

A network diagram consisting of various sized light blue circles connected by thin white lines, set against a solid blue background. The circles vary in size, with some being significantly larger than others, and they are interconnected in a complex, non-linear fashion.

Bedrijfstakonderzoek
BTO 2022.012 | Februari 2022

Verwijdering organische microverontreinigingen tijdens bodempassage

Een synthese van veldmetingen in de infiltratiesystemen Heel en Berkheide

Bedrijfstakonderzoek

KWR

Bridging Science to Practice

Rapport

Verwijdering organische microverontreinigingen tijdens bodempassage: Synthese veldgegevens winningen Heel en Berkheide

BTO 2022.012 | Februari 2022

Dit onderzoek is onderdeel van het collectieve Bedrijfstakonderzoek van KWR, de waterbedrijven en Vewin.

Opdrachtnummer

402045-132

Projectmanager

Ir. M.L. (Martin) van der Schans

Opdrachtgever

BTO - Bedrijfsonderzoek

Auteurs

Dr. B. (Bas) van der Grift, Ir. M.L. (Martin) van der Schans, Dr. P. (Peer) Timmers

Kwaliteitsborger

Dr. N. (Niels) Hartog

Projectbegeleiding

Birgitta Putters (WML), Jamal El Majjaoui (Dunea)

Verzonden naar

Dit rapport is verspreid onder BTO-participanten en is openbaar.

Keywords

bodempassage, organische microverontreinigingen, sliblaag, duininfiltratie, oeverfiltratie

Jaar van publicatie
2021

Meer informatie
dr. Bas van der Grift
T +31 30 606 9519
E Bas.van.der.Grift@kwrwater.nl

PO Box 1072
3430 BB Nieuwegein
The Netherlands

T +31 (0)30 60 69 511
E info@kwrwater.nl
I www.kwrwater.nl

KWR

Februari 2022 ©

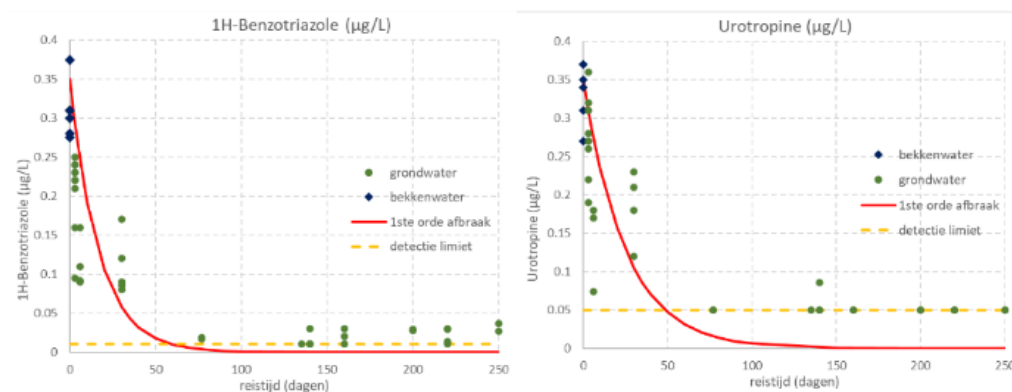
Alle rechten voorbehouden aan KWR. Niets uit deze uitgave mag - zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van KWR - worden verveelvoudigd, opgeslagen in een geautomatiseerd gegevensbestand, of openbaar gemaakt, in enige vorm of op enige wijze, hetzij elektronisch, mechanisch, door fotokopieën, opnamen, of enig andere manier.

Managementsamenvatting

Verwijdering van organisch microverontreinigingen tijdens bodempassage is mogelijk te verbeteren via beheer van sliblaag

Auteurs Bas van der Grift, Martin van der Schans en Peer Timmers.

