971, 1974 en 1979 geconstateerd, dat het slib in de verzamelkom ook zwaar besmet is met *Clostridium botulinum* en wel dominant met het type B. In het water van de verzamelkom kon echter nimmer *C. botulinum* worden gevonden (lit. 10).

Voor de reductie van het koloniegetal bij bodempassage geldt ook, dat het weglaten van de infiltratievijver als monsternamepunt tot foute conclusies zou leiden (tabel 5.7 en 5.8).

Betere resultaten, waarbij het water in pan 13 is betrokken, levert tabel 5.9. Figuur 5.4^a geeft een indruk van de sterke jaarlijkse fluctuaties in pan 13 en peilput 351.

Tabel 5.7 - Koloniegetal (22 °C) van aanvoer infiltratie- en teruggewonnen water in logn/ml

Jaar	Aanvoer infiltratie		Hoofdader		Jaargemiddelde		
	okt-mrt	april-sept	okt-mrt	april-sept	Aanvoer	Hoofdader	reductie in log-eenheid
1969	3,6	2,4	1,0	1,1	2,4	1,0	1,4
1970	1,8	2,1	0,8	1,3	2,1	1,2	0,9
1971	2,9	1,6	1,4	1,7	2,6	1,7	0,9
1972	3,8	1,7	1,9	2,2	2,5	2,1	0,4
1973	3,5	2,6	2,1	2,2	3,1	2,1	1,0
1974	3,6	2,1	2,3	2,0	2,7	2,1	0,6
1975	3,2	3,1	2,0	1,7	3,2	1,8	1,4
1976	3,2	2,3	2,2	2,2	2,5	2,2	0,3
1977	2,4	1,1	2,1	2,1	1,7	2,1	0,4
1978	2,6	2,2	2,2	2,3	2,6	2,2	0,4
69-78	3,3	2,4	2,0	2,0	2,7	2,0	0,7

Tabel 5.8 - Koloniegetal (37 °C) van aanvoer infiltratie- en terug gewonnen water (logn/ml)

Jaar	Aanvoer infiltratie		Hoofdader		Jaargemiddelde		
	okt-mrt	april-sept	okt-mrt	april-sept	Aanvoer	Hoofdader	reductie
1969	3,7	3,1	0,9	0,9	3,2	0,8	2,4
1970	2,4	2,0	0,7	1,0	2,4	0,9	1,5
1971	2,8	2,4	0,9	1,3	3,0	1,2	1,8
1972	3,4	2,5	1,4	2,2	3,1	2,1	1,0
1973	3,5	3,6	2,0	2,1	3,6	2,0	1,6
1974	3,4	2,5	2,0	2,5	3,0	2,3	0,7
1975	2,8	2,9	1,3	1,1	2,9	1,1	1,8
1976	1,8	1,9	0,8	1,5	2,0	1,3	0,7
1977	1,9	2,0	1,0	1,6	1,3	1,4	-0,1
1978	3,4	2,8	1,4	2,0	2,5	1,9	1,4
69-78	3,2	2,9	1,5	1,9	3,0	1,8	1,2

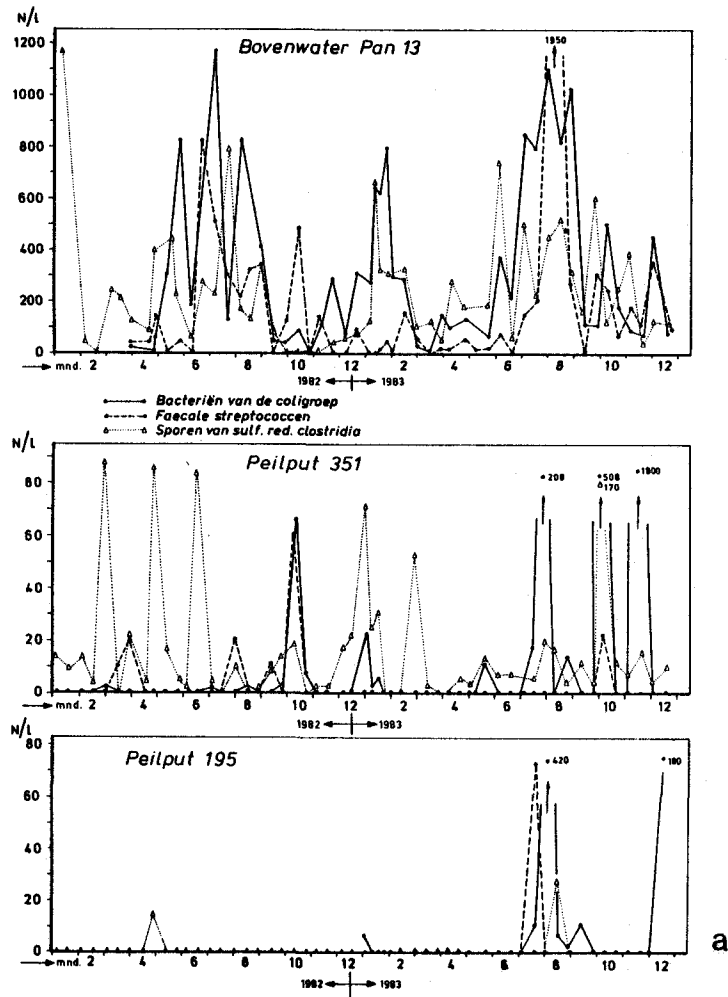
Tabel 5.9 - Koloniegetal (22 en 37 °C) van Maaswater in pan 13 en na 10 m bodempassage in pp 195

Jaar	Bemonstering	Koloniegetal 22 °C (logn/ml)	Koloniegetal 37 °C (logn/ml)	Aantal metingen
1977	pan 13	4,8	4,5	19
	pp 195	1,4	0,6	19
1978	pan 13	4,2	3,8	29
	pp 195	1,4	0,7	29

De reductie van het koloniegetal bedraagt nu na duinpassage ruim 3 log-eenheden. Deze reductie moet echter anders worden geïnterpreteerd dan die voor de micro-organismen, die indicatief zijn voor fecale verontreiniging. Het koloniegetal betreft namelijk een somparameter. Het infiltratiewater zal een heel andere bacterieflora bevatten dan het teruggewonnen water, daar een onbekend deel (mogelijk alles) door de bodempassage is verwijderd.

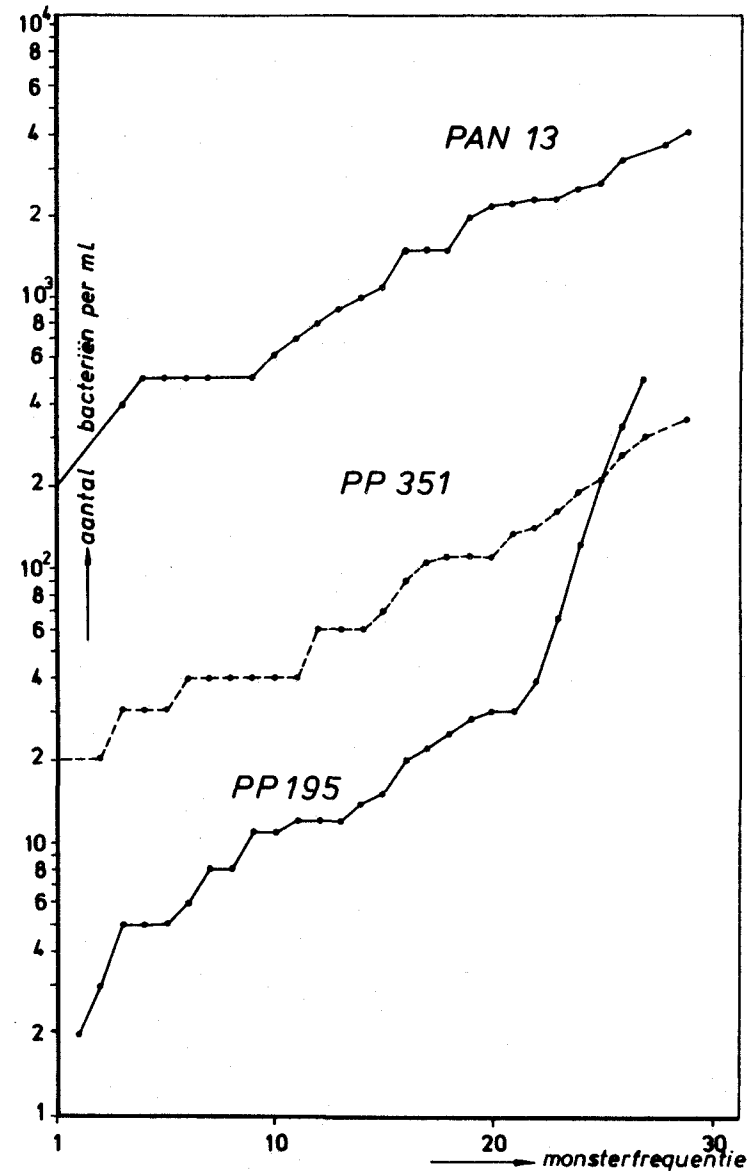
Het geïnfiltreerde water zal een bacteriebestand bevatten, dat merendeels de bacteriepopulatie in aantal en soorten reflecteert van de laag van het duinpakket van waaruit het water is teruggewonnen. Het koloniegetal geeft hiervan overigens een onvolledig beeld, omdat deze bepaling wordt uitgevoerd onder aerobe kweekomstandigheden met behulp van een voedingsrijk medium, dat weinig overeenkomst vertoont met het nutriëntarme, vaak anaerobe, diepere duinpakket. De obligaat anaeroben worden op deze wijze niet bepaald. Figuur 5.4b geeft het cumulatieve verloop van het koloniegetal 22 °C van pan 13 en de peilputten weer.

Het aandeel van de duininfiltratie in het gehele proces van de waterzuivering met betrekking tot de verwijdering van bacteriën, die indicatief zijn voor fecale verontreiniging, is weergegeven in tabel 5.10. Heel duidelijk blijkt hieruit de belangrijke barriere, die het duin opwerpt tegen de genoemde organismen ten opzichte van de overige zuiveringsstappen.



a

Fig.5.4 Aantal bacteriën in water uit pan 13 en de waarnemingsputten pp 195 en pp 351: (a) verloop met de tijd; (b) cumulatieve frequentie 1983.



b

Het huidige bacteriologisch onderzoek, dat vrijwel geheel gericht is op het aantonen van een fecale besmetting, biedt echter geen garantie, dat het geïnfiltreerde water nu ook vrij is van ongewenste microorganismen die een andere oorsprong hebben. Recent (lit. 19) is gebleken, dat bij afwezigheid van fecale bacteriën het water uit de hoofdader een hoog aantal aeromonaden kan bevatten. Aangevoerd zijn *Aeromonas hydrophila*, *A. sorbia* en *A. caviae*. Deze bacteriën kunnen in de nazuivering onder bepaalde omstandigheden nagroeien. De eerste twee zijn in staat sterke enterotoxinen te vormen (par. 5.2). Voor een volledige bacteriologische kwaliteitsbeoordeling van geïnfiltreerd water is onderzoek naar (potentieel) pathogenen noodzakelijk.

monsterpunt	waterbehandeling	bacteriën van de coligroep		fecale streptococci	sulfietreducerende Clostridia
		37 °C	44 °C		
Maas bij Heusden Inlaat pompstation	-	5,4 (-)	5,2 (-)	4,2 (-)	3,5 (-)
	verblijf in doorstroombekken - ijzer(II)sulfaat	4,1 (1,3)	3,7 (1,5)	2,9 (1,3)	2,4 (1,1)
Aanvoer infiltratie	transportchloring - snelfiltratie-transportchloring	1,9 (2,2)	1,6 (2,1)	1,4 (1,5)	1,8 (0,6)
infiltratievijver	-	2,8 (+0,9)	2,5 (+0,9)	2,3 (+0,9)	2,4 (+0,6)
Uit duin teruggevoerd water	duinfiltratie	0 (2,8)	-0,1 (2,6)	1,2 (1,1)	-1 (3,4)
Aanvoer snelfilters	poederkooldosering	1,8 (+1,8)	1,8 (+1,9)	1,4 (+0,2)	-0,3 (+0,7)
Aanvoer langzame zandfilters	snelfiltratie	0,7 (1,1)	0,7 (1,1)	1,1 (0,3)	-0,8 (0,5)
Drinkwater	Langzame zandfiltratie	-1,3 (2,0)	-1,4 (2,1)	-0,7 (1,7)	-1,3 (0,5)

Tabel 5.10 - Aantal micro-organismen in rivierwater (log per liter) en, tussen haakjes, het effect van de waterbehandeling op hun verwijdering uitgedrukt in log-eenheden (DWL Den Haag 1982, n = 52).

Humane enterovirussen

In de periode mei 1980 - mei 1981 is door het KIWA (lit. 2) een onderzoek gestart naar de invloed van duininfiltratie op de virologische gesteldheid van het geïnfiltreerde water. De volumina water, die daarbij bijna maandelijks in bewerking werden genomen, bedroegen voor de Maas 0,5-4 liter en voor de peilputten 351 en 195 en voor het verzamelde duinfiltraat 200-600 liter. De resultaten zijn vermeld in tabel 5.11.

De fecale belasting van de Maas blijkt uit de isolaties van humane enterovirussen uit kleine volumina in juli en in de periode oktober tot en met januari. In het resterende deel van het jaar moeten grotere volumina geconcentreerd worden om positieve resultaten te verkrijgen.

Dat de voorzuivering een sterke virusreductie tot stand brengt, blijkt uit het feit, dat in Maaswater

monster- naam- punt	Maas bij Hausden			Aanvoer infiltratie ps Scheveningen			duinpassage					
	Volume (l)	aantal (PFU)	virus- α typen	Volume (l)	aantal (PFU)	virus typen	Na 1 m (pp 351)		Na 10 m (pp 195)		duinfiltraat	
							Volume (l)	aantal (PFU)	Volume (l)	aantal (PFU)	Volume (l)	aantal (PFU)
mei 1980	0,5	1		500	1						500	1
juni	1	1		600	1		500	1			500	1
juli	1,7	10	10 CB4	500	1		500	1	500	1	500	1
augustus	1	1										
september	1,5	1		500	1		500	1	500	1	500	1
oktober	1,4	3	2 CB9 1 CB5	340	1		400	1			500	1
november	1	3	3 CB4	500	12	3 p2v 9 p3v			500	1	500	1
december	0,7	4	1 p2v 1 p3v 1 CB5 1 EL/8	470	1	1 p3v			500	1	500	1
januari 1981	0,5	3	1 CB4 2 ent.	390	1				500	1	390	1
februari	0,8	1		410	1x				500	1	500	1
april	4	1		500	1		500	1			200	1xx
mei				500	1		500	1			450	1

α = CB = Coxsackie B; CA = Coxsackie A; p2 en 3v = polio 2 en 3 vaccin-stam; E = ECHO; ent. = entero;
b = verzamelkon; x = schimmelinfectie; xx = toxisch voor openiercellen.

Tabel 5.11 - Resultaten van virologisch onderzoek bij de DWL, mei 1980-mei 1981

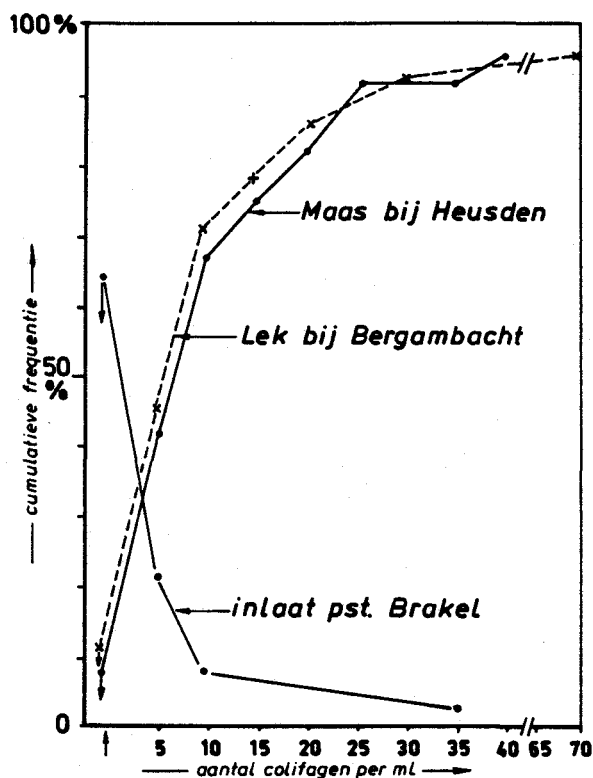
virussen aantoonbaar zijn in volumina van enkele liters, maar dat van het te infiltreren water ten minste 400 liter moet worden bewerkt om virussen te kunnen isoleren.

De gegevens, die bij dit onderzoek zijn verkregen, duiden erop dat, mede gezien de verblijftijd van het water in het duingebied, duininfiltratie gepaard gaat met virusverwijdering.

Ter verkrijging van grotere zekerheid hieromtrent zal het onderzoek moeten worden voortgezet.

Colifagen

In de periode 18 juni 1980 - 15 april 1981 is een oriënterend onderzoek verricht naar het effect van duininfiltratie op de verwijdering van bacterievirussen. Ondanks de in die periode vrij gebrekkige bepalingmethode (concentratie met behulp van de membraanfiltermethode onder nog niet optimale pH-omstandigheden, met als gastheer E.coli) kon toch de indruk worden verkregen, dat de faag-verwijdering niet ten alle tijde volledig is. Van de acht maal, dat pan 13 is onderzocht, kon in 75 % colifagen worden aangetoond. Het bij peilput 195 bemonsterde grondwater in deze periode was nog voor 38 % positief voor fagen. Deze resultaten stemmen niet overeen met die verkregen in 1977, toen een minder gevoelige gastheerbacterie gebruikt werd. De verwijdering van bacteriofagen bedroeg toen in alle gevallen (10 metingen) meer dan 3 log-eenheden. In 1983 is met een nieuwe gastheerstam (E.Coli CN) in de periode 8 maart-28 november een onderzoek verricht naar colifagen in ruw water. Vergelijkbaar met het virusonderzoek is gebleken, dat de voorzuivering in het Andelse Bekken een sterke bacteriofaagreductie tot stand brengt. Alleen in Maaswater kunnen zonder concentratiestap colifagen worden



Figuur 5.5 - Cumulatieve frequentie voor 1982 van het aantal colifagen per ml in de Maas bij Heusden, inlaat lage druk pompstation Brakel en de Lek bij Bergambacht (\downarrow = beneden detectiegrens van 1; aantal monsters = 27)

aangetoond. Figuur 5.5 toont aan, dat de Lek en Maas een colifaagconcentratie bezitten van ongeveer dezelfde orde van grootte en dat die voor het pompstation Brakel aanzienlijk lager ligt.

5.3.2 Onderzoek door PWN

Van oktober 1980 tot en met juni 1981 heeft in het infiltratiegebied van Wijk aan Zee een op de werking van het duin gericht onderzoek plaatsgevonden

mon- ster- punt	periode		t (dagen)	N	coli- bacte- riën 37 °C n/100 ml	fec. strept. 37 °C n/100 ml	s.r. clostr. 37 °C n/100 ml	KG 37 °C (meng) (n/ml 2 dgn)	KG 22 °C (strijk) (n/ml 10 dgn)
	van	t/m							
aanvoer c	06-10	15-06	0	20	1	0	½	3	1200
aanvoer b			0	7	36	4	3	11	2700
aanvoer a			0	13	½	0	0	2	265
pand 9	13-10	15-06	1,5	18	20	2	30	85	7350
M-3	17-10	12-06	5,5	18	0	0	0	1	280
M-4	21-10	16-06	9,5	16	0	0	0	0	30
M-5	06-11	11-06	25,5	11	0	0	0	0	75
M-6	07-11	05-06	26,5	10	0	0	0	2	45
M-7	26-02	18-06	50	9	0	0	0	0	15
M-8	24-02	09-06	50	9	0	0	0	0	40
M-9	11-03	03-06	50	7	0	0	0	0	0

t = verblijftijd in duin; N = aantal bemonsteringen; KG = koloniegetal; a = periode met Cl₂-dosering; b = periode zonder Cl₂-dosering; c = a + b

Tabel 5.12 - Mediaan waarden van de meest relevante bacteriologische parameters van de monsternamenpunten bij pand 9 in het infiltratiegebied bij Wijk aan Zee

(lit. 7). De figuren 2.4 en 2.11 geven een situatieschets van de monsternamenpunten bij pand 9. De resultaten van routinematige bacteriologische bepalingen zijn vermeld in tabel 5.12.

Geconcludeerd kan worden, dat van de grote aantallen indicatorbacteriën in pand 9 na enkele meters bodempassage nog maar een klein gedeelte is terug te vinden. Meestal is water dan al, bacteriologisch gezien, van drinkwaterkwaliteit.

Naast het vermelde, routinematige onderzoek is nog een aantal andere parameters bepaald. De resultaten hiervan zijn vermeld in de tabellen 5.13 en 5.14.

punt	14-10-1980		nov-dec. 1980	
	max. KG (n/ml)	AOC ($\mu\text{g}/\text{l}$)	max. KG (n/ml)	AOC ($\mu\text{g}/\text{l}$)
aanvoer	$5 \cdot 10^4$	15	$4 \cdot 10^4$	12
pand 9	$7 \cdot 10^4$	210	$2 \cdot 10^5$	60
M3	$4 \cdot 10^4$	12	$4 \cdot 10^4$	6
M4	-	-	$1 \cdot 10^4$	3
M5	-	-	$1 \cdot 10^3$	0,3
M6	-	-	$2 \cdot 10^3$	0,6
M7	$1 \cdot 10^4$	3	-	-

Tabel 5.13 - AOC-gehalte en maximaal koloniegetal (KG) van *Pseudomonas fluorescens* op enkele bemonsteringspunten van het PWN bij Wijk aan Zee

punt	datum 1981	max KG (n/ml)	AOC $\mu\text{g}/\text{l}$	denitrif. bacteriën n/100 ml	sulfaat red.bac. n/100 ml	NH_4^+ - nitrif. bacteriën n/100 ml	NO_2^- - nitrif. bacteriën n/100 ml
aanvoer	11-05	3×10^4	9	50	8	2	2
pand 9	18-05	-	-	2750	25	80	2
M-3	05-06	6×10^4	18	1600	2	25	25
M-4	16-06	7×10^2	0,2	80	2	350	8
M-5	11-06	7×10^2	0,2	20	2	2	2
M-7	21-05	1×10^4	3	550	2	5	2
M-9	06-05	1×10^4	3	80	12	130	80

Tabel 5.14 - AOC-gehalte en hoeveelheid (c.q. aan- of afwezigheid) van enkele bacteriesoorten van enkele monsterpunten. Alleen in M-9 zijn ijzerbacteriën aangetoond

Uit de tabellen 5.13 en 5.14 blijkt, dat het AOC-gehalte (AOC* = assimileerbaar organisch koolstof)

* Het AOC-gehalte wordt bepaald door na pasteurisatie van het monster een kleine hoeveelheid van een teststam (*Pseudomonas fluorescens*) te enten. Het maximale aantal, dat na groei van deze teststam wordt bereikt, is een maat voor de hoeveelheid assimileerbare organische stof. Dit aantal bacteriën kan worden uitgedrukt in $\mu\text{g}/\text{l}$ C-acetaat met behulp van een ijklijn die verkregen is door het maximale aantal bacteriën te bepalen bij verschillende concentraties natrium-acetaat.

van pand 9 duidelijk hoger ligt dan het AOC-gehalte van het aangevoerde water. Deze verhoging is in punt M-3 ongeveer verdwenen. In de verder gelegen punten kan zelfs nog een aanzienlijke verlaging optreden.

Van de afzonderlijke groepen van bacteriën (zie tabel 5.14) kan het volgende worden opgemerkt: het aantal denitrificerende bacteriën in de aanvoer is vrij laag. In pand 9 is dit aantal merkwaardig genoeg sterk verhoogd. Denitrificatie wordt hier immers geremd, aangezien het water veel zuurstof bevat. Het is echter mogelijk, dat het bemonsterde water veel geresuspendeerd bodemslib bevatte, waarin denitrificatie op grote schaal plaatsvindt (lit. 18). In de bodem neemt het aantal denitrificerende bacteriën af, totdat het water anaeroob is geworden bij punt M-7.

Voor de aan- en afwezigheid van sulfaatreducerende bacteriën, die pas sulfaat reduceren als zowel zuurstof als nitraat afwezig zijn, kan een analoge redenering worden aangehouden als voor denitrificerende bacteriën. Alleen in het meest anaerobe water kan men sulfaatreducerende bacteriën verwachten, in dit geval op punt M-9.

Een verklaring voor de gevonden aantallen ammonium- en nitriet-oxiderende bacteriën, is helaas niet te geven.

IJzerbacteriën kunnen slechts dan tot ontwikkeling komen als Fe^{2+} aanwezig is naast kleine hoeveelheden zuurstof. Dit is het geval in de buurt van M-9.

Infiltratie- en duinsecundairs

Het water, dat in het duingebied aanwezig is, wordt door middel van onderwaterpompen of door middel van een vacuümleiding uit de ondergrond gewonnen. Een aantal putten is verenigd in een strang. Eén of meerdere strangen komen samen bij een secundair

pompstation vanwaar het water verder wordt getransporteerd naar het hoofdpompstation om daar "en masse" gezuiverd te worden. Naar gelang het water, dat de secundairs winnen, maakt men onderscheid tussen infiltratie- en duinsecundairs. De infiltratiesecundairs zijn vanaf hun ingebruikname elke week, indien in gebruik, onderzocht op de aanwezigheid van coli-achtige bacteriën en op aantal kolonies bij 37 °C en 22 °C. De duinsecundairs werden 1 x per jaar of zoveel vaker als noodzakelijk onderzocht op coliformen 37 °C, soms ook op koloniegetal.

Resultaten

De resultaten zijn verdeeld in 3 categorieën:

- a-resultaat: geen coliformen/100 ml; koloniegetal 37 °C < 20/ml en koloniegetal 22 °C < 200 ml
- b-resultaat: geen coliformen; verhoogd koloniegetal
- c-resultaat: wel coliformen.

De resultaten van de infiltratiesecundairs M, N en O in het infiltratiegebied bij Castricum staan in tabel 5.15. De secundairs zijn bij elkaar opgeteld, omdat de afzonderlijke resultaten niet wezenlijk van elkaar verschilden.

	Sec M, N, O		Sec VI, VII	
	aantal	percentage	aantal	percentage
a-resultaat	2641	94,5 %	440	71,7 %
b-resultaat	112	4,9 %	116	27,0 %
c-resultaat	43	1,5 %	8	1,3 %
totaal	2796	100 %	614	100 %

Tabel 5.15 - Klassificatie van resultaten van infiltratiesecundairs M, N en O (Castricum) voor de periode maart 1963 tot en met oktober 1981, alsmede van infiltratiesecundairs VI en VII (Wijk aan Zee), in de periode oktober 1974 tot en met oktober 1981

De totalen van deze secundairs zijn zeer bevredigend, de gevonden coliformen waren voor het overgrote deel eenmalige afwijkingen. Tabel 5.15 vermeldt tevens de resultaten van de infiltratiesecundairs VI en VII van pompstation Wim Mensink (Wijk aan Zee). Ook deze 2 vertoonden grote onderlinge overeenkomst. Opvallend is hier het hoge percentage b-resultaten in vergelijking met M, N en O. Wat dit betreft vertoonde 1980 al een duidelijke verbetering en 1981 gaf voor beide secundairs hetzelfde goede beeld als voor M, N en O gewoon is.

De totalen van secundair C (ps Castricum) staan in tabel 5.16 vermeld. Secundair C wijkt af van andere infiltratiesecundairs omdat secundair C als infiltratie- en als duinsecundair gebruikt kan worden. Meestal staat secundair C als infiltratiesecundair geschakeld. Secundair C staat echter vaker af dan andere infiltratiesecundairs.

	maart 1972-okt. 1981		jan. 1973-okt. 1981	
	aantal	percentage	aantal	percentage
a-resultaat	272	82,7 %	248	85,5 %
b-resultaat	44	13,4 %	36	12,4 %
c-resultaat	13	4,0 %	6	2,1 %
totaal	329	100 %	290	100 %

Tabel 5.16 - Klassificatie van resultaten van secundair C (Castricum)

Secundair C vertoont een hoger percentage c-resultaten (coliformen aangetoond) dan andere infiltratiesecundairs (zie tabel 5.15, periode maart 1972-oktober 1981). Een groot aantal van deze resultaten concentreert zich in het eerste jaar na ingebruikname van secundair C. Na weglating van dit eerste jaar komt een wat gunstiger beeld naar voren (zie tabel 5.16, rechter kolom).

	aantal	percentage
a+b-resultaat	680	90,8 %
c-resultaat	69	9,2 %
totaal	749	100 %

Tabel 5.17 - Klassificatie van resultaten van alle duinsecundairs (ps Wijk aan Zee, ps Castricum, ps Bergen) in de periode maart 1963-oktober 1981

De duinsecundairs van de pompstations Wim Mensink, (Wijk aan Zee), Castricum en Bergen zijn niet alle regelmatig en veelvuldig in gebruik. Vaak worden zij speciaal voor bemonstering in gebruik gesteld. Van een groot aantal monsters van deze duinsecundairs zijn geen koloniegetallen bepaald, zodat de a- en b-resultaten zijn samengevoegd.

Resultaten van de duinsecundairs staan in tabel 5.17. Het percentage van het aantal monsters dat bacteriën van de coligroep bevat (c-resultaat), ligt hier duidelijk hoger dan bij de infiltratiesecundairs. Dit kan een gevolg zijn van een beduidend minder goede staat van onderhoud en van herbesmetting door tijdelijk een te hoge grondwaterstand.

5.4

Verwijderingsmechanismen bij langzame zandfiltratie

Bij verwijdering van micro-organismen door een zandpakket dragen zowel fysische (sedimentatie, filtratie, adsorptie) als biologische processen bij. Daar deze processen in het duinpakket nauwelijks empirisch zijn onderzocht, maar wel een inzicht als de langzame zandfilters, zal op ervaringen met de laatste worden ingegaan. In principe zullen zich in het duin dezelfde processen afspelen.

5.4.1 Biologische aspecten

Als te onderscheiden biologische processen wordt door onderzoekers meestal de werking van protozoën en meercellige organismen genoemd. Hoewel deze organismen in de kringloop van de voedselketen zeker bijdragen tot de eliminatie van bacteriën, zijn met betrekking tot de waterzuivering geen exact causale relaties aangetoond en wordt mogelijk de interactie tussen de betreffende organismen overschat. Ook wordt een actieve rol toegekend aan bacteriofagen en aan de parasitaire bacterie *Bdellovibrio* (lit. 12). Bij herhaling is vergeefs getracht colifagen aan te tonen in zand van langzame zandfilters van Den Haag (lit. 13). In gesloten nafilts, als laatste stap in de zuivering, is de werking van colifagen ook niet waarschijnlijk, daar deze zich alleen kan uiten op een zich delende bacterie van de coligroep. Voor vermeerdering van deze bacteriën ontbreken hier meestal de daarvoor noodzakelijke nutriënten en is veelal de watertemperatuur te laag. In infiltratievijvers en open nafilts met algengroei kan vermeerdering van bacteriën van de coligroep optreden en kan de colifaag mogelijk een rol gaan spelen bij de eliminatie van zijn gastheer.

Een oriënterend onderzoek naar de aanwezigheid van *Bdellovibrio* in grond en langzame zandfilters, duidt er vooralsnog op, dat deze bacterieparasieten geen rol van belang kunnen hebben. Het blijft echter voorlopig nog een punt van onderzoek.

Ook als bacterie-eliminierend mechanisme wordt een vorm van rivaliteit genoemd (lit. 14), waarbij bepaalde door bacteriën afgescheiden metabolieten en/of enzymen (bijvoorbeeld door *Pseudomonas* fluo-

rescens) toxisch zouden werken op darmbacteriën. Het elimineren van bacteriën kan echter ook door een andere vorm van rivaliteit plaatsvinden. De darmbacterie ziet zich immers in een voor haar niet natuurlijk milieu geplaatst tegenover hoge aantallen van de aan het substraat aangepaste bacteriegroepen en is dan sterk in het nadeel in de concurrentiestrijd om nutriënten. Dat het proces van inactivatie voor bacteriën van de coligroep een proces is van niet meer dan enkele dagen, kan theoretisch berekend worden uit de bacteriebelading van een langzaam zandfilter (tabel 5.18). Bij een gemiddelde wateraanvoer van $22 \text{ m}^3 \text{ dm}^{-2} \text{ j}^{-1}$ met 20 bacteriën van de coligroep per liter bedraagt de aanvoer per jaar van het filter circa $4.4 \cdot 10^5$ colibacteriën per dm^2 filteroppervlak. Teruggevonden werden in 1 dm^2 zandoppervlak (2 cm diep) "slechts" $3,3 \cdot 10^3$ colibacteriën, hetgeen overeenkomt met een hoeveelheid bacteriën, die aangevoerd wordt in circa 3 dagen.

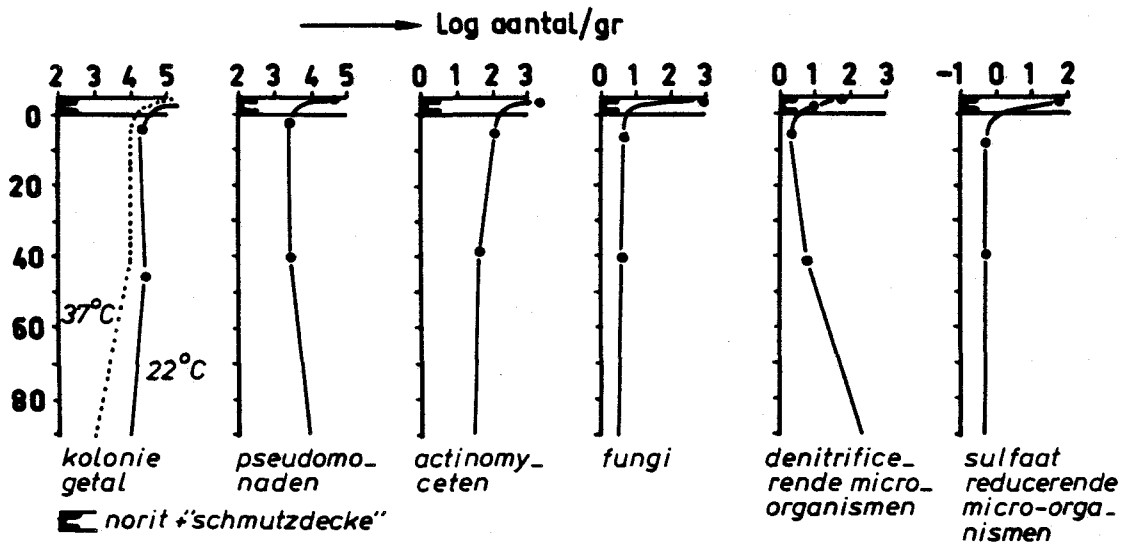
Dat de biologische activiteit het hoogst is in de bovenste laag van het zandbed tonen fig. 5.6 en 5.7 aan voor respectievelijk de aantallen van microorganismen en meercellige dierlijke organismen.

Figuur 5.8 toont dit nogmaals aan de hand van het Adenosinetrifosfaatgehalte (ATP) als parameter voor de totale hoeveelheid levende biomassa.

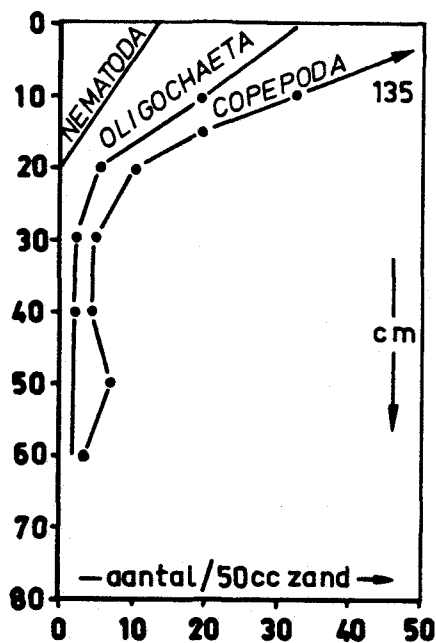
organismen	diepte			
	0-2 cm	35-40 cm	50-55 cm	105-112 cm
bacteriën van de coligroep (37 °)	6	< 0,03	< 0,03	< 0,03
bacteriën van de coligroep (45 °)	3	< 0,03	< 0,03	< 0,03
aerobe sporen koloniegetal*	1700	970	740	350
fungi	3100	1000	550	660
Actinomyceten	99	< 3	< 3	< 3
sulfietreducerende clostridia	2600	51	239	89
Clostridium botulinum	23	< 3	18	3
	0	0	0	0

* = bij 22 °C na 7 dagen incubatie op lablemcoagar (1:8)

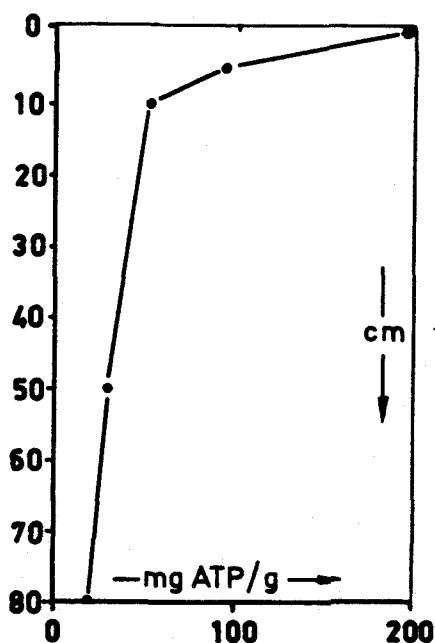
Tabel 5.18 - Bacteriologische zandbedbelading van een langzaam zandfilter (zonder koollaag; infiltratiesnelheid = 25 cm per uur, looptijd = 1371 dagen; DWL 1982)



Figuur 5.6 - Belading van een langzaam zandfilter met micro-organismen als functie van de diepte (cm-bovenkant)



Figuur 5.7 - Belading van een langzaam zandfilter met meercellige organismen als functie van de diepte



Figuur 5.8 - Concentratie van Adenosinetriphosfaat (ATP) in een langzaam zandfilter als functie van de diepte

Duidelijk blijkt hieruit, dat na de eerste 5 cm het ATP-gehalte is gedaald tot de helft en dat na 10 cm nog maar 20 % ten opzichte van het oppervlak wordt gemeten (200 mg ATP g⁻¹ over een diepte van 1 cm en een oppervlak van 1 m² komt overeen met ongeveer 1 gram biomassa).

5.4.2 Adsorptie

Door DWL 's-Gravenhage zijn enkele adsorptieproeven met de bacteriofagen ØX174, T4 en MS2 uitgevoerd op fracties zand afkomstig uit verschillende hoogten van een langzaam zandfilter (lit. 15). Deze proeven werden uitgevoerd in speciaal voorbehandelde cylin-

drische flesjes met schroefdop, inhoud 25 cc, waarin gelijke volumina van een faagsuspensie en zand werden gebracht. Na contacttijd van 18 uur werden de flesjes 10 minuten bij 3000 omw./min gecentrifugeerd. Door het aantal faagpartikels in de bovenstaande vloeistof te bepalen en deze te vergeijken met die van de blanco (idem zonder zand) kon het %-faagverwijdering worden bepaald.

Verder is getracht met behulp van een proefopstelling een indruk te krijgen van de verwijdering van bacteriofagen door langzame zandfilters. De volgende aanwijzingen konden hierdoor worden verkregen.

Tabel 5.19 toont, dat biologische processen geen directe rol spelen bij de colifaagverwijdering: geautoclaveerd zand verwijdert namelijk in dezelfde orde van grootte (1 log-eenheid) als zand, waarin de in het substraat aanwezige organismen niet zijn gedood.

Tabel 5.19 - Virusverwijderend vermogen van (A) ingewerkt en (B) geautoclaveerd nafilteerzand

filterbed diepte (cm)	Faag T4 (input = 1000 pfu/ml)		Faag ØX174 (input = 750 pfu/l)	
	A %	B %	A %	B %
0 - 3	95	93	98	94
3 - 6	95	96	100	95
6 - 9	95	92	99	94
9 - 12	94	96	95	96
12 - 15	90	95	94	96
15 - 18	93	89	97	91

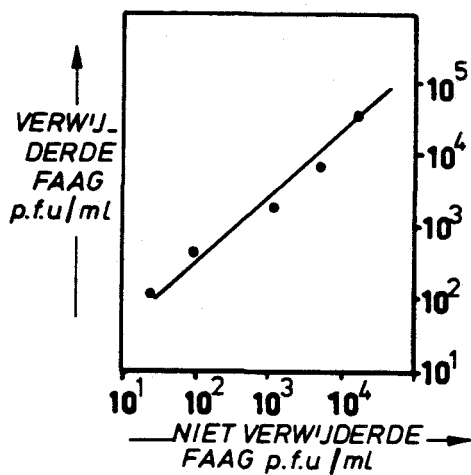
Slibachtige bestanddelen tussen het zand, die voor een groot deel uit organische stof bestaan, bleken in de eerste plaats verantwoordelijk te zijn voor de verwijdering van bacteriofagen. Gewassen zand verwijdert namelijk voor "slechts" 20-30 %.

Fig. 5.9 toont, dat de faagverwijdering een proces is van adsorptie, zoals blijkt uit de karakteris-

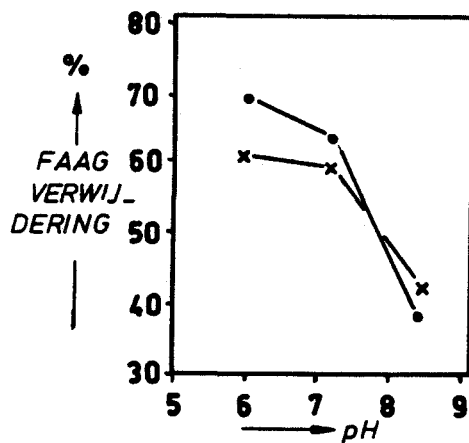
tieke lineaire Freundlicher adsorptie-isotherm.

Fig. 5.10 illustreert, dat, zoals te verwachten valt, de zuurgraad van invloed is op de adsorptie: bij een pH van 8,4 wordt 40 % tegen 70 % bij een pH = 6 verwijderd.

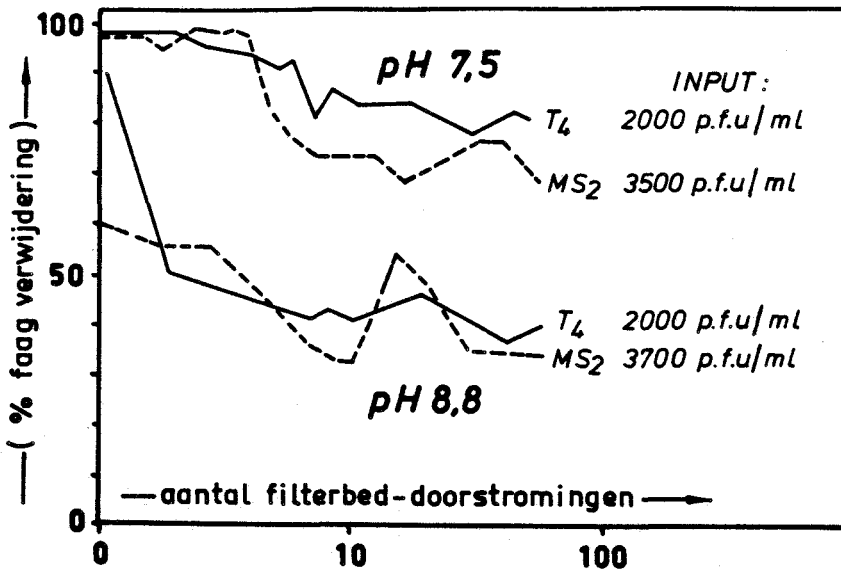
Deze pH-invloed blijkt te meer uit experimenten met de proefopstelling langzame zandfilters, waarin water met verschillende pH infiltreerde (fig. 5.11). Gemeend wordt hiervoor de volgende verklaring te kunnen geven. Het buitenste deel van het viruspartikel wordt gevormd door een eiwitkapsel, waardoor virusdeeltjes zich als amfotere eiwitten kunnen gedragen. Als de pH van de zand-water-"slurrie" stijgt, zal als gevolg daarvan de ionisatiegraad van de carboxylgroepen toenemen en die van de aminogroepen afnemen. De virussen zullen zich daarbij gedragen als anionen. Met het toenemen van de



Figuur 5.9 - Adsorptie isotherm van gewassen zand van een langzaam zandfilter voor faag ØX174



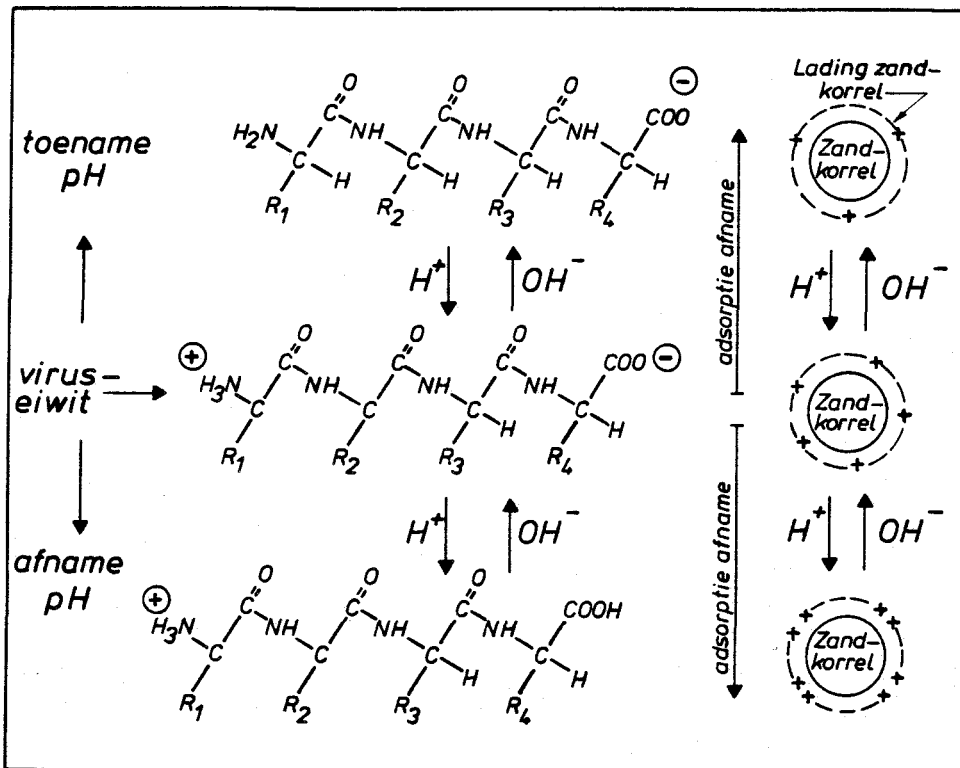
Figuur 5.10 - Invloed van de zuurgraad op de adsorptie van faag aan zand van een langzaam zandfilter



Figuur 5.11 - Invloed van de zuurgraad van het influent op de verwijdering van fagen bij doorstroming van een 10 cm hoog langzaam zandfilter (20 cm/uur)

pH zal gelijktijdig de negatieve lading van de bodemdeeltjes toenemen, terwijl die van de positieve ladingen afneemt.

Meestal overtreffen de negatieve ladingen de positieve, zodat een negatieve lading op de filterdeeltjes resulteert. Neemt de pH toe, dan stijgt ook deze negatieve lading. Onder deze omstandigheden zal de adsorptie minder effectief verlopen. Een sterke daling van de pH zal eveneens tot een verminderde adsorptie leiden, daar dan zowel het viruspartikel als het bodemdeeltje in positieve lading toeneemt (zie fig. 5.12).



Figuur 5.12 - Het effect van veranderingen in zuurgraad op de lading van het "eiwit-kapsel" van virussen en op de lading van zanddeeltjes en dus ook op het adsorptie-effect

Eenmaal geadsorbeerde virus kan niet of nauwelijks door een ingrijpende verhoging van de infiltratiesnelheid (van 60 cm/uur naar circa 10 m/uur) worden gedesorbeerd. Alleen bij verhoging van de pH worden de virussen van het zand geëluëerd en kunnen dan in het filtraat worden aangetoond. Aan het zand geadsorbeerde fagen konden voor een deel, zelfs na een half jaar, weer worden gedesorbeerd en aangetoond. Adsorptie van bacteriofagen kan dus beschouwd worden als het inleidende proces van eliminatie van het virus. De grootte van de uiteindelijke eliminatie zal afhangen van factoren, die bijvoorbeeld een eiwitdenaturatie bewerkstelligen.

5.5

Conclusies

Het gedeeltelijk voorgezuiverde rivierwater bevat relatief nog maar weinig bacteriën, die indicatief zijn voor fecale verontreiniging. In de infiltratiemiddelen wordt het water echter weer sterk verontreinigd met dierlijke faeces, voornamelijk van meeuwen en andere watervogels. Op deze wijze kunnen weer ziekteverwekkende organismen worden geïntroduceerd. In de buurt van meeuwenkolonies is het denkbaar, dat daarbij concentraties Salmonella bacteriën worden bereikt, die de voor de mens minimale dosis voor infectie overschrijden, mede doordat de infiltratievijvers over accumulerende eigenschappen beschikken.