Bij infiltratie van oppervlaktewater in de duinen en door oevers van rivieren op spaarbekkens kunnen natuurlijke processen in de bodem zorgen voor een verwijdering van organische microverontreinigingen. De doelstelling van dit onderzoek was om door middel van veldmetingen beter zicht te krijgen in de verwijderingsmechanismes van OMV's tijdens bodempassage in duininfiltratie en oeverinfiltratie systemen. De veldmetingen bij de infiltratiesystemen bij Heel en Berkheide geven aan dat de eerste meter bodempassage een hele belangrijke rol speelt in de verwijdering van OMV's bij drinkwaterproductie uit oppervlaktewater waar oeverinfiltratie een onderdeel is van het zuiveringsproces. Het onderzoek geeft aan dat het mogelijk kan zijn om met beïnvloeding van sliblaagvorming en -beheer te zorgen voor gunstiger, veelal meer oxische redoxcondities in de eerste meters overgangszone tussen oppervlaktewater en grondwater om zo de OMV afbraak te beïnvloeden.



Concentraties benzotriazol en urotropine in het oppervlaktewater van spaarbekken De Lange Vlieter en in het geïnfiltreerde water tijdens bodempassage uitgezet tegen de reistijd van het water vanaf infiltratie.

Belang: bijkomend voordeel van bodempassagesystemen

Hoewel bodempassagesystemen zoals duininfiltratie en oeverinfiltratie niet zijn ontworpen om organische microverontreinigingen (OMV's) te verwijderen, blijken zij hiertoe in de praktijk soms goed in staat. Om beter te anticiperen op toekomstige verontreinigen met opkomende stoffen, hebben bedrijven behoefte aan meer inzicht welke OMV's tijdens bodempassage worden verwijderd en welke invloed het bodemslib hierop heeft, inclusief de wisselwerking met micro-

organismen en de hydrogeochemische omstandigheden.

Aanpak: veldmetingen aan waterkwaliteit, bodemsamenstellingen en microbiële populaties

Bij de oeverinfiltratiewinning Heel van WML en de duininfiltratiewinning Berkheide van Dunea is veldonderzoek gedaan om inzicht te krijgen in verwijderingsmechanismes van OMV's tijdens bodempassage. Op beide locaties is de macrochemische samenstelling van het water, OMV concentraties, de

geochemische en microbiologische samenstelling van het bodemslib en de ondergrond bepaald. De metingen zijn in Heel uitgevoerd vanaf infiltratie tot onttrekking en bij Berkheide in en onder twee infiltratiepanden met verschillen in redoxcondities. Omdat de reistijden van het water tijdens bodempassage bekend waren kon een "halfwaardetijd" voor bepaalde OMVs worden berekend, ervan uitgaande dat verdunning een verwaarloosbare invloed had op de concentratieontwikkeling.

Resultaten: korte bodempassage zeer belangrijk voor verwijdering OMVs

Uit het onderzoek blijkt dat vooral in de eerste meters bodempassage na infiltratie verwijdering van OMVs optreedt. Bij Heel bleek dat stoffen, die na ongeveer 1,5 jaar verblijftijd in het spaarbekken nog in het water aanwezig zijn, na infiltratie in de bodem binnen enkele dagen tot weken uit het water verdwijnen. In Berkheide was de verwijdering van een aantal stoffen in de bodem onder de infiltratiepanden nog sneller. Onder het pand met een snelle overgang van oxische naar anoxische condities was de afbraak van OMVs minder snel dan onder het pand waar het water op 1 meter onder de waterbodem nog suboxisch was. Meetgegevens van de drinkwaterproductie bij Berkheide laten verder zien dat, uitgaande van de concentraties in het ingenomen ruwwater, 58% van de totale verwijdering van de som aan geneesmiddelen voor rekening komt van de korte bodempassage tot ongeveer 1.5 m onder de infiltratiepanden. Ter vergelijking: 31% wordt verwijderd tijdens de voorzuivering van het ingenomen oppervlaktewater voor infiltratie van het water in de duinen, 3% tijdens de bodempassage vanaf ca 1.5 m diepte tot onttrekking en 8% tijdens de nazuivering van het onttrokken duinwater.