Bodempassage in het duin blijkt zeer goed de aantallen van bekende organismen, die indicatief zijn voor fecale verontreiniging, met ruim 3 log-eenheden te kunnen reduceren. Gegevens van het PWN doen vermoeden, dat hierin de afgelopen 25 jaar geen verandering is gekomen. Ongeveer 2 dagen ondergrondse reistijd zijn voldoende voor een vrijwel volledige verwijdering van bacteriën van de coligroep en fecale streptococci. Voor de resistentere sporen van sulfietreducerende clostridia zijn echter meer dan 10 dagen ondergrondse reistijd nodig. De indruk is verkregen, dat eliminatie van bacteriën in een zandpakket vooral door biologische processen, zoals rivaliteit en afsterving wordt veroorzaakt. Daarnaast is adsorptie van belang. Gegevens, die door KIWA-onderzoek zijn verkregen, met betrekking tot enterovirussen duiden erop, dat mede gezien de verblijftijd van het water in het duingebied, duininfiltratie gepaard gaat met virusverwijdering. Hierbij zij vermeld, dat de virusbelasting via het voorgezuiverde Maaswater te gering

is geweest om de quantitative verwijdering met zekerheid te kunnen vaststellen. De indruk is verkregen, dat virusverwijdering vooral een proces is van adsorptie. Daar in de zomermaanden de pH door algengroei in infiltratiepanden tot boven 10 stijgen kan, behoort een desorptie van virussen van het duinzand tot de mogelijkheden. Onderzoek hiernaar is gewenst. Dat de pH in de infiltratiepanden zo sterk kan stijgen, is het gevolg van de hoge primaire productie van algen ten gevolge van de grote nutriënten rijkdom. Daardoor ontstaan met name op de bodem voor de bacterie *Clostridium botulinum* gunstige condities in de zomermaanden, wanneer de watertemperatuur hoog oploopt. Massale sterfte van watervogels kan zich daarbij voordoen met alle nadelige gevolgen die hieraan verbonden zijn. Terugdringen van de eutrofiëringsverschijnselen in water door verdergaande voorzuivering is daarbij een eerste vereiste. Wat dat betreft is de door de DWL sinds 1976 toegepaste kunstmatige fosfaatreductie in het Andels Bekken een stap in de goede richting.

Samengevat, kan gesteld worden, dat het duinpakket een zeer goede hygiënische zekerheid biedt in het proces van drinkwaterbereiding. Men moet zich echter realiseren, dat in de praktijk door een onjuiste bedrijfsvoering, zoals te hoge grondwaterstanden, kruisverbindingen en dergelijke, een groot deel van dit nuttig zuiverend effect van het duin teniet wordt gedaan. Tegelijkertijd impliceert dit tevens, dat het zuiveringssysteem dat na de duinfiltratie volgt, ook gesloten dient te zijn. Zo blijkt het duin zeer goed in staat te zijn sporen van sulfietreducerende clostridia tegen te houden. Niettemin kunnen sporen van *Clostridium botulinum* in grote volumina Haags drinkwater worden aange-

toond ten gevolge van herbesmetting in het gedeeltelijk open nazuiveringssysteem. Aangetoond is, dat Den Haag ten opzichte van andere duininfiltratie toepassende drinkwaterbedrijven hierin geen uitzonderingspositie inneemt (lit. 16).

5.6

Aanbevelingen

Onderzoek naar de accumulerende eigenschappen van infiltratiemiddelen c.q. bodemslib daarin, ten aanzien van onder andere Salmonella bacteriën, de bacterie Clostridium botulinum en virussen is gewenst. Wat de effecten van verwijdering van bodemslib zijn, vormt ook ten aanzien van de microbiologie een belangrijke vraag.

Andere belangrijke leemten in onze kennis bestaan uit: (a) de effecten van duininfiltratie op organismen, die darminfecties kunnen veroorzaken, zoals Campylobacter, Giardia lamblia en Aeromonas hydrophila; en (b) eventuele desorptieverschijnselen van in bodemslib c.q. duinzand geaccumuleerde virussen tijdens de zomermaanden, wanneer de pH in infiltratiemiddelen door algengroei boven 10 kan stijgen.

5.7

Literatuur

1. World Health Organization (1979): "Human viruses in water, waste water and soil". Technical Report Series nr. 639, Geneva, 50 blz.
2. Olphen, M. van (1981): "Virologisch onderzoek van drinkwater". KIWA-mededeling nr. 69.
3. Knecht, N.M. & Doornbos, L. (1983): "Bacteriologie voor laboratorium en kliniek, 1". Elsevier Amsterdam/Brussel, 1983 pag. 71.
4. Leclerc, H.; Mossel, D.A.; Triwei, P.A. en Gavini, I. (1977): "Microbiological monitoring - A new test for fecal contamination. ASTM. special technical publication 635.
5. Havelaar, A.H. (1982): "Microbiologisch onderzoek van drinkwater".
34e vakantiecursus in drinkwatervoorziening: "Microbiologie bij de waterbereiding, 7 en 8 januari 1982 te Delft.
6. Gavini, G. (1980): "Essai de differenciation des souches d'Enterobacteriaceae en fonction de leur Origine" Zbl. Bact. Hyg., I. Abt. Orig. (1), p. 188-192.
7. Havelaar, A.H. en Tips, P.D. (1980): "Thermotolerante klebsiellae in afvalwater van papier en suikerfabrieken". H₂O, 13, p. 210-212.
8. Kott, Y. (1980): "Viruses and bacteriophages". Proceedings of an International Symposium,

Noordwijkerhout, The Netherlands 27-29 augustus 1980, Studies in Environmental Science (12), Elseviers, p. 13-23.

9. Bonde, G.J. (1980): "Salmonella and other pathogenic bacteria". Proceeding of an international symposium Noordwijkerhout, the Netherlands 27-29 augustus 1980. Studies in Environmental Science 12, Elseviers, p. 1-11.
10. Drost, G. (1974): "Het voorkomen van Clostridium bij de winning en zuivering en de consequenties hiervan". Rapport DWL-'s-Gravenhage.
11. Tierie, R.M. (1981): "Enkele bacteriologische aspecten van duininfiltratie". Intern PWN rapport nr. 421.304.
12. Burman, A.D. (1978): "Slow sandfiltration". H₂O 16, p. 348-351.
13. Mulder, J. (1982): "Enkele praktische experimenten ter bepaling van bdellovibriobacteriovirus". Stageverslag DWL-'s-Gravenhage.
14. Burman, A.D. (1962): "Effluent and water treatment". ? p. 674-677.
15. Hoekstra, A.C. (1975): "Langzame zandfilters en bacteriofagen". Rapport DWL-'s-Gravenhage.
16. Rapport KIWA-werkgroep Botulisme (in voorbereiding).
17. Waterleidingbesluit (1984): "Besluit van 2 april 1984, houdende wijziging van het water-

leidingbesluit (Stb 1960, 345)". Staatsblad van het Koninkrijk der Nederlanden 1984 (220), 36 p.

18. Stuyfzand, P.J. (1985): "Kwaliteitsveranderingen van oppervlaktewater bij kunstmatige infiltratie in de Nederlandse kustduinen: Macroparameters". KIWA-mededeling nr. 82 in voorbereiding.
19. Hoekstra, A.C. (1984): "Aeromonas hydrophila in het Haagse drinkwater". Antonie van Leeuwenhoek tijdschr. Ned. Ver. Microbiol. (in druk).

6 ENIGE TOXICOLOGISCHE ASPECTEN

6.1 Inleiding

Sinds het begin van de jaren zeventig is de belangstelling voor toxische effecten van verontreinigingen in oppervlaktewater sterk toegenomen. Aanvankelijk werden met behulp van chronische toxiciteitstesten met vissen de nadelige effecten van een langdurige blootstelling aan verontreinigd oppervlaktewater op de ontwikkeling en groei aangetoond (Poels et al, 1980; Van der Gaag et al, 1983a). In kortdurende testen met vissen trad schade aan chromosomen op (Prein et al, 1978; Alink et al, 1980). In een volgend stadium werd de Salmonella/microsomale mutageniteitstest (Amestest) toegepast, waarmee uitsluitend genotoxische verbindingen worden opgespoord (Ames et al, 1977). Genotoxische stoffen kunnen beschadigingen (mutaties) veroorzaken in het erfelijk materiaal (DNA) van levende organismen. Mutaties in het DNA kunnen onder andere een rol spelen bij de vorming van tumoren, bij het ontstaan van erfelijke afwijkingen en bij verouderingsprocessen. Met de Amestest kunnen mutagene effecten echter niet direct in water worden aangetoond. Daarom wordt de Amestest bij het onderzoek van water alleen toegepast nadat de organische microverontreinigingen met behulp van een fysisch chemische procedure zijn geconcentreerd (Van der Gaag & Oranje, 1984). De meest succesvolle isolatieprocedures maken gebruik van het macroreticulaire hars XAD. Met behulp van verschillende XAD-isolatieprocedures zijn mutagene effecten aangetoond in de Amestest in monsters van oppervlaktewater in Nederland (Kool et al, 1981; Van Kreijl et al, 1980; Van der Gaag et al, 1982a en b).

Op grond van verschillende toxicologische metingen mag worden aangenomen, dat al vele jaren Rijn- en Maaswater met variabele concentraties aan toxische en genotoxische verontreinigingen is geïnfiltreerd in de duinen. Er zijn echter nog maar weinig gegevens beschikbaar over de chemische aard van toxische verontreinigingen, zodat chemische analyses slechts in beperkte mate inzicht geven in het gedrag van deze stoffen bij duinpassage.

Vanaf 1980 is op beperkte schaal onderzoek verricht naar de verandering van toxicologische eigenschappen van voorgezuiverd oppervlaktewater bij duinpassage. Dit onderzoek werd uitgevoerd met ei-larvale testen met forellen en met Amestesten in XAD-monsters. In dit hoofdstuk worden deze resultaten samengevat, met tevens aandacht voor het relatieve effect van de voor- en nazuivering ten opzichte van dat van de duininfiltratie.

6.2 De ei-larvale test met forellen

6.2.1 Methodiek

Eén van de methoden, waarmee toxische effecten van water gemeten kunnen worden, is de ei-larvale test met forellen (Van der Gaag et al, 1984). Hierbij worden forelleneieren vanaf de bevruchting gekweekt in het water, dat onderzocht moet worden. De kweekprocedure wordt uitgevoerd onder geconditioneerde omstandigheden (temperatuur, wateraanvoer, beluchting enz.) om een optimale vergelijking mogelijk te maken. Tijdens de embryolarvale ontwikkeling wordt de sterfte geregistreerd. Gedurende de larvale fase worden de ontwikkeling en de groei van de visjes gevolgd. Bij afronding van de proef worden de accumulatie van organochloor-verbindingen en het voor-

komen van geboorteafwijkingen gekwantificeerd.

In 1980 en 1981 zijn in samenwerking met Gemeentewaterleidingen Amsterdam ei-larvale testen met forelleneieren uitgevoerd te Leiduin, onder andere om inzicht te krijgen in de mogelijke invloed van duininfiltratie op toxische effecten van Lekwater (Van der Gaag & Van der Klift, 1982a en b). Bij het bespreken van de resultaten van de ei-larvale testen moet men zich realiseren, dat de bepalingen op het water vóór en na duinpassage gelijktijdig hebben plaatsgevonden. Het is technisch niet mogelijk om rekening te houden met verblijftijden in het duin, omdat forelleneieren alleen in januari-februari worden afgezet en omdat verschillende legfels niet direct vergelijkbaar zijn. Dit betekent, dat alleen globale verschuivingen kunnen worden bepaald.

6.2.2 Resultaten te Leiduin

In beide testen zijn er geen grote verschillen aangetoond tussen het water vóór en na infiltratie ten aanzien van de sterfte en ontwikkeling van de forelleneieren en larven (tabel 6.1). De residu analyse* van organochloor-verbindingen werd alleen in 1980 uitgevoerd. Bij de vissen, die in het water vóór infiltratie waren opgegroeid, werden penta- en hexachloorbenzenen en pentachlorothioanisol aangetoond. Na duinpassage is daarentegen geen van deze verbindingen meer aangetoond (tabel 6.2).

*Met de residu analyse van organochloorverbindingen in het vet wordt in deze test alleen de bioconcentratie bepaald. De bioconcentratiefactor is een evenwicht, dat zich instelt tussen de concentraties van de stof in het water en in het vetweefsel.

Tabel 6.1 - Overzicht van sterfte en groei in de eilarvale testen met forellen in Leiduin in de winters van 1980 en 1981

	vóór infiltratie	na infiltratie	controle
Jaar	1980/1981	1980/1981	1980/1981
Mortaliteit (%)			
- eieren*	10,5 / 19,6	9,6 / 22,4	4,6 / 18,0
- larven	2,5 / 5,1	2,9 / 4,6	2,5 / 3,3
Groei (mm/dag)	0,38/ 0,38	0,37/0,37	0,43/ 0,46

*In 1981 was het percentage onbevuchte eieren hoog. De mortaliteit voor de eieren is hiervoor niet gecorrigeerd.

Tabel 6.2 - Concentraties van organochloorverbindingen in forellen (in mg/kg vet) aan het einde van de ei-larvale test met forellen te Leiduin in 1980

	pentachloor- benzenen	hexachloor- benzenen	pentachloor- thioanisol
vóór infiltratie	1,40	2,30	0,75
na infiltratie	0,10	0,10	0,30

6.2.3 Conclusies

De gevoeligheid van de ei-larvale test met forellen was niet voldoende om een mogelijk verschil te kunnen meten in de toxische eigenschappen van water vóór en na duinpassage te Leiduin. Het enige duidelijke resultaat was, dat accumulerende organochloorverbindingen na duinpassage niet meer aantoonbaar zijn in het vetweefsel van de vissen.

6.3 Genotoxicologisch onderzoek met de Amestest

De Amestest biedt tot op heden de meeste mogelijkheden om de invloed van duininfiltratie op genotoxische verontreinigingen na te gaan. Het onderzoek op dit gebied is uitgevoerd door het KIWA en het RID. Beide maken gebruik van het macroreticulaire

hars XAD bij de isolatie van microverontreinigingen. Alvorens de resultaten van het onderzoek te bespreken worden de Amestest en de isolatieprocedures kort toegelicht.

6.3.1 Methodiek en interpretatie van gegevens

6.3.1.1 Achtergronden

Het genotoxicologische deel van het onderzoek wordt uitgevoerd met de Salmonella/microsomale mutageniteitstest ofwel Amestest (Ames et al, 1977; Van der Gaag & Oranje, 1984). Ames en medewerkers hebben een serie Salmonella stammen ontwikkeld, die extra gevoelig zijn voor genotoxische verbindingen. De bacteriën van deze stammen hebben onder andere een celwand, die grotere moleculen makkelijker laat passeren, en missen een systeem, dat schade aan het DNA kan herstellen. Tevens kunnen deze stammen niet groeien zonder het aminozuur histidine, omdat het vermogen om dit zelf te synthetiseren niet aanwezig is. Het onderzoek is uitgevoerd met twee stammen, waarvan het vermogen om histidine te synthetiseren hersteld kan worden hetzij via een frameshift-mutatie (TA 98) hetzij via een basenparens substitutiemutatie (TA 100; Ames et al, 1977). Dit betekent, dat met beide stammen in principe verschillende soorten genotoxische stoffen waargenomen worden.

Het DNA is structureel identiek in bacteriën en zoogdieren. Er bestaat echter een groot aantal verschillen tussen beide soorten organismen, zodat een relatie tussen Amestest-resultaten en de gevolgen voor de mens vooralsnog niet gelegd kan worden. Deze verschillen bestaan onder andere uit het opnamemechanisme van lichaamsvreemde stoffen (maag of darmwandpassage, celwand), de DNA-schade herstelsystemen of de immuumsystemen, in staat om gemu-

teerde cellen te verwijderen. Tevens kunnen zoogdierleverenzymssystemen mutagene stoffen onschadelijk maken (metabole inactivatie), of andere verbindingen (de zogenaamde promutagenen) omzetten in mutagene stoffen (metabole activatie). Deze stofwisselingsprocessen worden in de Amestest nagebootst door een rattenlever-enzympreparaat, de S9-mix, toe te voegen aan de voedingsbodem van de bacteriën.

6.3.1.2 Uitvoering

De Amestest wordt ingezet door 10 cellen, de XAD-fractie in de gewenste concentratie en eventueel de S9-mix toe te voegen aan 3 ml topagar. Deze topagar wordt uitgegoten over de in een petrischaal aanwezige bodemagar. Het geheel wordt daarna gedurende 63 uur geïncubeerd bij 37° C. Aan de topagar is een geringe hoeveelheid histidine toegevoegd, zodat alle cellen enkele malen kunnen delen. Tijdens deze delingen kunnen mutagene stoffen reageren met het DNA. Als een mutatie plaatsvindt, waarbij het vermogen om histidine te synthetiseren terugkeert, dan zal de desbetreffende cel in drie dagen uitgroeien tot een zichtbare kolonie. Door deze, zogenaamde revertant kolonies te tellen krijgt men een indruk van het aantal mutaties, dat is opgetreden in het histidine-gen. Als er geen genotoxische stof aan de voedingsbodem is toegevoegd, dan zal er toch een aantal spontane revertanten optreden. Dit aantal spontane revertanten is een specifiek kenmerk van elke stam.

Bij TA 98 varieert het aantal spontane revertanten tussen circa 15 en 50 revertanten per petrischaal en bij TA 100 tussen circa 90 en 160.

Een verbinding wordt als mutageen gekenmerkt in de

Amestest als:

1. er sprake is van een dosis-effect-relatie (toenemend aantal revertanten bij een toenemende concentratie van de stof);
2. de dosis-effect-relatie uitstijgt boven een grens die gerelateerd is aan het aantal spontane revertanten. In de praktijk komt dit overeen met een toename van circa 40 revertanten per plaat bij TA 98 en van circa 90 revertanten per plaat in TA 100.

In een aantal gevallen is een uitspraak over mutageniteit niet mogelijk, namelijk wanneer toxiciteit van het monster de groei verhindert. Deze toxiciteit kan veroorzaakt worden door niet-mutagene stoffen en hoeft niet in verband te staan met de mutageniteit van het monster.

Op dit ogenblik geldt de Amestest als een kwalitatieve bepaling voor genotoxiciteitsonderzoek. Voortzetting van het onderzoek in testen met hogere organismen zal moeten aangeven in hoeverre een mutageen effect voor bacteriën in de Amestest ook gevolgen heeft voor hogere organismen als de mens.

6.3.1.3 De XAD-isolatieprocedures

Bij het onderzoek naar het effect van duinpassage op de waterkwaliteit is gebruik gemaakt van twee isolatieprocedures, die hieronder kort worden besproken.

Het onderzoek bij DWL Den Haag werd uitgevoerd volgens de procedure zoals beschreven door Van Kreijl et al (1980). Hierbij werd 40 tot 80 liter van het te onderzoeken water gevoerd over een kolom met 10 ml XAD-hars (een mengsel van XAD-4 en XAD-8, 1:1) met een snelheid van 2 tot 4 bedvolumina per minuut. De geadsorbeerde microverontreinigingen wer-

den geëlueerd met één bedvolume dimethylsulfoxide (DMSO). Dit eluaat werd in twee of drie concentraties (0,1; 0,25 en 0,50 ml per plaat) getest in de Amestest.

Het onderzoek bij GW (Leiduin), PWN (Wijk aan Zee) en WMZ (Ouddorp) is uitgevoerd volgens de procedure beschreven door Van der Gaag et al (1982a) en Noordsij et al (1983, 1984). Hierbij werden organische verbindingen uit 300 liter water per monster geïsoleerd op twee kolommen gevuld met 300 ml XAD-4. Nadat het water de eerste kolom was gepasseerd, werd het aangezuurd tot pH 2 met zoutzuur. De loop-snelheid bedroeg een bedvolume per minuut. Elke kolom werd geëlueerd met achtereenvolgens 5 bedvolumina ethanol en 5 bedvolumina van een mengsel van ethanol en cyclohexaan. De monsters werden geconcentreerd door middel van azeotrope destillatie. Met deze methode worden twee fracties verkregen, die lipofiele (pH 7) ofwel matig hydrofiele verbindingen (pH 2) bevatten.

Bij deze bepalingen kwamen de hoogst geteste concentraties overeen met 2 liter equivalenten water in Den Haag en Wijk aan Zee, 4 tot 5 liter equivalenten in Leiduin en 5 tot 6 liter equivalenten in Ouddorp. De resultaten moeten worden gezien tegen de achtergrond, dat de XAD-isolatieprocedures slechts een selectie van stoffen isoleren, die een deel van het totaal aan organische verbindingen in water vertegenwoordigen.

6.3.2 Resultaten GW

6.3.2.1 Locaties van bemonstering

Te Leiduin zijn drie monsternameruns met betrekking tot het water vóór en na duininfiltratie uitgevoerd, achtereenvolgens in de lente en herfst van

1980 en in de lente van 1981 (Van der Gaag et al, 1982c). De monsters vóór infiltratie werden genomen op het punt waar het water afkomstig van de WRK in Leiduin aankomt (de verdeelvijver). De monsters na duinpassage werden genomen na snelfiltratie (SF-17). Bij dit snelfilter was geen poederkooldosering toegepast. De monsters zijn ter plaatse geïsoleerd met XAD bij pH 7 en pH 2. De monsters zijn altijd genomen enkele maanden na het instellen of stopzetten van de transportchloring door WRK.

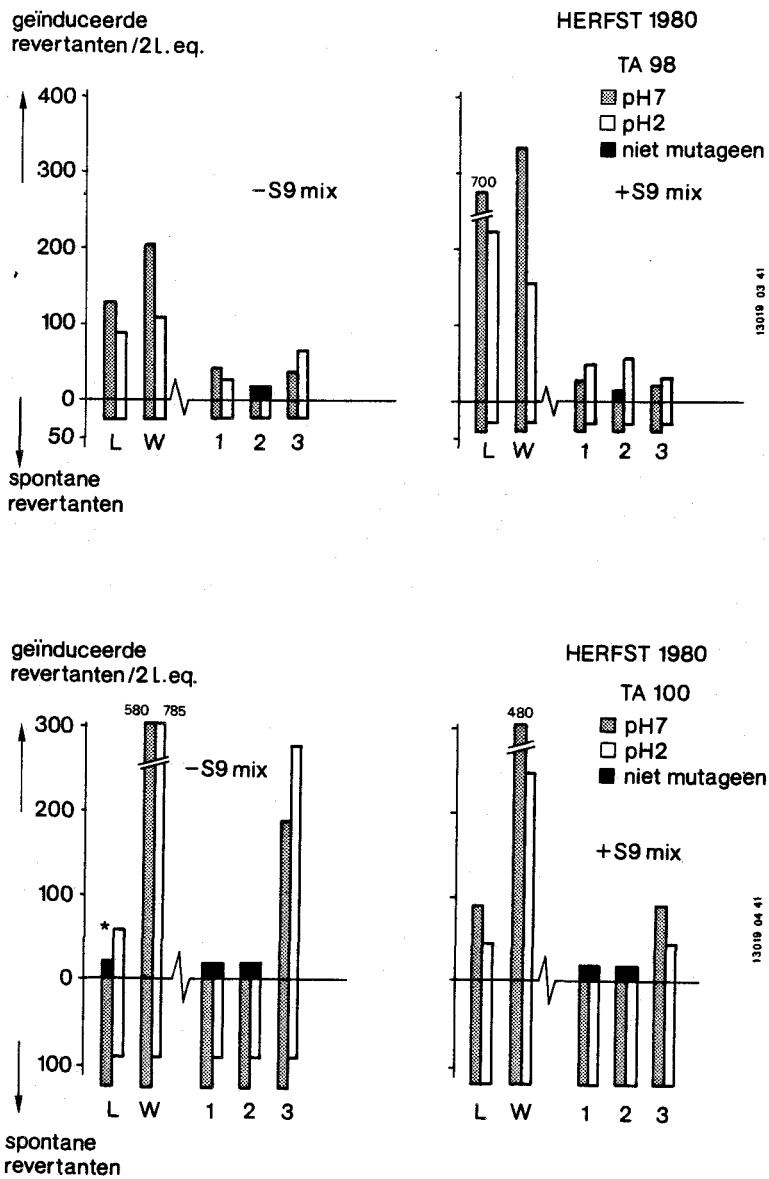
In de periode van september tot november 1982 werd de mutageniteit tijdens bodempassage gevolgd door bemonstering van waarnemingsputten, gelegen op verschillende afstanden van infiltratiegeul 12 (zie figuur 2.12; Van der Gaag et al, 1983b). In de puttenreeks 337.6, 336.6 en 335.6 werd aerob water bemonsterd, in put 337.5 anaerob water.

6.3.2.2 Effect voorzuivering

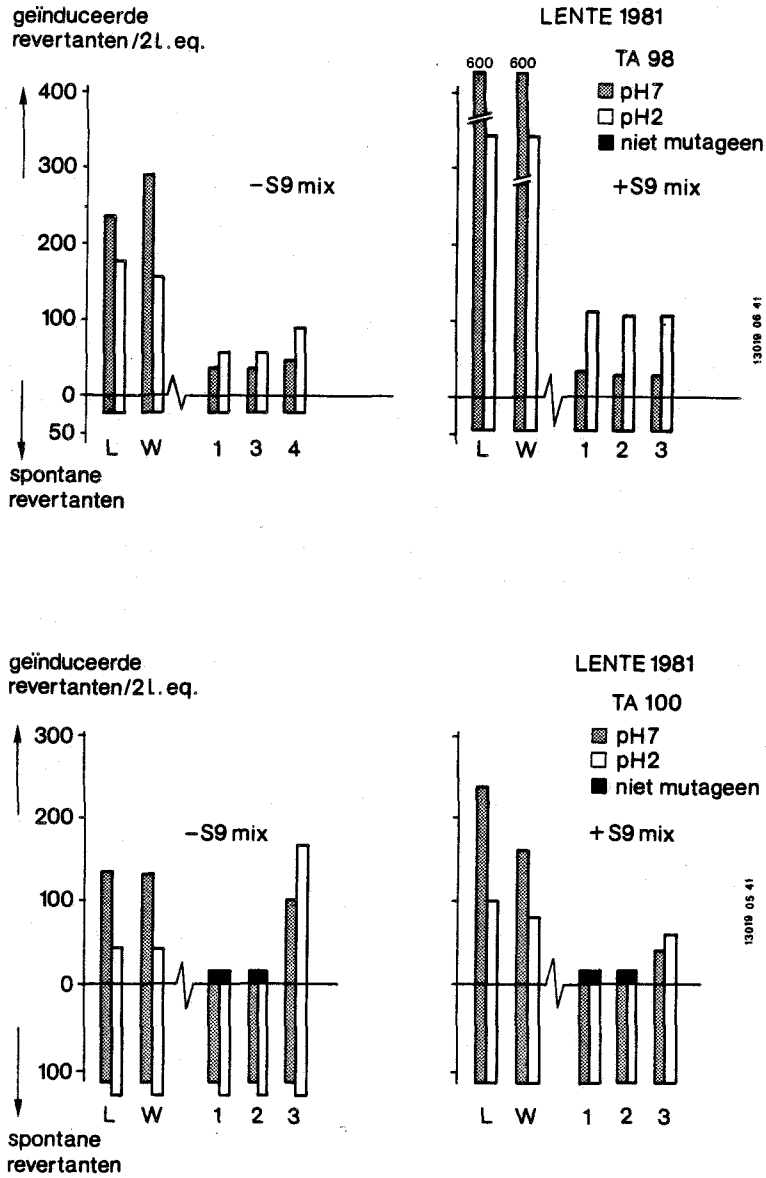
De voorzuivering van het Lekwater door middel van coagulatie, sedimentatie en snelfiltratie had geen duidelijke invloed op het mutagene effect (fig. 6.2). In de herfstperiode veroorzaakte de transportchloring een duidelijke verhoging van het mutagene effect voor stam TA 100 (fig. 6.1).

6.3.2.3 Totale effect duininfiltratie

Met TA 98 was het mutagene effect in de neutrale fractie bij alle 3 de monsternumerus lager na duinpassage dan ervoor. Zonder S9-mix was de mutagene respons 4 tot 10 maal lager in SF-17 dan in WRK-water (fig. 6.1 en 6.2). In de test met S9-mix was dit verschil nog groter. In de zure fractie was de mutagene activiteit van SF-17 kleiner dan in het WRK-duininfluent. In de test zonder S9-mix bedroeg



Figuur 6.1 - Mutagene effecten van XAD-monsters van het water vóór en na duinpassage en tijdens de nazuivering in Leiduin - herfst 1980. Boven: TA 98. Onder: TA 100. L = Lekkanaalwater; W = aangevoerd water van WRK (gechloord); 1 = effluent SF-17 (snelfilter zonder poederkooldosering); 2 = nafiltraat; 3 = nafiltraat na chloordosering.



Figuur 6.2 -Mutagene effecten van XAD-monsters van het water vóór en na duinpassage en tijdens de nazuivering in Leiduin - lente 1981. Boven: TA 98. Onder: TA 100. L = Lekkanaalwater; W = aangevoerd water van WRK (ongechloord); 1 = effluent SF-17 (snelfilter zonder poederkooldosering); 2 = nafiltraat; 3 = nafiltraat na chloordosering.

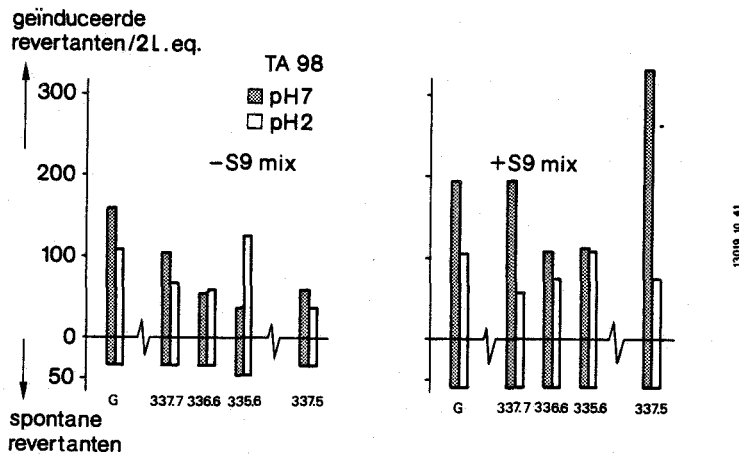
de mutagene respons zonder S9-mix in SF-17 nog altijd de helft tot eenderde van de omvang van de respons in de WRK (fig. 6.1 en 6.2). Men moet deze verschillen met de nodige voorzichtigheid hanteren, omdat ze mede worden bepaald door de hoogte van de mutagene respons van het geïnfiltreerde water. Deze respons kan echter schommelen. Wel geven deze factoren echter in grote lijnen aan, dat het verschil in mutagene respons tussen het water vóór en na duinpassage groter was in de lipofiele fractie (pH 7) dan in de matig hydrofiele fractie (pH 2). Dit beeld wordt bevestigd, doordat bekend is, dat de mutagene respons van de neutrale fracties van Rijn- en Lekwater met TA 98 tot nu toe altijd hoger was dan in de zure fractie op hetzelfde tijdstip. Uit de waarnemingen in SF-17 blijkt, dat er na duininfiltratie een omgekeerde verhouding bestond (fig. 6.1 en 6.2).

Met TA 100 werd na infiltratie geen enkel mutageen effect aangetoond. Met deze stam is de mutagene respons van het WRK- water sterk afhankelijk van de toepassing van transportchlooring. In de zomer en herfst is de mutagene respons hoog (fig. 6.1) en in de winter en lente relatief laag (fig. 6.2). Desondanks zijn geen mutagene effecten aangetoond in SF-17 (fig. 6.1 en 6.2).

6.3.2.4 Details bodempassage

Detailonderzoek in het aerobe deel van het eerste watervoerend pakket gaf een zelfde beeld te zien als in het globale overzicht (fig. 6.3). Er trad een totale verwijdering op van het mutagene effect voor TA 100 al tijdens de eerste meters duinpassage. Het mutagene effect in TA 98 nam tussen infiltratiegeul 12 en put 337.6 af. Op grotere afstand waren de verschillen tussen de putten gering. De

uiteindelijkke verlaging van het mutagene effect was echter niet zo groot als verwacht op grond van de metingen van water uit de Oranjekom na snelfiltratie (SF-17 in fig. 6.1 en 6.2). Ook in het anaerobe deel van het eerste watervoerend pakket trad een verlaging op van het mutagene effect voor TA 100 en voor TA 98 in de pH 2 fractie. In TA 98 met S9 was het mutagene effect van de pH 7 fractie echter enkele malen hoger dan in infiltratiegeul 12 (fig. 6.3)!



Figuur 6.3 - Mutageen effect XAD-monsters van het water tijdens duinpassage in een puttenraai te Leiduin (september-november 1982). G = geul; 337.7 = na 1 week; 336.6 = na 3 weken; 335.6 = na 9 weken; 337.5 = na 4 weken (anaeroob)

6.3.2.5 Effect nazuivering

Vergeleken met het verschil in mutageen effect vóór en na duininfiltratie is de invloed van de nazuivering in de verlaging van de mutagene respons gering. Door poederkooldosering, snelfiltratie en langzame zandfiltratie trad geen meetbare verande-

ring op in het mutagene effect (fig. 6.1 en 6.2, SF-17 vs. Reinwater). Het mutagene effect van het nafiltraat voor stam TA 100 nam toe na chloring, vooral in de zure fractie. Deze respons was in de test met S9-mix lager (fig. 6.1 en 6.2). Dit wijst erop, dat verbindingen, die met chloor reageren om mutagene stoffen te vormen, in de neutrale fractie in mindere mate aanwezig waren dan in de zure fractie. Deze toename was veel lager dan de toename, geconstateerd bij chloring van Lekwater na snelfiltratie (Van der Gaag & Oranje, 1984).

6.3.3 Resultaten overige gebieden

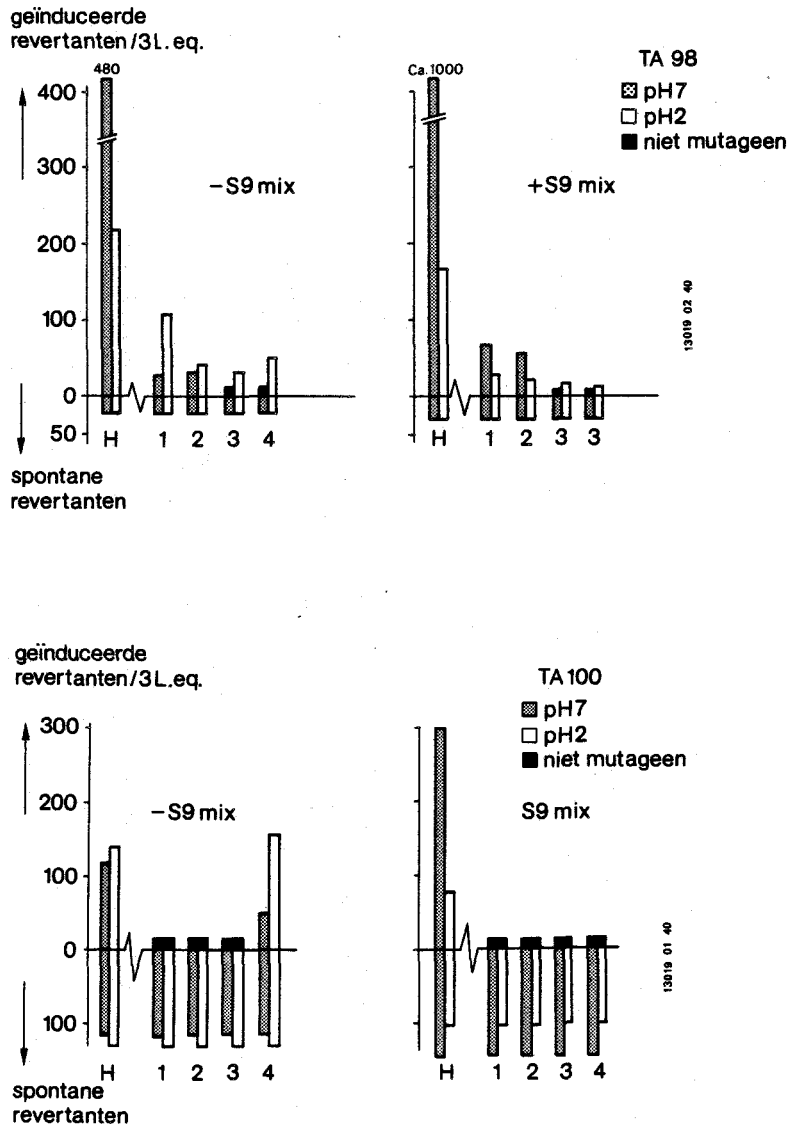
6.3.3.1 Ouddorp

De gegevens van het onderzoek bij de WMZ te Ouddorp komen grotendeels overeen met de waarnemingen te Leiduin. Ook hier was de mutagene respons in het water na duininfiltratie lager dan in het geïnfiltrateerde Haringvliet-water (fig. 6.4; Van der Gaag et al, 1982d). Met stam TA 98 zonder S9-mix was het mutagene effect van het water na duinpassage in de zure fractie hoger dan in de neutrale fractie (fig. 6.4). Met TA 100 is geen mutageen effect meer aangetoond na duinpassage (fig. 6.4). Behandelingen als ozonisatie of koolfiltratie verlaagden nog het relatief lage mutagene effect na duinpassage (fig. 6.4). Ook na koolfiltratie waren echter nog verbindingen in het water aanwezig, die met chloor reageerden, waardoor mutagene stoffen werden gevormd (fig. 6.4). Deze waren mutageen in TA 100 en werden vooral geïsoleerd in de zure fractie. Met S9-mix was dit mutagene effect niet meer waar te nemen.

6.3.3.2 Wijk aan Zee

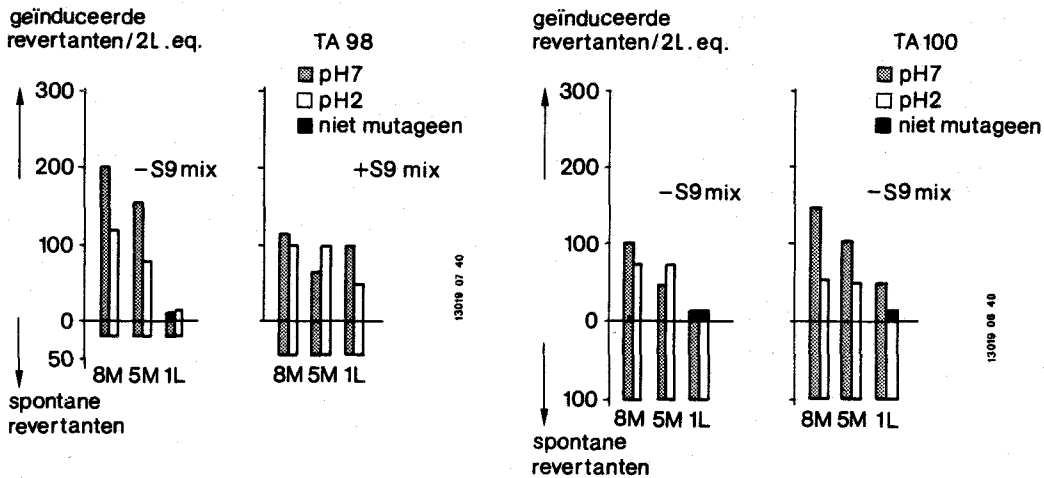
Ook in waarnemingsputten in het infiltratiegebied

van het PWN bij Wijk aan Zee (zie fig. 2.11) werd een lagere mutagene respons waargenomen naarmate het water een langer infiltratietraject had afge-



Figuur 6.4 - Mutagene effecten van XAD-monsters vóór en na duinpassage en tijdens de nazuivering te Ouddorp. Boven: TA 98. Onder: TA 100. H = aangevoerd Haringvlietwater; 1 = na duinpassage; 2 = na ozonisatie; 3 = na koalfiltratie (1 jaar looptijd); 4 = na chloordosering.

legd (fig. 6.5; Van der Gaag et al, 1982e). Op grond van de waargenomen effecten is het echter waarschijnlijk, dat een deel van het bemonsterde water van put 1 L nog afkomstig was van ongechloord WRK-water, terwijl het bemonsterde water van de waarnemingsputten 8 M en 5 M vooral afkomstig was van gechloord WRK-water. Vanwege dit kwalitatieve verschil is het niet mogelijk om vèrgaande conclusies te verbinden aan de resultaten van dit onderzoek.



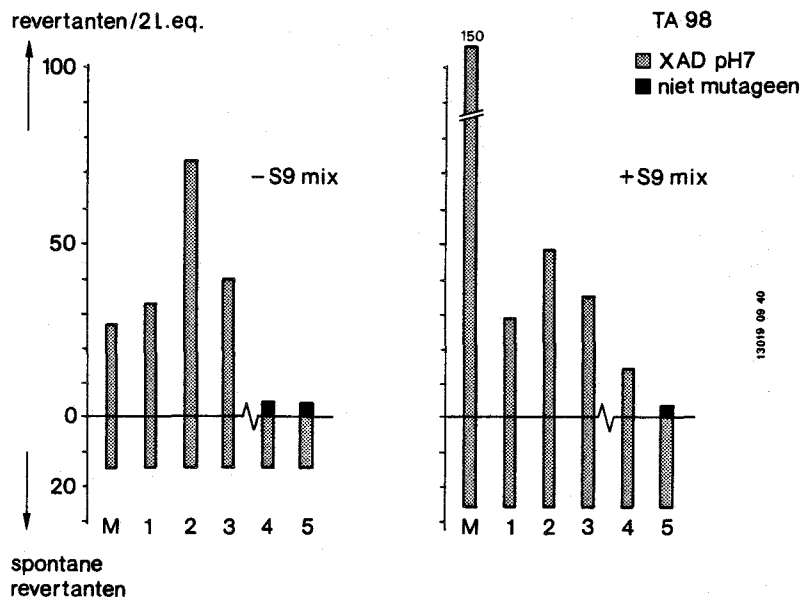
Figuur 6.5 - Mutagene effecten van XAD-monsters van het water tijdens duinpassage in een waarnemingsputtenreeks in het infiltratiegebied bij Wijk aan Zee.

6.3.3.3 DWL-'s-Gravenhage

Het onderzoek bij de DWL (Van Oorschot, 1980) is uitgevoerd met een neutrale fractie volgens de RID-procedure. Ook hier werd echter infiltratiewater bemonsterd, dat een transportchloring had ondergaan. Gezien het tijdstip van bemonstering (april) is het waarschijnlijk, dat het water, dat na de duinpassage werd bemonsterd, niet was gechloord vóór de infiltratie, zodat in feite beide watertypes niet

vergeleken mogen worden (fig. 6.6). Na duinpassage werd alleen met TA 98 met S9-mix een mutagene respons waargenomen (fig. 6.6).

Ten aanzien van de voorzuivering geldt, dat mogelijk een kwalitatieve verandering is opgetreden tijdens het verblijf in de Andelse Maas. In de Maas worden namelijk regelmatig promutagene effecten aangetoond met TA 98, terwijl in het monster bij de inlaat van het pompstation Andelse Maas het mutagene effect met TA 98 zonder en met S9-mix gelijk was (fig. 6.6). Het is echter ook mogelijk, dat polder-



Figuur 6.6 - Mutageen effect van XAD-monsters van het water tijdens de stadia voorzuivering, duininfiltratie en nazuivering bij de DWL. M = Maaswater (Heusden); 1 = ingenomen water p.s. Andelse Maas; 2 = na transport chloring; 3 = vóór infiltratie; 4 = na infiltratie; 5 = drinkwater.

bemaling heeft bijgedragen tot deze verlaging. De transportchloring verhoogde het mutagene effect. De poederkooldosering in het water na duinpassage lijkt het mutagene effect te verlagen (fig. 6.6). Ook hier hebben de bemonsteringen vóór en na de poederkooldosering evenwel niet gelijktijdig plaatsgevonden.

6.3.4 Discussie

Het onderzoek met de Amestest naar de invloed van duininfiltratie op mutagene effecten van geïnfiltriseerd water, heeft in de meeste gevallen op incidentele basis plaatsgevonden. Dit betekent, dat slechts in beperkte mate, of geheel niet, rekening gehouden is met de voorgeschiedenis van het water, dat na infiltratie is bemonsterd: het monster van te infiltreren water kon meestal niet vergeleken worden met het water na duinpassage.

Beperkte conclusies zijn mogelijk, omdat informatie beschikbaar is over de kwalitatieve en semi-kwantitatieve kenmerken van de mutagene respons van Rijn- en Maaswater. In Rijn- en Lekwater is de mutagene respons met stam TA 98 zonder S9-mix altijd hoger in de neutrale fractie dan in de zure fractie (Van der Gaag et al, 1982a en b; RIWA, ongepubliceerde gegevens). Na infiltratie werd in Leiduin gevonden, dat de mutagene respons in de zure fractie meestal hoger was dan in de neutrale fractie. Deze verschuiving duidt erop, dat de respons van lipofiele mutagene componenten bij duinpassage sterker afneemt dan van hydrofiele mutagenen. In de bemonstering bij Ouddorp werd eenzelfde tendens waargenomen, terwijl bij Wijk aan Zee dit effect niet zo duidelijk aanwezig was.

Bij de DWL zijn mutagene verbindingen aangetoond in

het water na duinpassage in de neutrale fractie. Deze mutagene respons was relatief laag. Recent onderzoek van Maaswater in 1981 (RIWA, 1982) heeft aangetoond, dat in deze rivier het mutagene effect met TA 98 zonder S9-mix van de zure fractie regelmatig even groot tot viermaal groter was dan in de neutrale fractie op hetzelfde tijdstip. Dit betekent, dat er op dit moment nog geen inzicht bestaat omtrent het gedrag van matig hydrofiele mutagenen tijdens duinpassage in dit gebied, terwijl dergelijke verbindingen wel zijn aangetroffen in het ruwe water.

Een beperkt, gedetailleerd onderzoek van het water tijdens duinpassage te Leiduin toonde aan, dat naast de globale afname van het mutagene effect ook plaatselijk in het duinpakket verhogingen kunnen optreden. Met name is niet bekend in hoeverre de verhoging van het mutagene effect in de pH 7 fractie van TA 98 met S9 mix in het anaerobe pakket uiteindelijk kan bijdragen in een mutageen effect van het teruggewonnen water. Over de oorzaak van een dergelijk hoger mutageen effect kan op dit ogenblik alleen nog maar gespeculeerd worden. Accumulatie en (anaerobe) biologische processen lijken hierin een rol te kunnen spelen.

Het uitgevoerde onderzoek heeft nog geen duidelijkheid gegeven over de relatieve bijdrage in de verandering van het mutagene effect tijdens het verblijf in drains en kanalen na infiltratie ten opzichte van de duinpassage. Op basis van de thans beschikbare gegevens lijkt de verlaging van mutagene effecten tijdens duinpassage zodanig te zijn, dat de bijdrage van voor- en nazuivering in deze kwaliteitsverbetering relatief beperkt blijft.

6.4 Conclusies

- Toxicologische testen met vissen zijn op grond van technische aspecten en een te geringe gevoeligheid minder geschikt voor een evaluatie van de invloed van duinpassage op toxische eigenschappen van het geïnfiltreerde water.
- De enige bruikbare conclusie van het ei-larvale onderzoek met forellen is, dat bioconcentrerende organochloor-verbindingen na duinpassage niet meer werden aangetoond.
- Het onderzoek van XAD-monsters met de Amestest biedt momenteel de beste mogelijkheden om het gedrag van genotoxische stoffen tijdens duinpassage te volgen.
- Bij alle oriënterende onderzoeken werd aangetoond, dat het mutagene effect van XAD-fracties in de Amestest vóór infiltratie hoger was dan erna.
- De verlaging van de mutagene activiteit was meestal sterker in de XAD pH 7 fractie (lipofiele verbindingen) dan in de XAD pH 2 fractie (matig hydrofiele verbindingen).
- De afname van mutagene effecten in waarnemingsputten was echter niet zo sterk als op grond van de metingen in het totale teruggewonnen water kon worden verwacht. Aspecten betreffende verdunningseffecten en kwaliteitsveranderingen in aan- en afvoerkanalen werden echter niet betrokken bij het onderzoek.
- Plaatselijk werd eenmaal een hoger mutageen effect waargenomen in een anaeroob watervoerend pakket. De oorzaak daarvan is niet bekend.
- De verlaging van het mutagene effect onder invloed van duininfiltratie was zodanig, dat voor- en nazuivering nog slechts in geringe mate konden bijdragen aan verdere kwaliteitsverbetering.

6.5 Aanbevelingen voor nader onderzoek

- Langdurend onderzoek met vissen biedt op dit ogenblik geen perspectief bij de analyse van processen bij duinpassage.
- Een uitzondering hierop zou zijn de analyse naar residuen van organochloor verbindingen in vetweefsel van vissen die van nature in de infiltratiegebieden aanwezig zijn.
- Nader detailonderzoek met bijvoorbeeld de Amestest lijkt noodzakelijk om meer inzicht te verschaffen in de processen, die een rol spelen bij verwijdering van genotoxische effecten tijdens duinpassage. Dit onderzoek zou zich kunnen toespitsen op de aard van de verwijderingsprocessen (adsorptie, afbraak) en op het mogelijke optreden van doorslag.

6.6 Literatuur

Alink, G.M., Frederix-Wolters, E.M.H.,
Van der Gaag, M.A.; Van de Kerkhoff, J.F.J. en
Poels, C.L.M.; (1980). Induction of sister-chromatid
exchanges in fish-exposed to Rhine water.
Mutat. Res. 78, p. 369-374.

Ames, B.N.; McCann, J. en Yamasaki, E. (1977).
"Methods for detecting carcinogens and mutagens with
the Salmonella/mammalian-microsome mutagenicity
test." In: Handbook of mutagenicity testing procedu-
res, 1-18 (Kilbey et al, eds., Elsevier,
Amsterdam).

Gaag, M.A. van der; Noordsij, A.; Poels, C.L.M. en
Schippers J.C.; (1982a). Oriënterend onderzoek met
analytisch chemische en genotoxicologische meetme-
thoden naar het effect van behandelingsprocessen.
H₂O 15, p. 539.

Gaag, M.A. van der; Noordsij, A. and Oranje, J.P. (1982b). Presence of mutagens in dutch surface water and effects of water treatment processes for drinking water preparation. In: Mutagens in our environment (M. Sorsa and H. Vainio eds.), p. 227-286. Alan R. Liss Inc. New York.

Gaag, M.A. van der; Oranje, J.P.; Brandt, A. en Van Beveren, H.; (1982c). Oriënterend onderzoek met de Amestest van het zuiveringsproces in Leiduin 1980/81. KIWA SWE-399.