De snelle verwijdering van OMVs tijdens ondiepe bodempassage zijn waarschijnlijk het gevolg van de hoge biogeochemische activiteit in de overgangszone tussen oppervlaktewater en grondwater. Dit wordt weerspiegeld in de complexe gradiënten van redoxgevoelige parameters, reactieve bodembestanddelen zoals organische stof en ijzer(hydr)oxiden en, kalkgehalte, biologische activiteit en microbiële populaties in de eerste meter sediment onder de waterbodem.

Toepassing: optimalisatie van bodempassage voor stimulering OMV afbraak

Uit het onderzoek blijkt dat een dikke en organisch stof rijke sliblaag vermoedelijk een negatieve invloed heeft op de afbraakpotentie van een groot aantal OMV's tijdens bodempassage. Een erg dunne of volledig afwezige sliblaag kan echter ook ongunstig zijn. Waterbedrijven hebben zelf grote invloed op de vorming en eigenschappen van deze sliblaag via bijvoorbeeld de voorzuivering, pandbeheer, en slibverwijdering. Hiermee zou dus mogelijk gericht gestuurd kunnen gaan worden om de afbraakcapaciteit tijdens bodempassage te vergroten.

Hiervoor is het echter noodzakelijk dat er meer locatie-specifiek inzicht komt in over onder welke condities de sliblaag de afbraak tijdens bodempassage zo min mogelijk negatief, en mogelijk zelfs positief kan beïnvloeden. We adviseren de beheerders van infiltratiesystemen daarom om gericht onderzoek uit te voeren onder panden met verschillende redoxcondities en de relatie met de eigenschappen van de bovenliggende sliblaag te bepalen. Hiermee kunnen de handvatten ontwikkeld worden waarmee sliblaagbeheer de redoxcondities, organische stofgehalte en andere stuurbare parameters en de verwijdering van OMV's tijdens bodempassage verder verbeteren.

Het Rapport

Dit onderzoek is beschreven in het rapport *Verwijdering organische microverontreinigingen tijdens bodempassage: synthese Heel en Berkheide* (BTO-2022.012).

Deze synthese is tot stand gekomen op basis van onderzoek zoals beschreven in de rapporten:

- *Verwijdering OMVs tijdens bodempassage in het infiltratiebekken De Lange Vlieter.* (BTO(s)-2020.206)
- *Geochemische en microbiologisch metingen rond pand 38 en 40-2 te Berkheide* (KWR-2022.026)
- *Effecten van geavanceerde oxidatie op de waterkwaliteitsveranderingen en microbiologie bij duininfiltratie* (KWR 2021.047).

Inhoud

Rapport	2
<i>Managementsamenvatting</i>	3
Inhoud	6
1 Inleiding	7
2 Werkwijze	8
2.1 Oeverinfiltratiesysteem De Lange Vlieter	8
2.1.1 Beschrijving infiltratiesysteem	8
2.1.2 Veldmetingen	8
2.2 Duininfiltratiesysteem Berkheide	9
2.2.1 Beschrijving infiltratiesysteem	9
2.2.2 Veldmetingen	10
2.3 Interpretatie	10
3 Resultaten	13
3.1 Redox parameters	13
3.2 Slib eigenschappen	13
3.3 Organische microverontreinigingen	15
3.4 Biologische activiteit (ATP)	17
3.5 Microbiële populaties	19
4 Discussie: invloed van sliblaag op verwijdering OMVs tijdens bodempassage	24
4.1 Invloed sliblaag op redoxconditie en bacteriepopulatie	24
4.2 Invloed bacteriepopulatie op verwijdering OMV's	24
4.3 Synthese	24
4.4 Consequenties voor pandbeheer	26
5 Conclusies en aanbevelingen	27
5.1 Conclusies	27
5.2 Aanbevelingen	27
Referenties	29

1 Inleiding

De afgelopen jaren zijn op twee locaties (Berkheide en Heel) gedetailleerde veldonderzoeken uitgevoerd naar de afbraak van organische microverontreinigingen (OMV) tijdens bodempassage.

In het kader van het BTO bedrijfsonderzoek 'Effectiviteit en mechanismen van verwijdering OMV bij bodempassage' zijn in het infiltratiebekken De Lange Vlieter bij Heel van WML metingen gedaan in een meetraai bij Galgenberg Noord. Hierbij zijn een aantal benzotriazolen en HILIC (Hydrophilic Interaction Liquid Chromatography) stoffen gemeten. Ook zijn langs dezelfde meetraai de redoxcondities en microbiële populaties in kaart gebracht. Daarnaast is in aanvullende opdracht van Dunea en WML ook de geochemische samenstelling van de sliblaag en het sediment onder de sliblaag geanalyseerd. De resultaten van dit onderzoek zijn beschreven in Van der Grift en Timmers (2020) en Van der Grift, Timmers en Stuyfzand (2021).

In het kader van het GOBAM project (Geavanceerde Oxidatie BergAMBacht, zie Heijnen et al. (2018) en Timmers et al (2021)) heeft Dunea vergelijkbare metingen gedaan aan het duininfiltratiesysteem Berkheide. De doelstelling van dat onderzoek was om te bepalen wat het effect is van de mogelijke verhoogde assimileerbare koolstof concentraties, transformatieproducten en bijproducten die ontstaan tijdens geavanceerde oxidatie (AOP) op de afbraak van OMVs, de organische en anorganische chemie, de biologische activiteit en microbiële populaties en de toxiciteit op slib- en bodempassage in de infiltratieplassen. Dat onderzoek besloeg de periode 2016-2017 voor de bijmenging van AOP behandeld water (nulmeting) dat gerapporteerd is in Heijnen et al. (2018) en in 2019 na bijmenging van 30%-40% AOP behandeld water in het infiltratiewater (effectmeting), dat samen met de nulmeting gerapporteerd is in Timmers et al. (2021).

Dit rapport omvat een synthese van bovenstaande studies in Heel en Berkheide en heeft als doel om meer inzicht te bieden in welke verwijderingsmechanismen optreden tijdens bodempassage in infiltratiesystemen. Hiertoe is een vergelijking gemaakt van de overeenkomsten en verschillen in macrochemische samenstelling, microbiële populatie en OMV concentraties tussen beide infiltratiesystemen.