Gaag, M.A. van der; Oranje, J.P. en Brandt, A.; (1982d). Onderzoek naar het mutagene effect van zuiveringseffluenten te Ouddorp in de Salmonella/microsomen mutageniteitstest. (Intern rapport KIWA/WMZ).

Gaag, M.A. van der; Oranje, J.P. en Brandt, A.; (1982e). Onderzoek van 3 monsters uit waarnemingsputten in het filtratiegebied te Wijk aan Zee met behulp van de Amestest. (Intern rapport KIWA/PWN).

Gaag, M.A. van der en Van der Klift, H.W.; (1982a). Ei-larvaal onderzoek met forellen van enkele watertypen van de zuivering te Leiduin. KIWA SWE-307

Gaag, M.A. van der en Van de Klift, H.W.; (1982b). Onderzoek naar de invloed van zes watertypen van de zuivering in Leiduin op de ei-larvale ontwikkeling van forellen in 1981. (Intern rapport KIWA/GW).

Gaag, M.A., van der; Van de Kerkhoff, J.F.J., Van der Klift, H.W. en Poels, C.L.M.; (1983a). Toxicological assessment of riverwater quality in bioassays with fish. *Envir. Monit. and Assessment* (3), p. 247-255.

Gaag, M.A. van der; Bolman, M.E.F.; Oranje, J.P. en Van Beveren, J.; (1983b). Oriënterend onderzoek naar de mutageniteit van geïnfilteerd water tijdens de duinpassage in Leiduin (Intern rapport KIWA/GW).

Gaag, M.A. van der en Oranje, J.P.; (1984). Gebruik van de Amestest bij het mutageniteitsonderzoek van water. *H₂O* (17), p. 257-261.

Gaag, M.A. van der; Van de Kerkhoff, J.F.J. en Van der Klift, H.W.; (1984). Toxiciteitstesten met vissen voor de kwaliteitsbepaling van water: Mogelijkheden en beperkingen. *H₂O* (17), p.

Kool, H.J.; Van Kreijl, C.F.; Van Kranen, H.J. and De Greef, E.; (1981). The use of XAD-resins for the detection of mutagenic activity in water. *Chemosphere* 10, 85, 89.

Kreijl, C.F. van; Kool, H.J.; De Vries, M.; Van Kranen, H.J. and De Greef, E.; (1980). Mutagenic activity in the Rivers Rhine and Meuse in The Netherlands. *Sci. Tot. Environm.* 15, 137-147.

Noordsij, A., Van Beveren, J: and Brandt, A.; (1983). Isolation of organic compounds from water for chemical analysis and toxicological testing. *Int. J. Environm. Anal. Chemist* 13, 205-217.

Noordsij, A.; Van Beverern, J. and Brandt, A.; (1984). De betekenis van verschillende isolatiematerialen van toepassing in de praktijk. *H₂O* (17), p. 242-248.

Oorschot, Van; (1980). Het verloop van de mutagene activiteit tijdens de bereiding van Haags drinkwater uit Maaswater. Intern rapport DWL van 's-Gravenhage.

Poels, C.L.M.; Van der Gaag, M.A. and Van de Kerkhoff, J.F.J.; (1980). An investigation into the long-term effects of Rhine water on rainbow trout. Water res. 14, 1029-1035.

Prein, A.E.; Thie, G.M.; Alink, G.M.; Poels, C.L.M. en Koeman, J.H.; (1978). Cytogetic changes in fish exposed to water of the river Rhine. Sci. Tot. Environ., 9, p. 287-291.

RIWA (1982): "De kwaliteit van Maaswater in 1981"

CONCLUSIES

In de voorgaande hoofdstukken 3 tot en met 6 zijn de hygiënische aspecten van kunstmatige infiltratie van oppervlaktewater in de kustduinen van Nederland besproken aan de hand van gegevens, die tot dusver verzameld zijn door de duinwaterleidingbedrijven PWN, GW, DWL en WMZ. De paragrafen 3.9, 4.6, 5.5 en 6.4 bevatten puntsgewijs de conclusies met betrekking tot respectievelijk anorganische microverontreinigingen, organische microverontreinigingen, microorganismen en toxicologische aspecten. In dit hoofdstuk worden de belangrijkste conclusies samengevat (par. 7.1 tot en met 7.4), waarna in par. 7.5 de effecten van duininfiltratie geëvalueerd worden. Aanbevelingen voor optimalisering van de procesvoering en nader onderzoek volgen in hoofdstuk 8.

7.1

Anorganische microverontreinigingen

- De door de EG gestelde drinkwaternormen overgenomen in het nieuwe Waterleidingbesluit worden bij lange na niet overschreden, niet door het oppervlaktewater in de waterloop, waaraan het wordt onttrokken, en des te minder door voorgezuiverd oppervlaktewater (de aanvoer), het water na duininfiltratie en hieruit bereide drinkwater. Het water vóór duininfiltratie heeft wat de meeste anorganische microverontreinigingen betreft concentraties in de grootte-orde van 1/5-1/10 van de norm en dat na duininfiltratie van 1/10-1/20.
- Duininfiltratie leidt derhalve in het algemeen tot een concentratieverlaging (15 - 85 %) van de meeste zware metalen (V, Cr, Ni, Cu, Zn, Cd, Hg en Pb) en As, althans waarneembaar wanneer de concentraties hiervan in de aanvoer wezenlijk hoger zijn dan de onderste analysegrens.

De bijmenging met ondiep en vooral diep duinwater levert hierin een bijdrage, die uiteraard van de hoeveelheid bijmenging afhangt, doch globaal circa 20 % van de concentratieverlaging voor zich opeist. Binding aan bodemslib en aan de eerste meter onderliggend duinzand verzorgt dan vrijwel de resterende 80 % van de concentratieverlaging, althans indien er tevens sprake is van een gesloten terugwinning.

- Hoewel de gehalten van zware metalen in algen en bodemslib veel hoger zijn dan in het onderliggende duinzand, bevat het laatste 7-50 maal meer uit water verwijderde metalen. De binding aan dit duinzand neemt af met toenemende afstand tot de bodemsliblaag, waarschijnlijk vanwege een afnemend bindend vermogen te correleren met een afnemende penetratie van bodemslib in duinzand en een dalende biologische activiteit. Alleen Cr, Hg en Pb hopen zich in enigszins belangrijke mate op in bodemslib en algen (respectievelijk 4, 14 en 8 % van de totale accumulatie). Accumulatie tot meerdere meters onder het bodemslib is alleen voor Zn en mogelijk Ni geconstateerd.
- Een in de loop der tijd verminderde procentuele concentratieverlaging door het duin van anorganische microverontreinigingen en doorslag- of mobilisatieverschijnselen kunnen, behalve voor As, niet worden vastgesteld, ondanks een dalend gehalte ervan in de aanvoer. Enerzijds geeft het cijfermateriaal aanleiding tot deze veronderstelling (vooral ten aanzien van Cr, Ni, Cu en Hg), anderzijds worden eventuele trendmatige ontwikkelingen in concentratieverandering overschaduwed door analytische problemen (ontsluiting, interferentie) en een met de tijd dalende onderste analysegrens (vooral ten aanzien van Zn, Cd en Pb).
- Een interessante mobilisatie van As, analoog aan

die van fosfaat, wordt bij de DWL geconstateerd in een raai waarnemingsputten tussen pan 13 en de drainerende hoofdader. In hoeverre de bij het PWN, GW, DWL en WMZ thans (iets) hogere As-concentratie na duininfiltratie dan ervoor samenhangt met desorptie van eerder aangevoerd en geadsorbeerd As danwel met een As-levering door het watervoerend pakket en/of bij GW door slib in drainerende en transporterende kanalen en Oranjekom kan niet worden aangegeven.

- Het gunstigere beeld van duininfiltratie bij GW ten opzichte van dat bij de DWL houdt vooral verband met het feit, dat het verblijf in drainerende kanalen en de Oranjekom gerekend wordt tot duininfiltratie, terwijl het (veel kortere) verblijf in het verzamelbekken van de DWL (na kooldosering!) tot de nazuivering gerekend wordt. Daarnaast draagt het ontbreken van slibverwijdering door de DWL itt GW (tot en met 1973), alsmede een ten opzichte van GW lager organisch stof- en kleigehalte van de ondergrond van het infiltratiegebied van de DWL waarschijnlijk bij aan de wat geringere concentratieverlaging van spoormetalen bij duininfiltratie.
- Omtrent het gedrag van Be, Co, Se en CN bij duininfiltratie kan slechts worden opgemerkt, dat de concentraties hiervan beneden de onderste analysegrens blijven.
- Bromide wordt niet verwijderd als gevolg van een op Cl gelijkend gedrag.

7.2 Organische microverontreinigingen

- In tegenstelling tot de anorganische microverontreinigingen geldt voor de organische, dat de door de EG gestelde drinkwaternormen overschreden worden door het voorgezuiverde, aangevoerde oppervlaktewa-

ter, met name ten aanzien van cholinesteraseremmers, fenolen, olie en PCA's.

- Duininfiltratie, zelfs gecorrigeerd voor bijmenging van duinwater, leidt in het algemeen tot een concentratieverlaging van aangevoerde organische microverontreinigingen en wel voor de meeste onderzochte groepsparameters met circa 60-90 % (fenolen, ethers, aromaten, basen, alifaten, aldehyden/ketonen, alcoholen, EOH, THM, overige vluchtige organohalogenen, AOH, cholinesteraseremmers en organochloorpesticiden). Dit percentage is duidelijk hoger dan dat van TOC.
- Inzicht in het gedrag van organische stoffen is echter overwegend beperkt tot verbindingen met een lipofiel tot matig polair karakter en een molecuulgewicht van max. circa 400. Hoog moleculaire, polaire stoffen, die bijvoorbeeld uit veen vrijkomen, en polaire omzettingsprodukten van lipofiele stoffen blijven derhalve grotendeels buiten beeld. Genoemde beperkingen gelden in mindere mate voor AOH, EOH, XON en XOP.
- Concentratieverlagingen bij duininfiltratie komen tot stand door vervluchtiging in infiltratiemiddelen en in mindere mate in open terugwinningsmiddelen (vooral van gechloreerde halomethanen, leidend tot een halvering van THM), filtratie c.q. adsorptie door bodemslib (vooral van lipofiele stoffen als cholinesteraseremmers en organochloorpesticiden), adsorptie door het watervoerend pakket, microbiologische afbraak (waarschijnlijk vooral van onder andere fosfaatesters, chloor- en nitro-aromaten, toluen, benzeen, anilines en cholinesteraseremmers) en chemische omzetting van met name gebroeerde halomethanen.
- Als gevolg van filtratie c.q. adsorptie accumuleren vooral lipofiele stoffen in de bodemsliblaag, het-

geen is aangetoond voor cholinesteraseremmers, hexachloorbenzeen en PCA's. De belading van PCA's blijkt hoger dan verwacht op basis van een adsorptiemodel. Atmosferische depositie kan hiervoor wellicht verantwoordelijk zijn.

- Voor slib in de Oranjekom moet atmosferische depositie zelfs de hoofdoorzaak van accumulatie zijn, daar het hierin verzamelde water reeds een bodempassage achter de rug heeft, waarbij vrijwel alle PCA's (fenantreen uitgezonderd) worden verwijderd.
- Concentratieverhogingen bij duininfiltratie (na correctie voor bijmenging van duinwater) worden in het algemeen vastgesteld voor organische zuren (33-2000 %), esters (voornamelijk ftalaten; 8-59 %) en olie-achtigen (20-45 %). Bij GW zijn voorts verhogingen geconstateerd ten aanzien van alifaten (225 %), terpenoïden/sterolen (200 %) en aromaten (PCA's = 21 %; PCB's = 460 %; alkylderivaten = 44 %) en bij de DWL voor ethers (35 %) en alcoholen (84 %).
- Deze verhogingen worden, aromaten en ethers uitgezonderd, zeer waarschijnlijk veroorzaakt door afgifte van de genoemde stoffen door oxiderend veen, dat in lagen in duinzand voorkomt. Bij GW kan de oxydatie van organische stoffen geaccumuleerd in slib van de Oranjekom bijdragen.
- Tijdens bodempassage te Zandvoort ontstaan waarschijnlijk enige nieuwe stoffen, namelijk chlooraniline, trimethylthiofosfaat (uit parathion), een amide en een N-gesubstitueerd acetylamide. De eerste twee uit aangevoerde organische microverontreinigingen en de laatste twee ook daaruit en/of uit veen.
- Verschillen in het totale effect van duininfiltratie tussen GW, de DWL en WMZ zijn vooral het gevolg van verschillen in:
 - (a) interactie met organische stof in duinzand, in

volgorde Ouddorp > Zandvoort > Scheveningen. Dit leidt onder andere tot een concentratietoename door afgifte van organische zuren, ftalaten, terpenoïden/sterolen en olie-achtigen in die volgorde, alsmede tot een concentratieverlaging door binding van EOH, chloorethers en organische basen waarvan de omvang dezelfde sequentie vertoont; en

(b) interactie met bezonken materiaal in open kanalen of vijvers na bodempassage. Dit is bij GW in belangrijke mate het geval in drainerende en transporterende kanalen en het eindpunt, de Oranjekom, terwijl dit bij de DWL nauwelijks en bij de WMZ geen rol speelt. De interactie bestaat voornamelijk uit een onvermijdelijke bemonstering van dit slib door een natuurlijke opwerveling ervan. Daarnaast kan afgifte bijvoorbeeld door detergerende zuren nog een rol hierin spelen.

- Bodempassage levert onder aerobe omstandigheden voor sommige stoffen na 1 week en voor anderen na 7 weken de totaal bereikte verandering op. Verschillen hierin komen ook binnen een groep, dus tussen individuele verbindingen voor.
- Onder anaerobe omstandigheden, waarbij sulfaatreductie optreedt, wordt chloroform afgebroken. Ongunstig in dit milieu is daarentegen de constatering van in het aangevoerde water niet aantoonbare trimethylthiofosfaat (een omzettingsprodukt van het bestrijdingsmiddel parathion) en N-methyl (C-methyl)aniline, alsmede ten opzichte van een aerob milieu hoge concentraties van diethylftalaat, bis-(dichloor-n-propyl)ether, ethylbenzeen, p/m-xyleen en chlooraniline.
- Aan de hand van de octanol-water-verdelingscoëfficiënt (K_{ow}) kan de relatieve mate van binding van organische stoffen tot bodemslib of duinzand voorspeld worden. Dit wordt wat bodemslib betreft be-

vestigd door experimentele gegevens van de DWL en GW (sterke accumulatie van HCB, chlooraromaten en PCA).

Is nu ook de fractie organisch materiaal (foc) van bodemslib en duinzand bekend, dan zijn in principe voorspellingen mogelijk over de belading van de grond en het tijdstip van doorslag van stoffen, die bij bodempassage niet worden omgezet. Zo wordt bij GW voor een aerobe stroomlijn (overwegend onvolledige NO_3^- -reductie) met $\text{foc} = 0,12 \cdot 10^{-2}$ en een af te leggen afstand ondergronds gelijk aan 60 m, doorslag in of vóór 1984 verwacht van stoffen met $\log K_{\text{ow}} < 4,4$. Onder anaerobe condities (overwegend volledige NO_3^- en eventueel SO_4^- -reductie) met $\text{foc} = 0,33 \cdot 10^{-2}$ wordt dit verwacht voor stoffen met $\log K_{\text{ow}} < 4,0$. Dat de experimentele gegevens hiervan afwijken (meestal is er van doorslag geen sprake ondanks een $\log K_{\text{ow}} \ll 3,4$) moet vooral geweten worden aan afbraak c.q. omzetting van de beschouwde stoffen. Hiervoor pleiten (i) een goede overeenkomst tussen berekende en gemeten beladingen van de eerste meter grond, terwijl daarna de gemeten waarden altijd lager zijn dan berekend en (ii) literatuurgegevens over omzetting c.q. afbraak.

7.3

Micro-organismen

- Voorgezuiverd, aangevoerd oppervlaktewater bevat weliswaar aanzienlijk minder bacteriën (en virussen) dan het water in de waterloop waaraan het onttrokken is, het voldoet niet aan de door de EG gestelde normen voor drinkwater. Na duininfiltratie met een hermetisch gesloten terugwinning zoals bij het PWN te Castricum en te Wijk aan Zee, worden deze normen niet overschreden. Dit geldt niet voor

duininfiltratie met een (gedeeltelijk) open terugwinning (GW) of voor duininfiltratie, waar de gesloten terugwinning door technische mankementen gebukt gaat onder kortsluitingen tussen aan- en afvoer, hoe klein ook (de DWL, vóór 1980).

- Gedeeltelijk voorgezuiverd oppervlaktewater bevat relatief nog maar weinig bacteriën die indicatief zijn voor fecale verontreiniging. In de infiltratiemiddelen wordt het water echter weer sterk verontreinigd met dierlijke faeces voornamelijk van meeuwen en andere watervogels. Op deze wijze kunnen weer ziekteverwekkende organismen geïntroduceerd worden.
- Bodempassage in het duin reduceert de aantallen coliformen, fecale streptococci, sulfiet reducerende clostridia en enterovirussen, alsmede koloniegetallen echter zeer sterk. Gegevens van het PWN doen vermoeden, dat hierin de afgelopen 25 jaar geen verandering is gekomen. Ongeveer 2 dagen ondergronds zijn voldoende voor een vrijwel volledige verwijdering van bacteriën van de coligroep en fecale streptococci. Voor de resistentere sporen van sulfietreducerende clostridia zijn echter > 10 dagen ondergronds nodig. De reductie bedraagt voor de genoemde bacteriën en koloniegetallen meer dan 3 log-eenheden.
- Voor de eliminatie van bacteriën bij bodempassage zijn vooral biologische processen als rivaliteit en afsterving verantwoordelijk. Daarnaast is adsorptie van belang. Bacteriofaagverwijdering lijkt op grond van proeven vooral samen te hangen met een onder andere pH-afhankelijke adsorptie.
- Herbesmetting door watervogels treedt op na bodempassage in open drainerende of transporterende kanalen en verzamelbekkens.

7.4

Toxicologische aspecten

- Het toxiciteitsonderzoek van (drink)water wordt uitgevoerd met vissen (sterfte, groeistoornissen, bioconcentratie, etc.) en met speciale bacteriën in de Amestest (schade aan erfelijk materiaal). Hiermee kan men een verandering meten van de mate van verontreiniging van water met toxische stoffen. Met deze testen kan op dit ogenblik echter geen schatting worden gemaakt van een eventueel gezondheidsrisico van deze verontreiniging voor de mens. Voor deze biologische meetsystemen zijn dan ook geen normen gesteld.
- Op basis van ei-larvaal onderzoek met forellen en van metingen met de Amestest kan geconcludeerd worden, dat vóór duininfiltratie meer toxische effecten worden waargenomen dan erna:
- Bioconcentrerende organochloorverbindingen zijn vóór duininfiltratie wel en erna niet in forellen aangetoond. Bij alle oriënterende onderzoeken is geconstateerd, dat het mutagene effect van met XAD geconcentreerde monsters in de Amestest vóór duininfiltratie dat erna overtreft. De verlaging van de mutagene activiteit was meestal sterker in de XAD pH 7 fractie (lipofiele verbindingen) dan in de XAD pH 2 fractie (matig hydrofiele verbindingen).
- De veranderingen in mutagene activiteit, die bij detailonderzoek zijn vastgesteld, sluiten niet geheel aan bij de verwachtingen die gebaseerd zijn op waarnemingen van het totaalbeeld van de duininfiltratie. Mogelijk zijn bij afwijkende waarnemingen in de grond bepaalde fysisch-chemische karakteristieken (anaerobie) van grote invloed op het mutagene effect. Op basis van de huidige inzichten is het nog niet mogelijk om de betekenis van deze invloeden te interpreteren.

7.5

Evaluatie

- In deze evaluatie wordt uitgegaan van in-serie-schakeling van achtereenvolgens voorzuivering, duininfiltratie en nazuivering. Onder de totaal bereikte kwaliteitsverandering wordt het gezamenlijke effect van deze processen verstaan.
De voorzuivering ontbreekt bij de WMZ geheel en bij de LDM gedeeltelijk, hetgeen tot een hoger rendement leidt van de nu in de totale behandeling voor-aanstaande duininfiltratie.
- Zonder het noemen van bijzondere effecten van duininfiltratie op macroparameters en het verschijnsel "demping", waarvoor verwezen zij naar KIWA-medede-ling nr. 82, zou het totaal-effect en belang van duininfiltratie onrecht worden aangedaan. Duininfiltratie heeft namelijk in de totaal bereikte kwa-liteitsverandering het belangrijkste aandeel wat betreft de verlaging van nitraatgehalten, $KMnO_4$ -verbruik, smaak en dikwijls de kleur, terwijl het ten aanzien van de meeste parameters voor 70-100 % bijdraagt aan een niet geringe demping van kwali-teitsfluctuaties. Laatstgenoemde mag niet onderge-waardeerd worden daar het verschijnsel in belang-rijke mate bijdraagt aan een zo constant en daar-naast zo goed mogelijke kwaliteit van drinkwater.
- Een ander hiermee samenhangend, belangrijk aspect van duininfiltratie is de voorraadvorming, noodza-kelijk als gevolg van teistering van ons oppervlak-tewater door periodiek passerende gifgolven, en on-ontbeerlijk voor het opvangen van storingen van technische aard (bijvoorbeeld buisbreuk). Ook aan dit punt wordt in deze publikatie voorbijgegaan.
- De voorzuivering levert het grootste aandeel in de totaal bereikte concentratieverlaging van met name die stoffen, die slibgebonden zijn, zoals veel zwa-

re metalen, aromaten (PCA's, PCB's, HCB's etc.) en bacteriën. Hierdoor wordt de belasting van het duin met deze stoffen aanzienlijk verminderd, zodat onderhoud van de infiltratiemiddelen in beperkte mate nodig is.

- Het grootste aandeel van duininfiltratie in de hier beschouwde, totaal bereikte kwaliteitsverbetering betreft de concentratieverlaging van een groot aantal organische microverontreinigingen en een verlaging van de toxiciteit.
- Een nadeel wordt gevormd door de accumulatie van zware metalen en organische microverontreinigingen op minder gemakkelijk bereikbare plaatsen dan bij conventionele waterzuiveringstechnieken, namelijk over grotere oppervlakken (die van de infiltratiemiddelen) en tot wat grotere diepte (tot maximaal circa 1 meter). Het laatste is evenwel grotendeels weer het gevolg van het niet frequent of helemaal niet verwijderen van bodemslib. De veel gevreesde accumulatie dieper dan 1 meter is niet aangetoond.
- Het in deze mededeling geschetste beeld van het effect van duininfiltratie is niet constant qua omvang. Een geleidelijke uitloging van reactieve organische bestanddelen van het zandpakket blijkt onder andere uit langzaam stijgende NO_3 -concentraties na duininfiltratie.

Dit kan voor een aantal van de hier beschouwde kwaliteitsparameters zowel een positieve als negatieve uitwerking hebben. Zo kan een aan deze uitloging gekoppelde toenemende mate van aerobie leiden tot een verhoogde (aerobe) afbraak van bijvoorbeeld gechlloreerde benzenen en een verminderde (anaerobe) afbraak van bijvoorbeeld chloroform.

8

AANBEVELINGEN

In de voorgaande paragrafen 3.10, 4.7, 5.6 en 6.5 zijn aanbevelingen voor verder onderzoek en een betere bedrijfsvoering geformuleerd en van argumenten voorzien. Deze worden hier zonder argumentatie samengevoegd, echter gesplitst naar verder onderzoek (par. 8.1) en optimalisering van de procesvoering (par. 8.2). Gepleit wordt voor een gezamenlijke, multidisciplinaire aanpak van verder onderzoek op enkele sleutellocaties. De met een "ster" gemerkte aanbevelingen hebben een relatief hoge prioriteit.

8.1

Verder onderzoek

(a) anorganische microverontreinigingen

- * Onderzoek naar de wijze en effecten van verwijdering van bodemslib.
- Onderzoek met behulp van standaardmethoden naar relaties tussen concentraties van elementen in grond (bodemslib en duinzand) en het organische stof-, kalk-, klei- en slibgehalte, de kationuitwisselingscapaciteit en kleur van de grond, alsmede de ligging van het bemonsterde punt.
- * Bepaling van natuurlijke concentraties van sporelementen in duinzand en onderliggend marien zand.
- Uitvoering van kolomproeven met een ongestoord profiel van bodemslib op duinzand (bijvoorbeeld tot 2 m diepte), dat vrij rijk is aan spoorelementen, en voorgezuiverd Maas- of Lekwater, dat arm is aan spoorelementen.
- Meting van de bijdrage van atmosferische depositie aan de belasting van infiltratiemiddelen met behulp van speciale regenvangers, waarin altijd een laag water in de opvangtrechter staat.