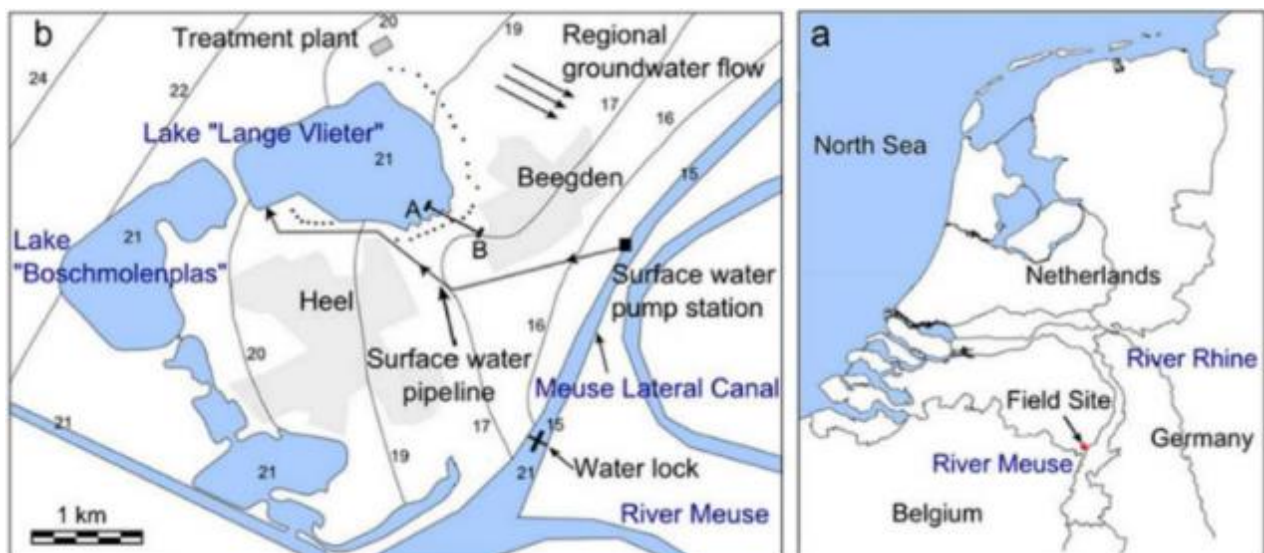
2 Werkwijze

2.1 Oeverinfiltratiesysteem De Lange Vlieter

2.1.1 Beschrijving infiltratiesysteem

Het huidige systeem van drinkwaterbereiding te Heel bestaat uit achtereenvolgens de inname van Maaswater uit het Lateraalkanaal via een speciaal inlaatwerk, voorbezinking en (sinds 2019) defosfatering van het Maaswater in een afgeschermd deel van het bekken De Lange Vlieter (DLV), verblijf in DLV (een verlaten grind-winplas) van circa 1,5 jaar. Na oeverinfiltratie en bodempassage wordt het water via 29 onttrekkingsputten gewonnen, verzameld in twee ruwwatersecties – Galgenberg, en Langven en Reut – en verder gezuiverd tot drinkwater (Bertelkamp et al. 2018, Hartog 2014).

In De Lange Vlieter is de afgelopen 20 jaar vier keer slib verwijderd (2001, 2007, 2011 en 2019) langs verschillende delen van de infiltratietaluds. Vanwege het formaat en de diepte van het infiltratiebekken zijn voor het verwijderen van de sliblaag complexe onderwaterbaggertechnieken nodig. Dit was een reden om in 2019 te starten met het onderzoek naar de effecten van slibverwijdering op het hydrologisch en biogeochemisch functioneren van de oeverinfiltratiewinning Heel. Qua hydrologische functioneren van de winning is uit dit onderzoek gebleken dat verwijdering van het slib bij de ruwwatersectie Galgberg steeds minder effect heeft. De stijghoogte in waarnemingsputten nabij de oever neemt af in de tijd bij een gelijkblijvend debiet van de winning en reageren in 2019 niet meer op slibruimen zoals bij eerdere slibruimingsacties wel gebeurde. Dit duidt op een permanente toename van de weerstand van de waterbodem, mogelijk als gevolg van inspoeling van fijn materiaal vanuit het bekken in het watervoevende pakket dat niet meer door middel van slibruiming kan worden verwijderd.



Figuur 2.1. Overzicht van productielocatie Heel (uit: Bustos Medina et al. (2013))

2.1.2 Veldmetingen

In de periode maart 2019 tot en met maart 2020 zijn ten behoeve van dit BTO bedrijfsonderzoek diverse veldwerkzaamheden uitgevoerd rondom het infiltratiebekken 'De Lange Vlieter' in Heel gericht op het verkrijgen van meer inzicht in de verwijdering van OMVs tijdens bodempassage, inclusief de sturende processen:

Grondwaterkwaliteit langs meetraai

Op drie momenten (maart-april 2019, oktober 2019 en maart 2020) zijn er grondwatermonsters genomen uit bestaande peilbuizen in een meetraai bij Galgenberg Noord vanaf het infiltratiebekken tot pompput 5 (Figuur 2.2).