(b) organische microverontreinigingen

- * Onderzoek naar de wijze en effecten van verwijdering van bodemslib.
- Bestudering van trendmatige veranderingen, seizoenseffecten en de gevolgen van wisselende invoergehalten door middel van langdurige meetprogramma's met hoge frequenties.
- Onderzoek naar de bijdrage van atmosferische depositie in de totale belasting met name van aromaten (PCA's en PCB's onder andere).
- Verbetering van analytisch chemische methodieken ter bepaling van meer polaire verbindingen, met name van polaire organohalogenen.
- Toetsing van het gehanteerde adsorptiemodel door bepaling van adsorptie-isothermen met praktijk infiltratiewater en grond (bodemslib en duinzand).
- * Inventarisatie van de gehalten van organische microverontreinigingen in bodemslib en het watervoerend pakket.
- * Oriënterend onderzoek naar de mogelijkheden (mechanismen en kinetiek) van omzetting van organische microverontreinigingen (met name organohalogenen) in het infiltratiepakket.
- Kwantificering van de microbiologische populatie in het infiltratiepakket naar werkzame soort en fysiologische activiteit, ten behoeve van het omzettingsmodel.

(c) micro-organismen

- * Onderzoek naar accumulerende eigenschappen van infiltratiemiddelen c.q. bodemslib daarin ten aanzien van onder andere Salmonella bacteriën, de bacterie Clostridium botulinum en virussen. Hieronder valt ook bestudering van de effecten van verwijdering van bodemslib.
- Bestudering van het effect van duininfiltratie op

organismen, die darminfecties kunnen veroorzaken, als *Campylobacter fetus* en *Giardia lamblia*.

- Onderzoek naar een eventuele desorptie van in bodemslib c.q. duinzand geaccumuleerde virussen tijdens de zomermaanden, wanneer de pH in infiltratiemiddelen door algengroei boven 10 kan stijgen.
- * Bestudering van het effect van duininfiltratie op hygiënisch ongewenste organismen, die niet van fecale herkomst zijn. Vooral ten aanzien van organismen, die hun natuurlijk milieu in water hebben zoals *Aeromonas hydrophila*, valt te verwachten, dat eliminatie bij duininfiltratie onder bepaalde omstandigheden minder effectief verloopt.

(d) toxicologische aspecten

- * Analyse van residuen organochloorverbindingen in vetweefsels van vissen, die van nature aanwezig zijn in de infiltratiemiddelen en drainerende kanalen of verzamelbekken.
- * Langduriger en frequenter detailonderzoek van het effect van bodempassage met behulp van de Amestest.

8.2

Optimalisering van de procesvoering

- Verwijdering van bodemslib in drainerende kanalen en verzamelbekken, indien dat de laatste jaren niet is gebeurd. Remobilisatieverschijnselen van onder andere As, PCA's en PCB's zijn geconstateerd.
- Voorkoming van grote wisselingen in bedrijfsvoering van duininfiltratie in verband met aantasting van microbiologische populaties, die voor afbraak c.q. omzetting van tal van verbindingen kunnen zorgen.
- Indien mogelijk, geen transportchlooring van aan te voeren oppervlaktewater in verband met organohalogenvorming.
- Terugdringing van eutrofiëringsverschijnselen door

verdergaande voorzuivering onder andere met het oog op bestrijding van botulisme.

- Terugwinning met een (beter) gesloten systeem c.q. bestrijding van kortsluitstromingen tussen aan- en afvoer, ter handhaving van het microbiologische gunstige resultaat van duininfiltatie.
- Sluiting van het nazuiveringssysteem ter vermindering van herbesmetting.

9.1 Begrippen

- Aangevoerd water = al of niet voorgezuiverd oppervlaktewater aan het einde van de aanvoerpijpleiding.
- Bacteriofaag = een virus van bacteriën.
- Bodempassage = doorstroming van grond in de verzadigde en/of onverzadigde zone.
- Bodemslib = het totaal van slibhoudende afzettingen op de bodem van een waterloop (i.c. infiltratiemiddel, drainerend kanaal of verdeelvijver.
- Bijmenging = toevoeging van één of meerdere watersoorten aan een watersoort, die meer dan 50 % uitmaakt van het uiteindelijke mengsel.
- Chemisorptie = chemische binding van een opgelost bestanddeel van water aan het oppervlak van een tevoren aanwezig vast substraat.
- Diep duinwater = geïnfiltreerd regenwater in het tweede watervoerend pakket of dieper.
- Doorslag = het verschijnsel, dat een stroomopwaarts ingebrachte stof op een stroomafwaarts hiervan gelegen punt in oplossing verschijnt na belemmering.

- Duininfiltratie = kunstmatige aanvulling van grondwater in de duinen met oppervlaktewater van elders. Meer specifiek: datgene, wat er na het gesloten transport tot in het duingebied met het kunstmatig te infiltreren oppervlaktewater gebeurt, totdat het in de eerste nazuiveringsstap belandt (zie par. 2.3.2).
- Genotoxiciteit = toxiciteit ten gevolge van interactie van een stof met erfelijk materiaal (DNA) van levende organismen.
- Hoofdader = de centrale drainageleiding in het 1e WVP (met daarop aangesloten ondiepe pompputten), die het grootste deel van het geïnfiltreerde rivierwater in het Haagse wingebied terugwint. Als meetpunt geldt het uiteinde ervan vòòr intrede in de verzamelkom.
- Infiltratiemiddel = een kanaal, geul, vijver, duinpan of wat dies meer zij, alsmede een put, van waaruit speciaal daartoe aangevoerd oppervlaktewater infiltreert.
- Infiltratiewater = aangevoerd oppervlaktewater op het moment van (kunstmatige) infiltratie in sensu stricto, dus na eventuele kwaliteitsveranderingen in het infiltratiemiddel.
- Macroparameters = hoofd- en nevenbestanddelen van water plus een aantal algemeen

- beschrijvende parameters (soms of groepsparameters), beide in de orde van mg l^{-1} .
- Mobilisatie = het in oplossing geraken van een tevoren in of aan een vast substraat gebonden stof.
- Nazuivering = de behandeling van (terug)gewonnen water volgens één of meer niet-natuurlijke processen.
- Ondiep duinwater = geïnfiltreerd regenwater in de verzadigde zone van het eerste oftewel freatische watervoerende pakket.
- Oranjekom = het verzamelbekken (zie def.) van Gemeentewaterleidingen.
- Rein water = nagezuiverd water tot drinkwaterkwaliteit, vlak vóór het verlaten van het nazuiveringsbedrijf.
- Remobilisatie = het in oplossing geraken van een tevoren eerst opgeloste en daarna in of aan een vast substraat gebonden stof.
- Revertant = een organisme (of cel), dat als gevolg van een terugmutatie in het erfelijke materiaal weer de beschikking heeft gekregen over een erfelijke eigenschap, die al aanwezig was in de wildtype-stam. In de Amestest zijn dit cellen, die na een mutatie, net als wilde Salmonella stammen, in staat zijn om het aminozuur histidine te synthetiseren.

Ruw water	= (terug)gewonnen water vlak vóór de nazuivering.
Sorptie	= binding van fysische en/of chemische aard van een opgelost bestanddeel van water aan het oppervlak van een tevoren aanwezig vast substraat.
Verdeelvijver	= het punt waar de WRK I-transportleiding zich vertakt in de centrale toevoersloot van Gemeentewaterleidingen en de WRK I-transportleiding onder andere naar het PWN.
Verzamelbekken	= een bekken, waarin al het (terug)gewonnen water verzameld wordt.
Voorzuivering	= de voorbehandeling van oppervlaktewater vóór intrede in de eigenlijke infiltratiemiddelen in het duingebied (zie par. 2.3.1).

9.2

Symbolen en afkortingen

DWL	= Duinwaterleiding van 's-Gravenhage
ECN	= Energieonderzoek Centrum Nederland
GW	= Gemeentewaterleidingen
KNMI	= Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut
LDM	= Leidsche Duinwater Maatschappij N.V.
PWN	= Provinciaal Waterleidingbedrijf van Noord-Holland
PWS	= Provinciale Waterstaat (i.c. van Noord-Holland)
RID	= Rijksinstituut voor Drinkwatervoorziening (thans RIVM)

RIV	= Rijksinstituut voor de Volksgezondheid
RIVM	= Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieuhygiëne
WMZ	= Watermaatschappij Zuid-West-Nederland .N.V.
WRK	= Watertransportmaatschappij Rijn-Kennemerland N.V.
AOO	= assimileerbaar organisch koolstof [g m ⁻³]
AOH	= actieve kool adsorbeerbaar organohalogeën [g m ⁻³]
%B	= procentuele bijdrage van bijmenging van ondiep en/of diep duinwater in de concentratieverandering bij duininfiltratie [%]
%ΔC	= procentuele concentratieverandering in infiltratiemiddelen ten gevolge van verdamping en atmosferische depositie [%]
C _i	= concentratie van opgeloste stof i [g m ⁻³]
EOCl	= petroleumether extraheerbaar organochloor [g m ⁻³]
EOH	= petroleumether extraheerbaar organohalogeën [g m ⁻³]
foc	= fractie organische stof van stoofdrome grond
HCB	= hexachloorbenzeen [g m ⁻³]
HCH	= hexachloorcyclohexaan [g m ⁻³]
I(x)	= relatieve slibaccumulatie-index
KG	= koloniegetal
K _i	= verdelingscoëfficiënt van stof i over de vaste en vloeistoffase
K _{owi}	= octanol-water-verdelingscoëfficiënt voor stof i

PCA	= polycyclische aromaten [g m^{-3}]
PCB	= polychloorbifenylen [g m^{-3}]
S9-mix	= fractie van een (ratten)lever-preparaat, die in kortdurende mutageniteits-testen (onder andere met bacteriën) wordt gebruikt om de stofwisseling van lichaamsvreemde stoffen bij zoogdieren na te bootsen
SDP	= slecht doorlatend pakket
S_i	= belading van de (stoofdroke) grond onder evenwichtscondities met interstitieel water [g g^{-1}]
t	= tijd [d]
TA98/100	= bacteriestammen van de Amestest, waarmee een tweetal op moleculair niveau verschillende terugmutaties wordt getoetst van het gen dat de histidine synthese regelt (zie ook: revertant)
$t_{\text{H}_2\text{O}}$	= verblijftijd van water [d]
t_i	= verblijftijd van stof i [d]
THM	= trihalomethanen [g m^{-3}]
tr_i	= relatieve retentietijd van verbinding i
TTHM	= totaal trihalomethanen [mol m^{-3}]
VOCl	= vluchtig organochloor [g m^{-3}]
WVP	= watervoerend pakket
X	= afgelegde afstand in stroomrichting [m]
XAD	= harstype met een groot contactoppervlak, dat wordt gebruikt om organische stoffen uit water te isoleren
XON	= XAD-adsorbeerbaar organostikstof
XOP	= XAD-adsorbeerbaar organofosfor

APPENDIX A: VOORZUIVERING

A.1 Inleiding

Onder voorzuivering wordt hier verstaan de voorbehandeling van te infiltreren oppervlaktewater vóór intrede van de eigenlijke infiltratiemiddelen. De discussie beperkt zich in deze appendix tot open infiltratiebekkens.

In het algemeen vormt de voorzuivering thans een belangrijke schakel in de bereiding van drinkwater met behulp van ondergrondse voorraadvorming. Dat dit niet altijd zo is geweest, toont het algemene historische overzicht in par. A.2. De hoofddoelstelling van voorzuivering is het bijdragen tot een optimaal functioneren van het infiltratiesysteem ten aanzien van het bereiden van water van gewenste kwaliteit op een veilige, betrouwbare en economisch verantwoorde wijze, met zoveel mogelijk beperking van ongewenste effecten op het milieu. Een opsplitsing en nadere uiteenzetting van de huidige taken van voorzuivering worden gegeven in par. A.3. Een viertal "case-studies" in Nederland naar de functie van voorzuivering bij open infiltratie wordt in par. A.4 beschreven. Conclusies hieruit volgen in par. A.5.

Verwezen wordt naar tabel 2.1 voor een overzicht van de voorzuivering bij de in deze publikatie bestudeerde bedrijven, die duininfiltratie plegen.

A.2 Algemeen historisch overzicht

Kunstmatige infiltratie via hiertoe geschapen infiltratiebekkens startte in het buitenland in 1897 (Lindenbergh, 1953; Jansa, 1951; Löffler, 1967; Trueb, 1975) en in het binnenland in 1940 bij de

LDM (Commissie Infiltratie, 1957). In de beginfase werd niet of in beperkte mate voorgezuiverd. De voorzuivering bestond meestal louter uit een sedimentatie, ter voorkoming van een snelle verstopping van de infiltratiemiddelen tijdens periodes van hoge gehalten aan zwevende stoffen in het rivierwater. Bij de LDM geschiedde dit (en thans nog) in een speciale vijver in het duin.

Een uitbreiding van de voorzuivering geschiedde eerst in het buitenland na de Tweede Wereldoorlog ten gevolge van (1) een verslechtering van de oppervlaktewaterkwaliteit, (2) de soms optredende noodzaak tot transport van het te infiltreren water over lange afstanden, (3) een stijgende hoeveelheid te infiltreren oppervlaktewater en (4) hogere eisen aan de waterkwaliteit ten behoeve van diepe infiltratie door middel van verticale en horizontale systemen. De meeste voorbeelden van infiltratie met een vergaande voorzuivering uit deze tijd zijn in Duitsland te vinden. Zo werden bij de infiltratie ten behoeve van de watervoorziening van Nürnberg en Krefeld een coagulatie en filtratie als voorzuivering gebruikt (Haberer 1970; Müller, 1955), terwijl er in Frankfurt am Main en in Wiesbaden nog een additionele actieve koolfiltratie werd toegepast (Haberer, 1970; Stadager & Elleu, 1961). In Nederland werden door het PWN, GW en de DWL vanaf het begin (respectievelijk 1957, 1957 en 1955) tot respectievelijk 1974, 1974 en 1976 een snelfiltratie en transportchloring aangewend (door de DWL nog voorafgegaan door een beluchting en sedimentatie) ter bescherming van de transportleiding en ter beperking van een verstopping der infiltratiemiddelen.

De afgelopen 10 jaar wordt vooral in Nederland de voorzuivering tevens gezien als een belangrijk mid-

del om ongewenste gevolgen van kunstmatige infiltratie voor het milieu zoveel mogelijk te beperken. Sinds 1973-1976 is mede daarom bij het PWN, GW, LDM (gedeeltelijk) en DWL de voorzuivering uitgebreid met onder andere een coagulatie. Hierdoor vermindert de aanvoer van potentieel schadelijke stoffen in de duinen, wordt de bedrijfszekerheid van infiltratie verhoogd en kunnen er hogere infiltratiesnelheden worden bereikt, hetgeen een uitbreiding van infiltratiemiddelen, waarbij de natuur in het gedrang komt, minder noodzakelijk maakt.

A.3 Huidige taken nader beschouwd

De hoofddoelstelling van voorzuivering is reeds in par. A.1 omschreven. Zij kan in de volgende taken gesplitst worden:

1. het reduceren van verstopping der infiltratiemiddelen;
 2. het beperken van algengroei in infiltratiemiddelen;
 3. het tegengaan van ongewenste processen tijdens doorstroming van de grond;
 4. het verminderen van een aanvoer van potentieel schadelijke stoffen en nutriënten in de grond;
 5. het bijdragen tot een zo goed mogelijke kwaliteit van het na infiltratie teruggewonnen water.
- Op elk dezer taken wordt in de volgende paragrafen nader ingegaan.

A.3.1 Vermindering van verstopping

Motivatie

Een verstopping van de bodem van infiltratiemiddelen kan leiden tot (a) een vermindering van de bedrijfszekerheid van de infiltratie, (b) een aantas-

ting van natuur en landschap, door een groter ruimtebeslag voor de infiltratiewerken, intensieve schoonmaakwerkzaamheden en de noodzaak van verwerking van grote hoeveelheden afvalzand en (c) een gedeeltelijke kwaliteitsverslechtering van het teruggewonnen water, door een eventuele desorptie, uitspoeling of oxidatie van verschillende verontreinigingen uit het verstoppingsmateriaal (bijvoorbeeld fosfaten, anorganische en organische microverontreinigingen). Een groter benodigd infiltratieoppervlak bij een snel optredende verstopping en de noodzaak tot het min of meer frequent schoonmaken van de infiltratieoppervlakken brengen een kostenverhoging met zich mee. De schoonmaakkosten zijn ook thans echter vrijwel altijd lager dan de kosten verbonden aan een voorzuivering, uitgebreider dan een snelfiltratie. Zo bedroegen de kosten van schoonmaak van infiltratiekanalen bij GW en het PWN, toen het te infiltreren WRK-water alleen met behulp van een snelfiltratie vorgezuiverd werd, slechts respectievelijk 0,035 en 0,1 cent m^{-3} (Hrubec & Roebert, 1974). Een uitbreiding van de voorzuivering met coagulatie impliceert een kostenstijging met circa 4,5 cent m^{-3} (Hrubec, 1978)! Dit betekent dan ook, dat het bij de keuze van een vèrgaande voorzuivering niet om een verlaging van de kosten gaat, maar echt om bestrijding van bovenstaande punten a, b en c.

Oorzaken van verstopping

Uit de infiltratiepraktijk blijkt, dat een verstopping veroorzaakt kan worden vooral door de volgende 4 factoren:

1. de aanwezigheid van zwevende deeltjes in het infiltratiewater, zoals planten- en algenresten, μ -algen (zie par. A.3.2), bacteriën door rela-

tief lage aantallen te verwaarlozen op grond van gegevens van Krone, 1970), kleideeltjes en Fe-of Al-vlokjes (Huisman & Olsthoorn, 1983; Olsthoorn, 1982, Hunter Blair, 1970; Berend, 1967; Löffler, 1967);

2. Een bacteriëngroei in de bovenste centimeters van de bodem (Allison, 1947; McCalla, 1950; Avnimelech & Nevo, 1964; Nevo & Mitchell, 1967);
3. Biogene ontharding (dat wil zeggen het neerslaan van CaCO_3 onder invloed van een pH-stijging ten gevolge van CO_2 -assimilatie door algen) en
4. De vorming van een algendecken op de bodem van het infiltratiemiddel (onder andere bestaande uit sessiele algen).

In de praktijk van open infiltratie, waarbij de toegepaste infiltratiesnelheden vrijwel altijd lager zijn dan de doorlatendheid van het pakket, is nog geen verstopping door gasaccumulatie in het infiltratiepakket waargenomen.

Maatregelen

Wordt oppervlaktewater vóór kunstmatige infiltratie voorgezuiverd alleen door sedimentatie en snelfiltratie, dan treedt er in het algemeen te zijner tijd een verstopping op. Lage infiltratiesnelheden (0,1 - 1,0 m/d) en een schoonmaakfrequentie van eens per enkele maanden beperken in het buitenland de verstopping dan tot een economisch verantwoord peil (Hrubec & Roebert, 1974). In Nederland is de situatie bij een dergelijke voorzuivering en infiltratiesnelheden van 0,1-0,4 m/d gunstiger gebleken: het PWN, GW en de DWL haalden looptijden van respectievelijk 1-2, 4-5 en tot meer dan 25 jaar (zie tabel 2.2).

De extreem hoge looptijden bij de DWL zijn het ge-

volg van de grillige vorm van de infiltratiepannen, waardoor er alleen op bepaalde plaatsen een zich weinig manifesterende verstopping ontstaat, en van fluctuaties in waterpeil in de infiltratiemiddelen, waardoor boven water komende delen van de verstoppende laag kunnen oxideren, uitdrogen, verkrumelen en door de wind verwijderd worden. Uit tabel A.1 blijkt, dat er tot halverwege de zeventiger jaren bij het PWN, GW en de DWL, ondanks een snelfiltratie (bij de DWL voorafgegaan door een beluchting en een bezinking), inderdaad nog teveel slib, Fe en Mn in het te infiltreren water aanwezig waren, alsmede vrijwel onverminderd hoge gehalten aan eutrofiërende stoffen als PO_4 , NH_4 , NO_3 en SiO_2 en nog veel organische stof.

Uit dezelfde tabel A.1 volgt, dat er door coagulatie en snelfiltratie een aanzienlijke verbetering optreedt ten aanzien van het verstoppend vermogen van het te infiltreren water bij het PWN, GW en de DWL: het gehalte aan slib, Fe, Mn en PO_4 is hierdoor aanzienlijk verlaagd. Kolomexperimenten toonden daarnaast aan, dat het bij toepassing van coagulatie en snelfiltratie mogelijk is een zo vergaande verwijdering van zwevende en colloïdale stoffen te bereiken, dat deze bij open infiltratie geen beslissende factor van verstopping meer vormen (Hrubec, 1978).

A.3.2 Beperking van algengroei

Motivatie

Algengroei in het water in infiltratiemiddelen is bezwaarlijk om de volgende redenen:

- 1) de groei kan tot verstopping van de infiltratiemiddelen bijdragen door het affiltreren van dode algen en biogene ontharding (zie par. A.3.1);

mg/l	PWN en GW						DWL					
	1969-1973			1975-1977			1969-1973**			1978-1980		
	WRK ruw	WRK rein	Δ%	WRK ruw	WRK rein	Δ%	Lek Bergam.	Aanv. Schev.	Δ%	Maas Heusden	Aanv. Schev.	Δ%
EGV 20 °C (μS/cm)	898	898	0	882	915	+4	934	916	-2	507	567	+12
Cl ⁻	186	187	(+1)	176	184	+5	187	189	(+1)	54	62	+15
HCO ₃ ⁻	167	154	-8	163	163	0	158	147	-7	160	184	+15
SO ₄ ⁻⁻	90,2a	91b	(+1)	79,7a	81,1b	(+2)	90,3	92,6	(+3)	59,3	66,3	+12
NO ₃ ⁻	14,2	21,6	+52	18,0	22,3	+24	11,0	17,0	+55	16,3	15,5	-5
NO ₂ ⁻	0,34	0,15	+56	0,45	0,05	-89	0,33	0,07	-79	0,39	0,08	-79
PO ₄ ^{-ortho}	0,66a ¹	0,55b ¹	-17	0,86	0,11	-87	0,54	0,59	(+9)	1,16	0,17	-85
PO ₄ ^{-tot}	-	0,88b ¹	-	1,70	0,27	-84	0,79	-	-	1,53	0,23	-85
F ⁻	0,33	-	-	0,30	0,28	(-7)	0,37	-	-	0,43	0,38	-12
pH	7,49	7,18	+104	7,71	7,64	+17	7,51	7,13	+140	7,71	7,66	+12
Na ⁺	102a	101b	(-1)	93a	107	+15	99,7	99,5	0	35,7	37,7	+6
K ⁺	8,4a	7,8b	(-7)	7,4a	7,2	(-3)	7,6	74	(-3)	5,2	5,1	(-2)
Ca ⁺⁺	85,4a	87,6b	(+3)	81,3a	83	(+2)	86,7	85,7	(-1)	63	72,7	+15
Mg ⁺⁺	13,3a	11,4b	(-14)	11,7a	12,5	(+7)	11,8	11,7	(-1)	7,2	8,5	+18
Fe	1,75	0,31	-82	1,22	0,08	-93	1,27	0,40	-69	0,93	0,08	-91
Mn	0,22 ⁴	0,17 ⁴	-23	0,15	0,03	-80	0,21 ²	0,16 ²	-24	0,13 ⁷	0,03	-77
NH ₄ ⁺	2,64	1,06	-60	1,27	0,1	-92	2,50	1,20	-52	1,05	0,14	-87
NH ₃ -alb	0,45	0,33	-27	0,52	0,33	-37	0,19 ⁴	0,28 ⁴	+47	-	-	-
SiO ₂	6,0a	6,5b	(+8)	4,7a	4,6	(-2)	5,8 ³	5,4 ³	(-7)	7,3	4,8	-34
KMnO ₄	28,8	25,4	-12	20,7	16,0	-23	23,0	19,9	-13	15,2	13,7	-10
Kleur	32,2	25,6	-21	23,7	11,7	-51	29,2	34,1	+17	16,3	11,4	-30
TOC	8,0a ³	6,1c ³	-24	6,2a	4,8 c	-23	6,4 ⁵	5,7 ⁵	-11	5,6	5,5	(-2)
Smaak (n)	31,8a	27,6c	-13	59,8	36	-40	35,6	25	-30	8 ⁷	4,5	-44
CO ₂ -vrij	9,1 ²	16,8 ²	+85	6,2	5,6	-10	-	-	-	-	-	-
O ₂	7,1	1,6	-77	8,0	3,7	-54	7,3	1,8	-75	9,6	8,1	-16
O ₂ -verz. %	64,2	14,8	-77	73,7	35	-53	64,3	17,1	-73	-	73,3	-
Troeb. (JTU)	25 ⁴	3,5 ⁴	-86	15,2	0,6	-96	-	-	-	-	-	-
Slib (110 °C)	47,5 ⁴	3,3 ⁴	-93	45,2	0,6	-99	23,0 ¹	3,3 ¹	-86	27,7	0,8	-97
Cr* (μg/l)	17,5a ³	3,5c ³	-80	15,7	1,3	-92	16,5 ⁶	9,3 ⁶	-44	3,2	1,0	-69
Cu* (μg/l)	17,5a ³	11,0c ³	-37	10,7	5,7	-47	18,5 ⁶	15,0 ⁶	-19	8	5,5	-31
Zn* (μg/l)	145 a ³	78c ³	-46	90	26	-71	205 ⁶	73 ⁶	-64	102	37	-64
Cd* (μg/l)	1,20a ³	0,60c ³	-50	0,92	0,18	-80	1,0 ⁶	0,5 ⁶	-50	1,8	0,6	-67
Hg* (μg/l)	0,62a ³	0,21c ³	-66	0,60	0,32	-47	0,25 ⁶	0,1 ⁶	-60	0,2	0,1	-50
Pb* (μg/l)	24,5a ³	11,5c ³	-53	5,3	1	-81	16,5 ⁶	4,7 ⁶	-72	12	3	-75
Ni* (μg/l)	-	-	-	18	13	-28	-	-	-	8,6	4,5	-48
Co* (μg/l)	-	-	-	4,3	2,3	-47	-	-	-	1,1 ⁸	0,6 ⁸	-45
As* (μg/l)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	6,0	1,7	-72

* = ongefiltreerd; a = Lek bij Vreeswijk; b = WRK-inlaat infiltratiegebied bij Castricum (PWN); c = WRK-water in verdeelwijver te Leiduin (GW); 1 = 1973; 2 = 1969-1971; 3 = 1972-1973; 4 = 1e halfjaar 1974; 5 = 1971-1973; 6 = 1974-1975; 7 = 1980; 8 = 1978-1979
Δ% = 100 (produkt - ruw)/ruw; ** = relatief geringe voorzuivering

Tabel A.1 Kwaliteit van het te infiltreren oppervlaktewater in de waterloop van herkomst en na voorzuivering, alsmede de procentuele kwaliteitsverandering door voorzuivering, voor het PWN en GW enerzijds en de DWL anderzijds (ontleend aan Stuyfzand, 1985). De voorzuivering gedurende de onderscheiden perioden is te vinden in tabel 2.1. Tussen haakjes staan niet significante waarden van Δ%

- 2) zogenaamde μ -algen kunnen diep in het infiltratiepakket penetreren (Hrubec, 1975; Folkman & Wachs, 1970) en aldus verstoppend werken op een moeilijk bereikbare plaats;
- 3) een snelle uitputting van zuurstof met name tijdens de afbraak van algen kan tot anaerobie in het infiltratiepakket leiden, hetgeen resulteert in enkele ongewenste processen (zie par. A.3.3);
- 4) algen kunnen voor de gezondheid schadelijke stoffen produceren.

Maatregelen

Om algengroei te voorkomen of te beperken zijn de volgende maatregelen denkbaar (Schmidt, 1972):

- a) lichtafsluiting door bedekking van infiltratiemiddelen;
- b) verlaging van het gehalte aan nutriënten, met name fosfaten;
- c) gebruik van algiciden als kopersulfaat, chloor, KMnO_4 en organische algiciden;
- d) toepassing van intermitterende infiltratie;
- e) pH-verhoging ter verlaging van het gehalte aan opneembaar CO_2 .

Hiervan komen voornamelijk de eerste twee maatregelen in aanmerking voor de infiltratiepraktijk. Dat de afsluiting van licht effectief is ter voorkoming van algengroei, werd bevestigd tijdens proeven van RID/KIWA naar de invloed van licht bij infiltratie van Rijnwater in duinzand (Hrubec, 1975) en tijdens proeven ten behoeve van de Veluwe infiltratie (Hrubec, 1978). De afsluiting door middel van het bouwen van ondergrondse tunnels is echter kostbaar en uit het oogpunt van natuurbehoud niet altijd wenselijk (Commissie Infiltratie Veluwe, 1976).

Wat de verlaging van het nutriëntengehalte betreft, hebben proeven van de DWL met vrijwel gedefosfaateerd water (orthofosfaat = 17 $\mu\text{g}/\text{l}$) aangetoond, dat door een zeer effectieve coagulatie en snelfiltratie de bloei van algen in infiltratiepannen beperkt kan worden (zie par. A.4). Een niet zo vergaande verlaging van het fosfaatgehalte op bedrijfsschaal (door coagulatie en snelfiltratie wordt het orthofosfaatgehalte teruggebracht tot 100-200 $\mu\text{g}/\text{l}$; zie tabel A.1) heeft tot dusver bij het PWN, GW, de LDM en DWL niet geleid tot een wezenlijke beperking van algengroei. Resultaten van de RID/KIWA-infiltratieproeven ten behoeve van de Veluweinfiltratie wijzen er in dit verband op, dat de invloed van defosfatering op de algengroei afhangt van de infiltratiesnelheid en daarmee van de fosfaatbelasting per eenheid van infiltratie-oppervlak. Bij hoge infiltratiesnelheden kan namelijk zelfs bij een lage fosfaatconcentratie in het te infiltreren water de oppervlaktebelasting hoog liggen. Zo was de oppervlaktebelasting bij de Veluweinfiltratieproeven circa 75 g ortho- $\text{PO}_4 \text{ m}^{-2}\text{j}^{-1}$ bij een gemiddelde orthofosfaatconcentratie van 30 $\mu\text{g}/\text{l}$ en een infiltratiesnelheid van 7 m/d. Onder deze omstandigheden werd een intensieve groei van draad-algen op het zandoppervlak waargenomen. Een ernstige groei van Spirogyre, Cladophora en Oedogonium treedt ook regelmatig op in infiltratiepannen te Croissy (Frankrijk), waarin gecoaguleerd Seinewater, met een concentratie van 15 $\mu\text{g PO}_4/\text{l}$ wordt gefiltreerd (mondelinge mededeling Rizet, Soc. Lyonnaise des Eaux, Le Pecq).

A.3.3 Vermijding van ongewenste processen in de grond

Motivatie

Een aantal processen in de kalkrijke duingrond dient te worden vermeden in verband met (1) een kwaliteitsverslechtering van het teruggewonnen water en eventueel het bereide drinkwater, (2) een verhoging van de nazuiveringskosten en (3) een mogelijke aantasting van de natuur.

Aard van ongewenste processen in de grond

De volgende processen worden als voorbeeld van ongewenste processen beschouwd:

- 1) Een al te sterke verhoging van de hardheid, door infiltratie van te agressief water, door een vèrgaande nitrificatie bij een hoge NH_4 -belasting of door een sterke oxydatie van organisch materiaal;
- 2) het oplossen van veel Fe en Mn door het ontstaan van anaërobie;
- 3) een desorptie of te snelle desorptie, bijvoorbeeld van fosfaten en zware metalen door oplossing van onder andere Fe- en Mn-oxyden, die als adsorbens fungeren;

Mogelijk kunnen hieraan worden toegevoegd:

- 4) een desorptie of te snelle desorptie van virussen en negatief geladen organische en anorganische microverontreinigingen bij een sterke pH-verhoging (zie par. 5.3.2 en Stumm & Morgan, 1981);
- 5) een ongehinderde bodempassage van potentieel afbreekbare of in verband met demping te vertragen stoffen; en
- 6) de vorming van ongewenste omzettingsprodukten.

Maatregelen

Het optimaliseren van de voorzuivering ter vermij-

ding van ongewenste kwaliteitsveranderingen bij bodempassage is een vrij ingewikkelde problematiek. Enerzijds komt dit doordat kwaliteitsveranderingen bij bodempassage in belangrijke mate afhankelijk zijn van de grondsamenstelling (Lips et al, 1969; Van Puffelen, 1972; Stuyfzand, 1984). Anderzijds doordat wat gunstig is voor de ene verbinding, ongunstig kan zijn voor de ander: zo werkt een redoxverlaging bij bodempassage een verhoging van de hardheid en Fe- en Mn-gehalten in de hand, doch brengt het een denitrificatie en afbraak of omzetting teweeg van enkele potentieel schadelijke groepen van organische microverontreinigingen als halogeën- en nitroverbindingen (zie par. 4.4.6.4.2). Niettemin wordt aangenomen, dat de kans op het optreden van ongewenste processen in de grond daalt met een toenemende voorzuivering.

A.3.4 Vermindering van aanvoer en accumulatie van schadelijke stoffen en nutriënten

Motivatie

Een accumulatie in de bodem van potentieel schadelijke stoffen en de aanvoer van hoge concentraties nutriënten (vooral fosfaten; Van Dijk, 1982) leidt tot gevaren voor het natuurbehoud (onder andere een verruiging van oevervegetaties van infiltratie- en kwelplassen; Van Dijk, 1982) en gevaren voor de kwaliteit van het teruggewonnen water (bijvoorbeeld ten gevolge van desorptie of oplossing van geaccumuleerde stoffen).

Aard van accumulatie

Een accumulatie kan geschieden door stoffen in onopgeloste en opgeloste vorm. Onopgeloste stoffen accumuleren voornamelijk in de bovenste lagen van de grond door de filterende werking ervan en wor-

den, voor zover ze al niet afgebroken zijn, bij het schoonmaken van de infiltratieoppervlakken verwijderd. Opgeloste stoffen, die voornamelijk verwijderd worden door adsorptie respectievelijk precipitatie, kunnen echter dieper in de grond penetreren en daardoor onbereikbaar worden voor een eventuele mechanische schoonmaak.

Een zeer ondiepe accumulatie is aangetoond van zware metalen (zie par. 3.6), organische stoffen (zie par. 4.4.5) en van fosfaten (Oosterhoud et al, 1982).

Maatregelen

Doordat een aanzienlijk deel van de schadelijke stoffen in onopgeloste vorm in het oppervlaktewater voorkomt (RIWA/RID, 1980), leidt elke voorzuivering met als doel een verwijdering van zwevende en colloïdale stoffen tot een substantiële verlaging van schadelijke stoffen.

Een voorzuivering bestaande uit vlokvorming en vlokverwijdering is hierin bijzonder effectief, meer dan een snelfiltratie (eventueel voorafgegaan door een beluchting en sedimentatie) alleen, hetgeen uit tabel A.1 volgt.

A.3.5 • Bijdrage aan een zo goed mogelijke kwaliteit van teruggewonnen water

Motivatie

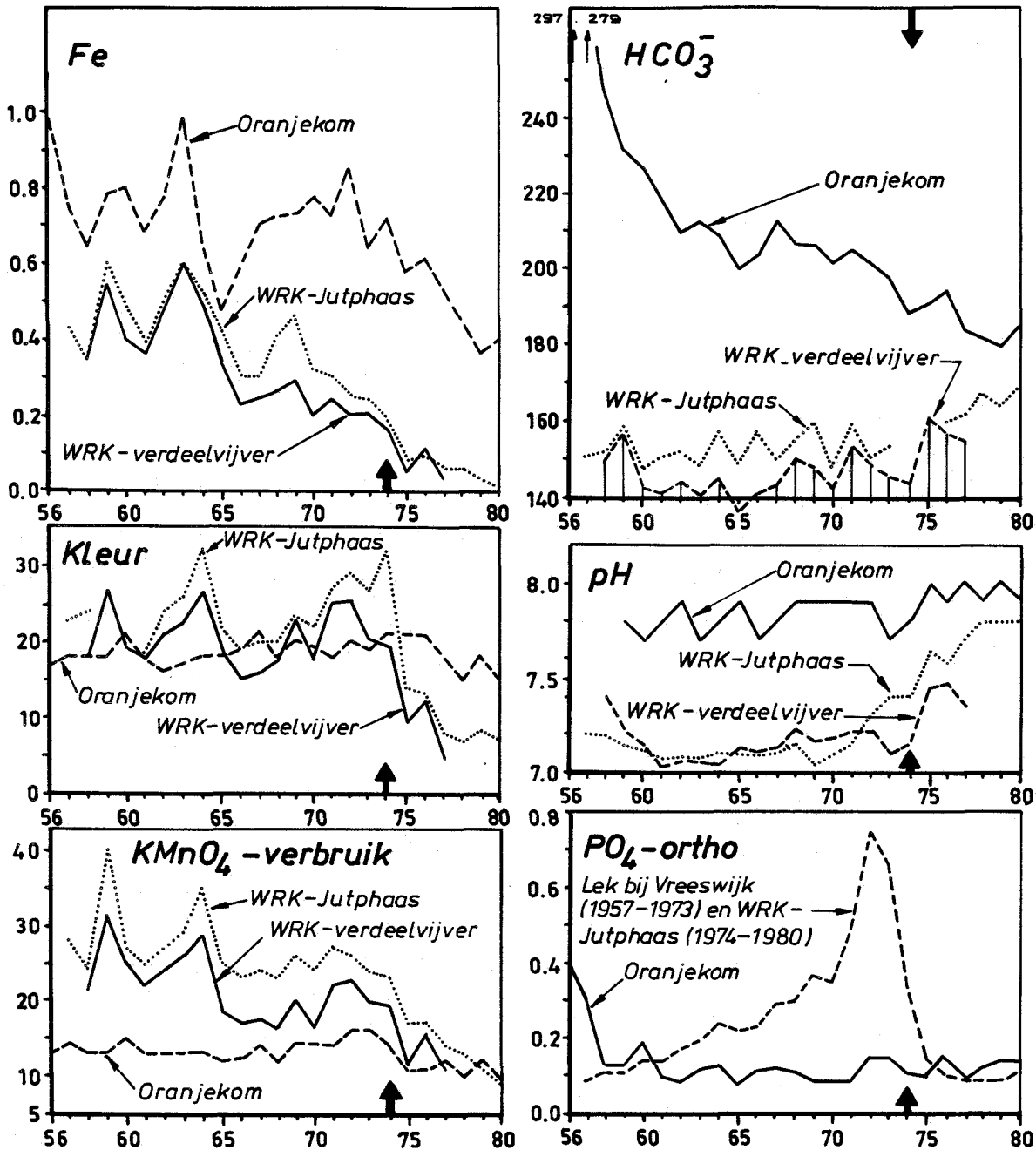
Een zo goed mogelijke kwaliteit van het teruggewonnen water is in het belang van

(1) de terugwinning, in verband met extra kosten door corrosie- of verstoppingsproblemen, (2) de nazuivering, in verband met extra kosten, en (3) het natuurbehoud onder andere omdat de waterkwaliteit in door infiltratie beïnvloede kwelplassen dan acceptabel is.

Discussie

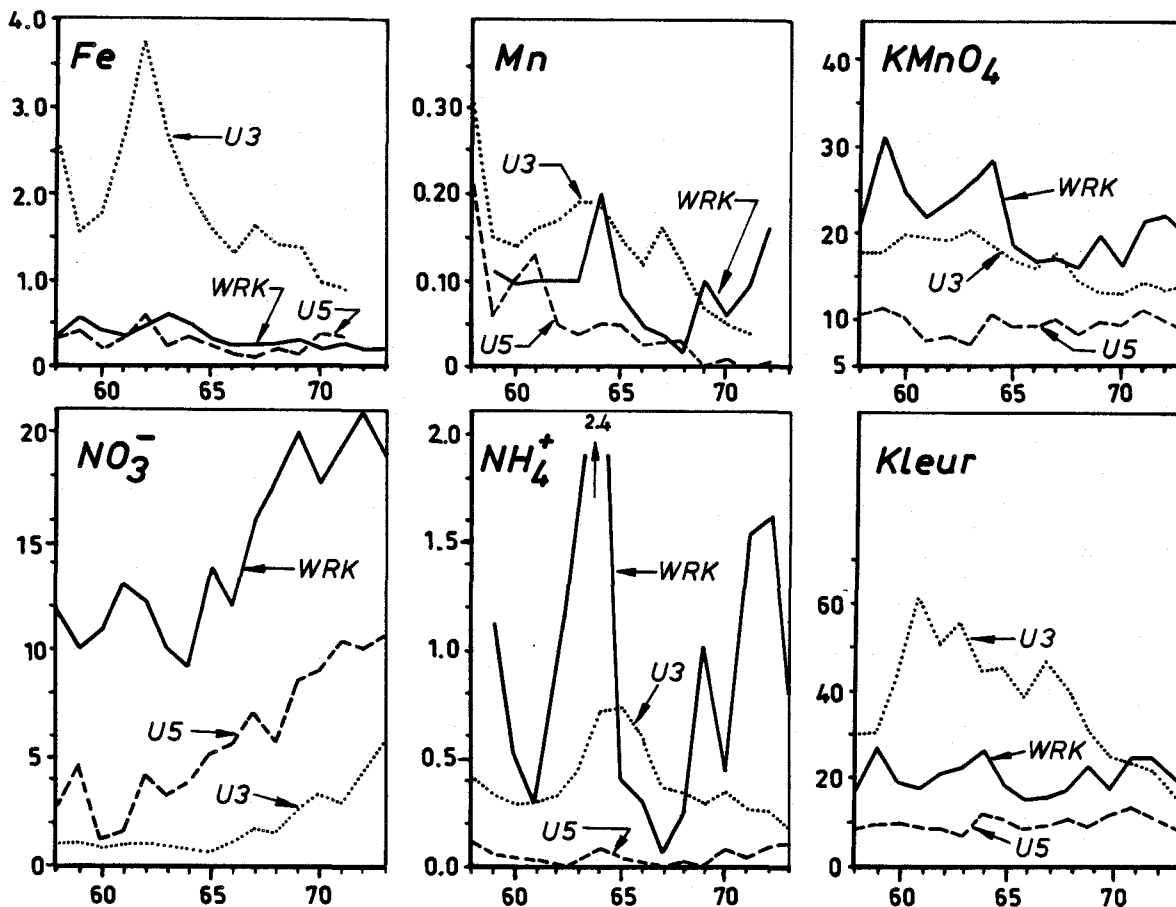
Ervaringen uit de infiltratiepraktijk wijzen er tot op heden niet op, dat een uitbreiding van de voorzuivering, zoals die bij het PWN, GW en de DWL heeft plaatsgevonden halverwege de zeventiger jaren, altijd een directe kwaliteitsverbetering van het teruggewonnen water impliceert. Dit valt bijvoorbeeld af te leiden uit fig. A.1, waarin het kwaliteitsverloop is geschetst van het aangevoerde WRK-water bij GW en het teruggewonnen, met duinwater bijgemengde water in de Oranjekom: het fosfaatgehalte, de kleur en het KMnO_4 -verbruik van het water in de Oranjekom blijven ongeveer gelijk ondanks een duidelijke daling in de aanvoer sinds de verbetering in de voorzuivering vanaf augustus 1974. De daling van het Fe- en HCO_3 -gehalte houdt eerder verband met het percentage bijmenging van duinwater en een geleidelijke uitloging van het infiltratiepakket aan ijzersulfiden en organische verbindingen dan met een verbeterde voorzuivering (Stuyfzand, 1984). Bovenstaande houdt enerzijds verband met de sterke bufferende werking van het infiltratiepakket en de bodemsliblaag, waardoor een grote vertraging op zal treden, en anderzijds met de sterke beïnvloeding van de kwaliteit van het percolerende water door de samenstelling van het infiltratiepakket. Dit laatste blijkt uit fig. A.2, waarin de invloed van veen naar voren komt.

Resultaten van onderzoek door de DWL naar de invloed van defosfatering op de infiltratie (zie par. A.4.1) wijzen erop, dat een uitbreiding van de voorzuivering in nieuwe (!) infiltratiepannen wel een directe verbetering van de kwaliteit van het teruggewonnen water betekent. Resultaten van de infiltratiepraktijk in Duitsland (Stadager & Elleu,



Figuur A.1 - Kwaliteitsverloop van het aangevoerde WRK-water bij GW in de verdeelvijver (en te Nieuwegein juist voor intrede in de transportleiding) en het teruggewonnen, met duinwater bijgemengde water in de Oranjekom (ontleend aan Stuyfzand, 1984). Een pijl op de tijdschaal geeft aan het moment, waarop de voorzuivering van WRK-water werd uitgebreid

1961) en van infiltratieproeven ten behoeve van de infiltratie in de Veluwe (zie par. A.4.4) wijzen erop, dat bij percolatie door een pakket, dat uit vrij schoon zand bestaat de kwaliteit van het teruggewonnen water niet verslechtert. Bij de infiltratie in de Veluwe werd echter wel aangetoond, dat de waterkwaliteitsverbetering afneemt bij een stijgende graad van voorzuivering.



Figuur A.2 - Kwaliteitsverloop van het aangevoerde WRK-water bij GW in de verdeelvijver en na bodempassage in een veenloos (U5) en sterk veenhoudend infiltratiegebied (U3), ontleend aan Stuyfzand (1984)

Hieruit valt te concluderen, dat als uitsluitend de waterkwaliteitsaspecten in overweging worden genomen, het voordeliger kan zijn de voorzuivering te beperken, het zuiveringsvermogen van de bodem voor de verbetering van de waterkwaliteit maximaal te benutten en de gewenste kwaliteit van het eindproductwater pas met behulp van de nazuivering te bereiken. In het bijzonder lijkt het aantrekkelijk om bodempassage voor verwijdering van pathogene organismen te benutten, waardoor de toepassing van ongewenste chemische desinfectiemethoden in het gehele drinkwaterbereidingssysteem achterwege kan blijven. Onder de Nederlandse omstandigheden zullen echter vaak, zoals reeds gezegd, andere aspecten (natuurbehoud, bodemverontreiniging) een belangrijker rol spelen bij de keuze van de omvang van de voorzuivering.

A.4 "Case-studies" in Nederland naar de functie van voorzuivering bij open infiltratie

A.4.1 Onderzoek van de DWL

Het onderzoek werd verricht om de invloed na te gaan van uitbreiding van de voorzuivering met een coagulatie en hiermee gepaard gaande defosfatering, op de beperking van algengroei in het te infiltreren water en op de kwaliteitsveranderingen tijdens percolatie door de grond (Bos et al, 1971; Janzen, 1974; Van Puffelen, 1972 en 1979).

Het onderzoek werd in twee naast elkaar liggende, nieuwe infiltratiepannen uitgevoerd en duurde van mei 1970 tot en met september 1973. In pan 8.2 (zie fig. 2.7), met een oppervlak van 0,8 ha en een gemiddelde verblijftijd van 6 dagen, werd rivierwater, dat alleen te Bergambacht met behulp van snel-

filtratie en transportchloring behandeld was, geïnfiltrerd. In pan 8.1 (zie fig. 2.7), met een oppervlak van 1,1 ha en een gemiddelde verblijftijd van 6 dagen, werd hetzelfde water echter na additionele coagulatie en snelfiltratie geïnfiltrerd.

Om de veranderingen van waterkwaliteit tijdens bodempassage te kunnen volgen werden op vijf plaatsen in talud en bodem van de pannen horizontale drainageleidingen gelegd op 1 en 2 m diepte. Daarnaast zijn er waarnemingsputten aangebracht op circa 7 m, 17 m, 30 m, 48 m en 69 m vanaf het talud volgens de stroomrichting van het water, zodat het mogelijk was de waterkwaliteit na verschillende verblijftijden te volgen.

Kwaliteitsveranderingen in de pannen

Verschillen in samenstelling van het water in beide pannen zijn te zien in tabel A.2 en fig. A.3. Hieruit blijkt, dat er met behulp van coagulatie een aanzienlijke verlaging van het fosfaatgehalte en ook van organische stoffen werd bereikt. Van de veranderingen van kwaliteit in de pannen is een duidelijke daling van het fosfaatgehalte en een pH-stijging in pan 8.2 met niet-gecoaguleerd water opmerkelijk (opname door algen).

Door de defosfatering werd een aanzienlijke beperking van algengroei in pan 8.1 met gecoguleerd water bereikt, hetgeen de verstopping van de bodem gunstig beïnvloedde: terwijl hier geen verstopping optrad, leidde een sterke algengroei in pan 8.2 met niet-gecoaguleerd water tot duidelijke verstoppingsverschijnselen. Zo is bijvoorbeeld tijdens een sterke voorjaarsbloei in februari 1971 de infiltratiecapaciteit van deze pan verminderd van 80 m³/uur tot circa 33 m³/uur.