Deze monsters zijn geanalyseerd op:

- macrochemische parameters en sporenelementen
- organische microverontreinigingen: benzotriazolen en HILIC stoffen (1H-benzotriazool, 2-aminobenzothiazool, 2-hydroxybenzothiazool, 2-methylthiobenzothiazool, 4-methyl-1H-benzotriazool, 5,6-dimethyl-1H-benzotriazool, 5-chloor-1H-benzotriazool, 5-methyl-1H-benzotriazool, benzothiazool, guanylureum, melamine, metformine, urotropine)
- Biologische activiteit: adenosinetrifosfaat (ATP)
- Microbiologische populaties door middel van Next-generation DNA sequencing (NGS) (zie Bijlage I voor een beschrijving van deze analyses)

Slibmonsters

In maart 2019 zijn drie monsters genomen van het slib dat tijdens de slibverwijdering van de bodem is opgezogen. In maart 2020 zijn op twee plekken monsters genomen van de waterbodem na slibverwijdering. Deze monsters zijn geanalyseerd op korrelgrootteverdeling, geochemische reactiviteit, ATP en microbiële populatie.



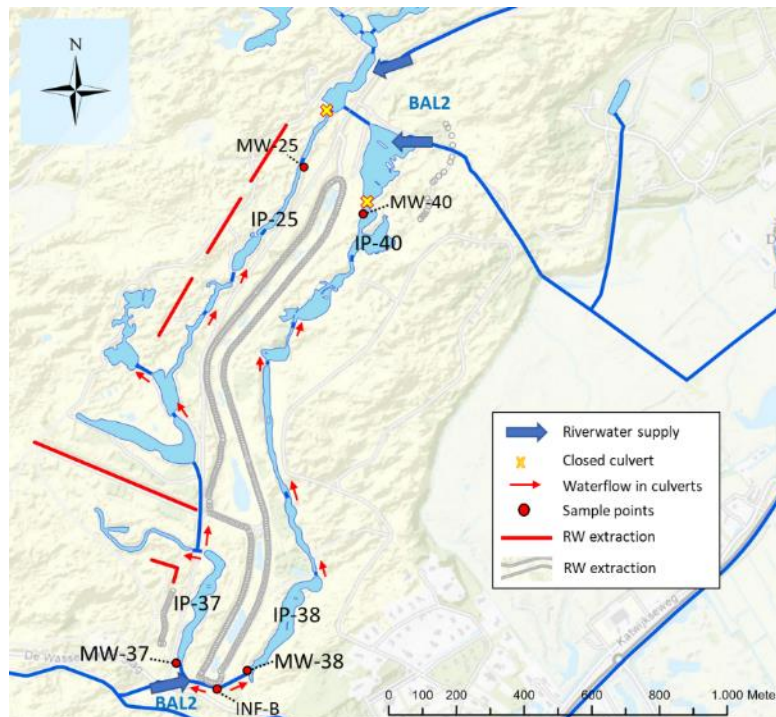
Figuur 2.2. Overzicht van De Lange Vlieter met de ligging van de twee ruwwatersecties Galgenberg Noord, Galgenberg Zuid, Langven en De Reut. De meetraai is in het transect weergegeven.

2.2 Duinfiltratiesysteem Berkheide

2.2.1 Beschrijving infiltratiesysteem

Het waterwingebied Berkheide wordt gekenmerkt door twee series van met elkaar verbonden infiltratieplassen (Figuur 1.3). In de huidige situatie wordt voorgezuiverd rivierwater ingelaten in plassen 37, 38, 40-1 en 25-1, de overige plassen zijn doormiddel van duikers gekoppeld aan deze gevoede plassen. Het ingelaten water is afkomstig uit de 2e Bergambacht leiding (BAL2). De duiker tussen plas 25-1 en plas 25-2 is dichtgezet om ervoor te zorgen dat

de plassen ten noorden van deze plas gevoed kunnen worden. De duiker tussen plas 40-1 en plas 40-2 staat ook dicht. Tussen de parallel liggende infiltratieplassen ligt een onttrekkingsdrain waaruit het eerder geïnfiltreerde water weer wordt onttrokken en richting de nazuivering wordt getransporteerd. De gemiddelde reistijd van het water tussen de inlaat vanuit de BAL2 leiding en onttrekking bedraagt ongeveer 28 dagen.