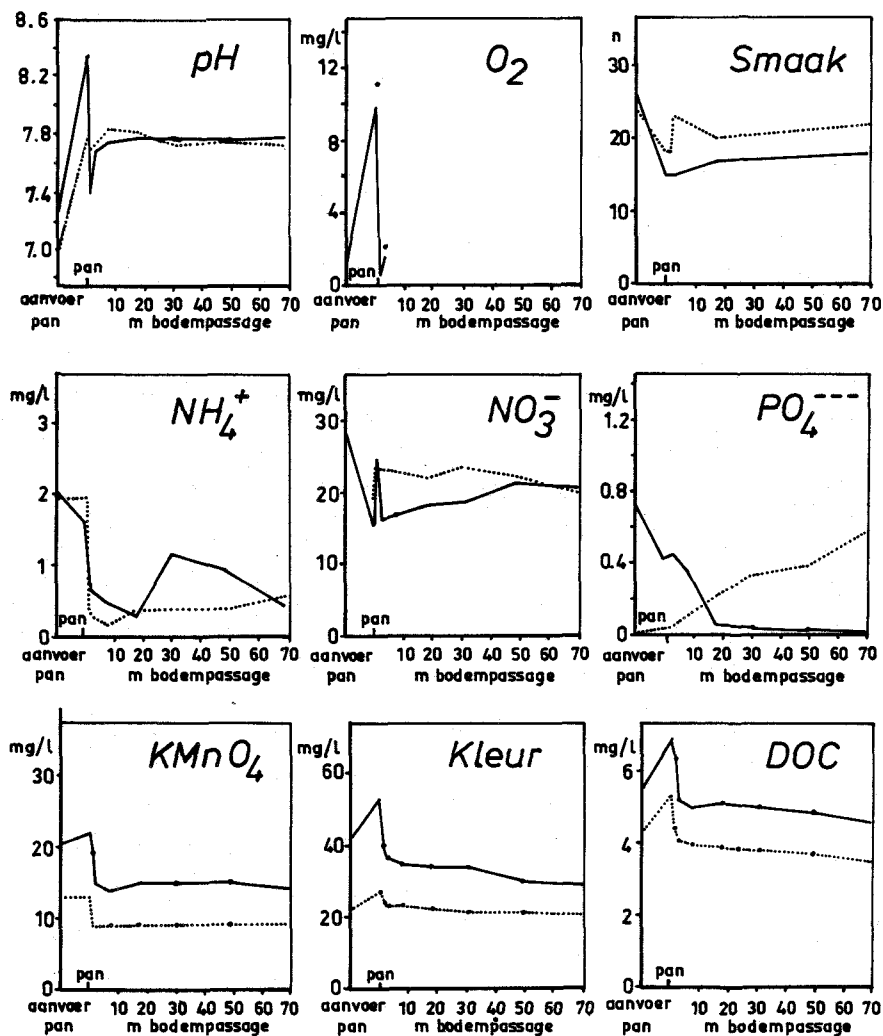
mg/l	pan 8.1 (+ coag)		pan 8.2 (-coag)	
	toevoer	pan	toevoer	pan
Cl ⁻	-	207	192	196
PO ₄ -ortho	0,015	0,028	0,63	0,42
pH	6,94	7,56	7,22	7,95
NH ₄ ⁺	1,81	1,66	2,27	1,48
KMnO ₄ -verbruik	12,8	13,7	20,6	21,4
Kleur (mg Pt/l)	19,7	23,3	38,2	42,3
Smaak (n)	20,3	15,0	26,0	15,5
O ₂	-	10,7	-	10,3

Tabel A.2 - Kwaliteit van de toevoer van pan 8.1 (met een coagulatietrapp in de voorzuivering) en van pan 8.2 (zonder deze trap), alsmede van het water in deze pannen na een verblijftijd van hooguit enkele dagen. Gemiddelden over de periode juli 1970-juni 1973 (gebaseerd op grotendeels ongepubliceerde gegevens van de DWL, bewerkt door Stuyfzand, 1985)

Kwaliteitsveranderingen tijdens percolatie

In fig. A.3 is het verloop weergegeven van de onderzochte kwaliteitsparameters, als functie van de afgelegde afstand ondergronds. Het betreft de gemiddelde situatie tijdens het tweede kwartaal van 1972, die op details na representatief kan worden geacht voor de hele onderzoeksperiode. Uit deze figuur kan het volgende worden afgeleid bij vergelijking van het wel en niet gecoaguleerde water:

- (1) na 30-60 m bodempassage is er vrijwel geen verschil meer wat betreft de pH, NH₄ en NO₃;
- (2) oorspronkelijke verschillen in KMnO₄-verbruik, kleur, smaak en DOC blijven na 69 m bodempassage bestaan;
- (3) aanvankelijke verschillen in PO₄-gehalte veranderen na circa 10 m bodempassage van teken. Dit houdt zeer waarschijnlijk verband met een afwijkende bodemsamenstelling, i.c. mogelijk een onder het zand bedolven mesthoop bij pan 8.1



Figuur A.3 - Invloed van een extra voorzuivering door (een coagulatieproces op de kwaliteitsverandering van Lekwater tijdens het verblijf in een infiltratiepan en bij bodempassage (DWL, 2e kwartaal 1972, gemiddelden van 13 metingen; iets gewijzigd naar Van Puffelen, 1979)

A.4.2 Onderzoek van het PWN

Door het PWN is in 1972 en 1973 in Wijk aan Zee de invloed van voorbehandeling van WRK-water op de infiltratie onderzocht (Kramer, 1974). Er werden infiltratieproeven met twee soorten water verricht: (a) met WRK-water na een coagulatie in opwaartse filters en (b) met het effluent van de opwaartse filters na ozonisatie.

Het voorgezuiverde water werd in twee cirkelvormige basins (diameter 50 m) geïnfiltreerd met een snelheid van 0,3 m/d. De gemiddelde verblijftijd van het water in de ondergrond was 5 weken.

De resultaten van deze proeven zijn, wat de veranderingen van de waterkwaliteit betreft, in tabel A.3 samengevat. In deze tabel is tevens de kwaliteit van het onbehandelde WRK-water en van het teruggewonnen water uit het gehele infiltratiegebied Castricum opgenomen. Een vergelijking van de veranderingen van dit water met die van het voorbehandelde water dient echter met de nodige omzichtigheid te geschieden, omdat de omstandigheden niet helemaal gelijkwaardig waren (verschillen in samenstelling van de grond en in de verblijfstijden).

De meest opvallende resultaten ten aanzien van de kwaliteitsveranderingen zijn:

- de tamelijk hoge afname van het KMnO_4 -verbruik bij infiltratie van beide soorten van voorbehandeld water;
- een hoge toename van het ijzergehalte na infiltratie van alle 3 de watersoorten;
- een vrijwel volledige denitrificatie tijdens de infiltratie van alleen het geozoniseerde water.

Dit laatste wijst erop, dat de ozonisatie organische stoffen beter opneembaar/afbreekbaar maakt voor microorganismen, hetgeen overeenkomt met de literatuur (Van der Kooij et al, 1982).

Parameter (mg/l)	Onbehandeld WRK-water		Gecoagu- leerd, niet- geozoni- seerd water		Gecoagu- leerd en geozoni- seerd water	
	voor inf.	na inf.	voor inf.	na inf.	voor inf.	na inf.
Smaak (n)	20	1	16	1	6	1
Kleur (mg Pt/l)	26	10	18	7	16	5
KMnO ₄	23	21	18	9	16	7
NH ₄ ⁺	0,98	0,05	0,93	0,14	0,94	0,25
Alb.NH ₄	0,21	0,10	0,13	0,10	0,13	0,07
NO ₃ ⁻	18,3	11,9	18,3	6,8	19,0	1,0
O ₂	1,4	2,7	9,4	0,7	10,9	0,5
Fe	0,20	1,7	0,07	3,5	0,06	2,5

Tabel A.3 - Kwaliteit van Lekwater zonder en met een extra voorzuivering, onderverdeeld in een deel met alleen coagulatie en een deel met coagulatie + ozonisatie, alsmede de kwaliteit van deze 3 wateren na bodempassage (zie verder tekst; ontleend aan Kramer, 1974)

A.4.3 Onderzoek van de LDM

Door de LDM werden in 1980 de gevolgen bestudeerd van "defosfatering op bedrijfsschaal" (sinds 1979) voor de algengroei in infiltratievijvers en de doorlatendheid van de bodem van infiltratievijvers. De defosfatering geschiedt in het duin door middel van een dosering van FeClSO₄ (circa 10 mg Fe/l) en een bezinking in bekkens, die in serie geschakeld zijn. Op een zestal plaatsen in de stroomrichting hierin is het te infiltreren water regelmatig bemonsterd. De chemische analyseresultaten hiervan zijn weergegeven in tabel A.4. Hieruit volgt, dat (1) vanaf 1400 m afstand van de defosfateringsinstallatie het orthofosfaat- en totaalfosfaatgehalte en de kleur sterk toenemen, terwijl (2) al vanaf 200 m de pH en het zwevende stof-gehalte toenemen. De toename van deze parameters is geheel in overeenstemming met een met de afstand stijgende algengroei.

De reden voor het beperkte effect van de defosfatering is gelegen in een onvoldoende verwijdering van zwevende stoffen in de bezinkbekkens, leidend tot een nog hoog totaalfosfaatgehalte van 0,7 mg/l. Daarnaast spelen ongetwijfeld ook een rol een fosfaatlevering vanuit oud bodemslib en via vogelexcrementen (guanotrofiëring).

Parameter [mg/l]	voor defosf.	na defosf.	Afstand vanaf defosfateringsinstallatie				
			200 m	550 m	925 m	1400 m	3000 m
kleur	56.3	44.5	36.5	36	37.1	42.8	47.8
PO ₄ -ortho	1.77	0.13	0.06	0.06	0.06	0.31	0.33
PO ₄ -tot	2.37	2.41	0.71	0.76	0.76	1.17	1.32
pH	8.10	7.14	7.45	7.68	7.96	8.44	8.75
zw. stof	24.0	50.4	14.2	17.6	20.9	25.3	35.2

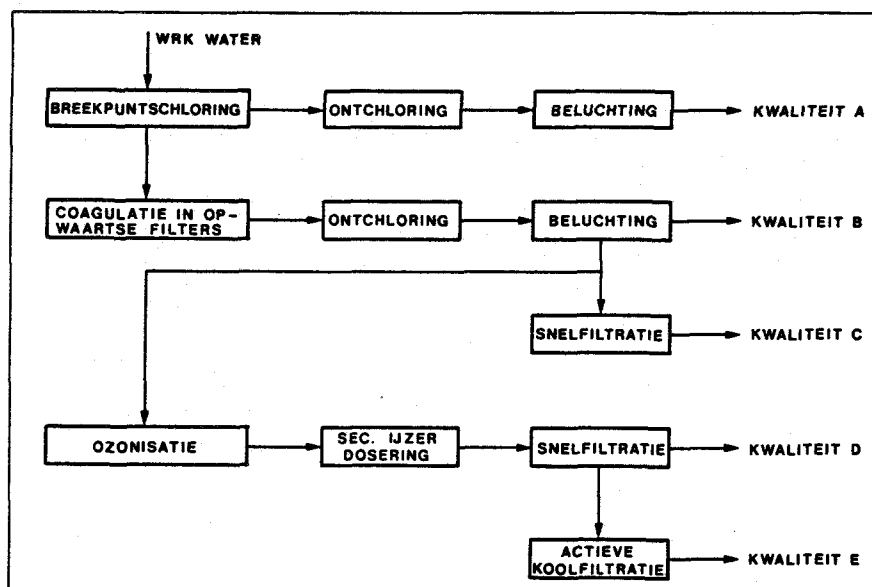
Tabel A.4 - LDM-onderzoek naar de effecten van defosfatering van het te infiltreren water. De kwaliteit van het water voor en na defosfatering als functie van de afgelegde afstand in vijvers, die in serie zijn geschakeld

A.4.4 RID/KIWA-onderzoek

In de jaren 1972-1976 werd in de proefinstallatie te Leiduin het gezamenlijke onderzoek van RID/KIWA ten behoeve van de geplande ondergrondse voorraad- vorming van Rijnwater in de Veluwe uitgevoerd (Hrubec, 1978). Het voornaamste doel van de onderzoeken was het verkrijgen van inzicht in het verband tussen de mate van voorzuivering van het Rijnwater, infiltratiesnelheden en infiltratieloop- tijden. Er is getracht meer informatie te verkrij- gen met betrekking tot waterkwaliteitsveranderingen tijdens infiltratie en de accumulatie van verschil- lende stoffen uit het te infiltreren water in het zandpakket.

Bij het onderzoek werd gebruik gemaakt van het WRK-

water, dat in de proefinstallatie overeenkomstig de schematische voorstelling van fig. A.4 gezuiverd werd. De infiltratieproeven werden in infiltratieketels (diameter 2 m, hoogte 6,5 m), die gevuld waren met zand afkomstig uit de Veluwe, uitgevoerd. De infiltratieketels konden van het licht worden afgesloten, zodat een gesloten infiltratie in ondergrondse tunnels kon worden gesimuleerd.



Figuur A.4 - Schema van voorzuivering van WRK-water in de proefinstallatie te Leiduin (GW) ten behoeve van het RID/KIWA-onderzoek (Hrubec, 1978)

Op grond van de verkregen resultaten zijn de volgende belangrijkste conclusies getrokken.

- (a) Bij de open infiltratie van water van kwaliteit D (fig. A.4) trad op het infiltratie-oppervlak een groei van algen op bij een gemiddelde fosfaatconcentratie van $30 \mu\text{g/l}$, waardoor de infiltratiesnelheden aanzienlijk verlaagd en de looptijden verkort werden. De waarschijnlijke oorzaak van de groei was de hoge fosfaatbelasting van het infiltratie-oppervlak ($75 \text{ g PO}_4 \text{ m}^{-2} \text{ j}^{-1}$) als gevolg van de toepassing van de hoge infiltratiesnelheden.

- (b) De veranderingen in waterkwaliteit tijdens infiltratie waren sterk afhankelijk van de kwaliteit van het te infiltreren water. Tabel A.5 waarin de veranderingen bij infiltratie van waterkwaliteit A en E staan, illustreert, dat het water van slechtere kwaliteit door infiltratie duidelijk verbeterde, terwijl er bij de infiltratie van water na een volledige chemische zuivering inclusief actieve koolfiltratie vrijwel geen veranderingen werden waargenomen. De eindkwaliteit van het verregaand voorgezuiverde water bleef overigens aanmerkelijk beter dan die van het minder voorgezuiverde water.
- (c) Lucht, die als gevolg van waterontgassing accumuleerde in het infiltratiepakket, kan de infiltratiesnelheid verlagen, respectievelijk schommelingen van de snelheden veroorzaken. Voornamelijk bij infiltratie van ver voorgezuiverd water met snelheden, welke de doorlatendheidscoëfficiënt van de grond naderen, blijkt de snelheid aanzienlijk verlaagd te worden. Bij de infiltratie van het niet of weinig voorgezuiverde water wordt de invloed van de lucht, die als een soort quasi-verstopping beschouwd kan worden, overheerst door de verlaging van de doorlatendheid ten gevolge van een echte verstopping van het infiltratieoppervlak.
- (d) De biologische groei op het zandoppervlak kan bij gesloten infiltratie tot verstopping van het infiltratiepakket bijdragen respectievelijk de verstopping veroorzaken. Door de proeven werd aangetoond, dat zelfs bij infiltratie van water van de hoogste kwaliteit (waterkwaliteit E, figuur A.4), met een gemiddeld TOC-gehalte van 1 mg/l en een KMnO_4 -verbruik van 3 mg/l een biologische groei optrad. Door de aanwezigheid van chloor in het te infiltreren water kon de groei aanzienlijk beperkt worden.

Waterkwaliteit	A			E		
Periode	30/6/72-10/12/73			30/11/74-31/12/75		
Parameter [mg/l]	influent	effluent	Δ%	influent	effluent	Δ%
KMnO ₄ -verbruik	17	12	- 29	2,8	2,9	+ 4
TOC	6,1	4,4	- 28	0,9	0,9	0
Kleur (mg Pt/l)	18	11	- 39	1	1	0
Troebeling (JTU)	2,6	0,15	- 94	0,05	0,07	+ 40
Fe	0,24	0,05	- 79	0,02	0,02	0
Mn	0,17	0,06	- 65	0,01	0,01	0
NH ₄ ⁺	0,30	0,1	- 66	0,06	0,05	- 16
NO ₃ ⁻	17,6	18,5	+ 5	20,1	19,9	- 1
PO ₄ ⁻ -Ortho	0,64	0,32	- 50	0,025	0,030	+ 20
pH	6,95	7,0		7,25	7,27	

Tabel A.5 - Kwaliteit van WRK-water van kwaliteit A en E (zie figuur A.4) vóór en na infiltratie in ketels gevuld met Veluwezand (naar Hrubec, 1978)

- (e) Het gehalte aan zwevende stoffen en ijzer, als mede de troebelheid zijn de belangrijkste bestudeerde parameters, die bij de gesloten infiltratie de verstopping van het infiltratieoppervlak en daardoor de infiltratiesnelheid en lengte van de looptijden beïnvloeden. Hierbij kunnen de volgende waarden als maximaal toelaatbaar geacht worden: Fe < 0,05 mg/l, troebelheid < 0,2 JTU en zwevende stoffen onder de detectiegrens bij bepaling met behulp van een membraanfilter met een poriëndiameter van 0,45 μ.
- (f) Om deze geëiste kwaliteit van het te infiltreren water te bereiken was breekpuntschlooring, coagulatie in opwaartse filters en snelfiltratie nodig. Onder omstandigheden van gesloten infiltratie in de Veluwe kunnen met deze voorzuivering looptijden van enkele jaren verwacht worden, bij een infiltratiesnelheid van circa 10-20 m/d.

A.5

Conclusies

1) Op grond van de huidige kennis van de relatie tussen de graad van voorzuivering van te infiltreren water en de verstopping van het infiltratiepakket en een eventuele algengroei in infiltratiemiddelen, is het mogelijk te concluderen, dat in de meeste gevallen de voorzuivering met behulp van coagulatie en snelfiltratie voldoende is om tijdens open infiltratie de verstopping tot een acceptabele omvang te beperken en om een algengroei binnen de perken te houden. Een onmiddellijk effect hiervan op de algengroei kan echter geruime tijd op zich laten wachten, doordat bodemslib fosfaat kan leveren.

2) De accumulatie van schadelijke respectievelijk ongewenste stoffen in de grond wordt aanzienlijk beperkt door verwijdering van zwevende en colloïdale stoffen, zware metalen en fosfaten, hetgeen met behulp van coagulatie en filtratie bereikt kan worden. Over de accumulatie van vele stoffen, waaronder organische microverontreinigingen, bestaan weinig gegevens. Om het gevaar van een eventuele accumulatie van deze stoffen tegen te gaan zou een vergaande voorzuivering inclusief adsorptie aan actief kool noodzakelijk zijn.

3) Wat betreft de relatie tussen de kwaliteit van te infiltreren water en van water na infiltratie respectievelijk het eindproduct water, lijkt het op grond van de bestaande ervaringen economisch voordeliger in plaats van een vergaande voorzuivering een vergaande nazuivering toe te passen om het gewenste eindproduct te verkrijgen. Gezien de andere aspecten van de relatie voorzuivering - infil-

tratie, zoals accumulatie van de verontreinigingen in de bodem en behoud van de natuur en het milieu, en gezien het gebrek aan kennis ten aanzien van het gedrag van met name organische microverontreinigingen in de grond, lijkt echter een vergaande voorzuivering wenselijk te zijn. De bepaling van de graad van voorzuivering hangt sterk af van de plaatselijke omstandigheden.

4) Een aantasting van de natuur kan door het toepassen van een intensieve voorzuivering aanzienlijk beperkt worden, met name door (a) het reduceren van het nodige grondoppervlak voor de infiltratie- en nazuiveringswerken; (b) het beperken van intensieve terreinwerkzaamheden, zoals tijdens het schoonmaken van infiltratieoppervlakken; (c) het beperken van de produktie van afvalzand en (d) het beperken van de accumulatie van schadelijke stoffen en nutriënten in de grond.

Een minimale voorzuivering lijkt hier coagulatie en filtratie te zijn.

LITERATUUR

Allisson, L.E., (1947): "Effect of micro organisms on permeability of soil under prolonged submergence". Soil Sci (63), p. 439-450

Avnimelech, Y. & Nevo, Z. (1964): "Biological clogging of sands". Soil Sci. (98), p. 222-226

Berend, J.E. (1967): "An analytical approach to the clogging effect of suspended matter". Bull. Inter. Ass. Scient. Hydrol. 12, 42

Bos, S.G., Van Puffelen, J.; Janzen, R.W. en Looyen, R. (1971): "De invloed van een verlaging van het fosfaatgehalte van geïnfiltreerd Rijnwater op de algenontwikkeling in infiltratiebekkens en op de kwaliteitsveranderingen tijdens infiltratie". Rapport DWL, mei 1971

Commissie Infiltratie (1958): "Overzicht van de stand van zaken medio 1956 van de voor drinkwatervoorziening verkegen resultaten door infiltratie van oppervlaktewater".

Rapport van de Commissie Infiltratie Veluwe, Verslagen, Adviezen (1976). Rapporten Serie nr. 57, Ministerie voor Volksgezondheid en Milieuhygiëne.

Commissie Voorraadvorming en Zuivering van Oppervlaktewater (1979): "Voorraadvorming en Zuivering van Oppervlaktewater". Rapport RID/CBA-r 78/05.

Dijk, H.W.J. van (1982): "Invloeden van waterwinning door duininfiltratie op de vegetatie". Interimrapport Vakgroep Milieubiologie RU Leiden, 215 p

Folkman, Y. & Wachs, A.M. (1970): "Filtration of Chlorella through dune-sand". Journ. of the San. Eng. Divis., Vol. 96, SA 3, 675-689.

Haasnoot, J. & Leeftang, K.W.H. (1970): "Methodes of Sustaining Good-Infiltration Results". Artificial Groundwater Conf., Univ. of Reading, Paper 6, 21-24 September.

Haberer, K. (1970): "Grundwasseranreicherung zur Qualitätsverbesserung". H₂O, 3, 318-329.

Haberer, K. (1974): "Chemische Probleme bei der Wassergewinnung durch Uferfiltration und künstliche Grundwasseranreicherung".

Österreichische Wasserwirtsch. 25, 103-110.

Hrubec, J. (1975): "De invloed van licht bij infiltratie van Rijnwater in duinzand". H₂O, 8, 41-42.

Hrubec, J. (1978): "Samenvatting van de resultaten van proeven met de infiltratie van voorgezuiverd Rijnwater in Veluwezand". RID-mededeling 78-1.

Hrubec, J. (1978): "De infiltratie van voorgezuiverd Rijnwater in Veluwezand (resultaten van plannen met de RID/KIWA proefinstallatie te Leiduin)" Rapport Comm. Proefinst. Infiltratie. RID/CBA-r-77/10.

Hrubec, J & Roebert, A.J. (1974): "Kort verslag van het bezoek door enige leden van CPI aan de WRA te Hardham". Rapport CPI, april 1974.

Huisman, L. & Olsthoorn, T.N. (1983): "Artificial groundwater recharge". Pitman Adv. Publ. Progam. London, 320 p.

Hunter Blair (1970): "Artificial Recharge of Groundwater". WRA Rep. TP 75.

Jansa, O.V.E. (1951): "Artificial Groundwater Supplies of Sweden". Association Internationale d'Hydrologie Scientifique, Assemblée Générale de Bruxelles, Tome II.

Kooij, D. van der; Visser, A. & Hijnen. W.A.M. (1982): "Determining the concentration of easily Assimilable Organic Carbon in Drinking Water". JAWWA (74). p. 540-545.

Kramer, B. (1974): "Verslag van proeven te Wijk aan Zee betreffende voorbehandeling van WRK-water." Rapport PWN, 29 november 1974.

Krone, R.B. (1970): "Bore hole Recharge: The compatibility of Recharge Water with the Aquifer." Artif. Groundw. Recharge Conf., University of Reading, Paper 10, 21-24 September.

Lindenbergh, P.C. (1953): "Kunstmatige aanvulling van grondwater". Water (37), p. 233-236 en 245-248.

Lips, H.J.M.,; Bulten, B. & Puffelen, J. van (1969): "Kwaliteitsverandering bij infiltratie in de duinen". Rapport Werkgroep Infiltratie Rivierwater in de Duinen (WIRDU), 60 p.

Löffler, H. (1967): "Technologie und Wassergüteverbesserung via der Grundwasseranreicherung". Wasserwirtschaft & Wassertechnik (17), p. 351-354 en 376-381

McCalla, T.M. (1950): "Studies on the effect of micro-organisms on rate of percolation of water through soils". Soil Sci. Soc. Proc. () p. 182-186

Müller, K. (1955): "Wasserwerk Mülhof in Nürnberg". Gas und Wasserfach (96), p. 1-6.

Nevo, Z. & Mitchell, R. (1967): "Factors affecting biological clogging of sand associated with groundwater recharge". Water Research (1), p. 231-236.

Olsthoorn, T.N. (1982): "Verstopping van persputten". KIWA-mededeling (71).

Oosterhoud, E. van; Janze, G.C.; Groot, W.T. de & Dijk, H.W.J. van (1982): "Fosfaat en duininfiltratie: een experimentele benadering". H₂O 15 (18), p. 497-501.

Puffelen, J. van (1972): "Kwaliteitsveranderingen bij de infiltratie van Rijnwater in de duinen". In: Postakademiale cursus Zuiveringssystemen bij de produktie van drinkwater".

Puffelen, J. van (1979): "Berging van oppervlaktewater in de ondergrond". H₂O (12), p. 541-548.

RIWA/RID (1980): "Slib in Rijn en Maas".

Schmidt, W.D. (1972): "Problemen und Praxis bei der Algen Bekämpfung in Infiltrationsbecken". Wasserfachliche Aussprachetagung des DVGM, 23-25 Februari, Dortmund.

Sniegocki, R.I. & Brown, R.F. (1970): "Clogging in Recharge Wells Causes and Cures". Artificial Groundwater Conf., Univ. of Reading, Paper 13, 24-24 September.

Stadager, K. & Elleu, W. (1961): "Die Mainwasseraufbereitungsanlage dem Stadtwerke Frankfurt am Main". Osterreichische Wasserwirtschaft (12), p. 198-204.

Stumm, W. & Morgan, J.J. (1981): "Aquatic Chemistry 2nd edition, Wiley-Intersc. N.Y., 780 p.

Stuyfzand, P.J. (1985): "Kwaliteitsveranderingen van oppervlaktewater bij kunstmatige infiltratie in de Nederlandse Kustduinen: Macroparameters". KIWA-meded. nr. 82 in voorbereiding.

Trüeb, E. (1975): "Überblick über die Technik der künstlichen Anreicherung des Grundwassers, insbesondere in der Schweiz." Gas-Wasser-Abwasser (55), p. 805-815.