Figuur 2.3. Waterwingebied Berkheide

2.2.2 Veldmetingen

Op vier locaties in het duininfiltratiesysteem Berkheide, in infiltratiepand 25, 37, 38 en 40-2 zijn peilbuizen onder de infiltratieplassen gezet. Voor het meetprogramma zijn watermonsters genomen en geanalyseerd uit deze infiltratieplassen en de peilbuizen onder de infiltratieplassen. Organische microverontreinigingen zijn alleen gemeten in infiltratiepand 38 en 40-2. Dit programma bevat een periode in 2016-2017 voor de bijmenging van AOP behandeld water (nulmeting) en in 2019 na bijmenging van 30% AOP behandeld water in het infiltratiewater (effectmeting). Omdat AOP effect heeft op de OMV concentraties van het voorbehandelde infiltratiewater zullen alleen de resultaten van OMV analyse van de nulmeting (2016-2017) worden vergeleken.

In het najaar van 2020 zijn aanvullend boringen gezet in de plasbodem om de biologische activiteit en microbiële populatie en de geochemische samenstelling van het de onderwaterbodem te karakteriseren.

2.3 Interpretatie

Van het GOBAM onderzoek wordt alleen de data uit de nulmeting (2016-2017) gebruikt. De data uit de periode met AOP behandeld water (2019-2020) wordt niet gebruikt omdat de AOP tijdens de voorzuivering effect heeft op de OMV concentratie van het infiltratiewater (influent infiltratieplassen). Uit een eerder uitgevoerde analyse (Timmers et al., 2020) is geconcludeerd dat de peilbuis onder infiltratie pan 38 in eerste instantie niet goed geplaatst stond. Deze is daarom in februari 2017 opnieuw geplaatst. Voor deze synthese is alleen de data van de nieuw geplaatste peilbuis gebruikt.

Voor deze synthese zijn, onder de aanname van het optreden van eerste orde afbraak, de halfwaardetijden voor afbraak ($T_{1/2}$) van de vijf OMV in de verschillende infiltratiesystemen berekend en met elkaar vergeleken. De

methode voor berekening van de $T_{1/2}$ is iets verschillend tussen de meetraai Galgenberg en Berkheide. Voor Galgenberg is de $T_{1/2}$ bepaald door een handmatige fit van een eerste-orde afbraak door een reeks aan gemeten concentratie langs de meetraai en bij Berkheide is uitgegaan van de gemeten concentratie in het infiltratiepand en de concentratie in de peilbuis onder het infiltratiepand. Beide methodes maken wel gebruik van berekende reistijden vanaf infiltratie tot de waarnemingsfilters. Voor Berkheide zijn deze getallen afkomstig uit Timmers et al. (2020) en voor de meetraai Galgenberg uit Laeven en Stuyfzand (1997).

Voor vergelijking van de microbiële populaties zijn data gebruikt van de peilbuizen en plaswatermonsters van Berkheide (KWR 2021.047) en de bodemboringen van Berkheide (*KWR-2021.xxx*) in vergelijking met de microbiële populaties in De Lange Vlieter (BTO(s)-2020.206). Hiervoor wordt onder andere gebruik gemaakt van Principal coördinates analyses, dat uitgelegd wordt in BOX 1.

BOX 1: Principal coördinatie analyse

Principal coordinates analysis (PCoA) is een ordinatiemethode die gebruikt wordt om het verschil tussen microbiële gemeenschappen van monsters te visualiseren. De verschillen tussen monsters kunnen op verschillende manieren berekend worden, zoals met de Bray-Curtis dissimilatie-index.

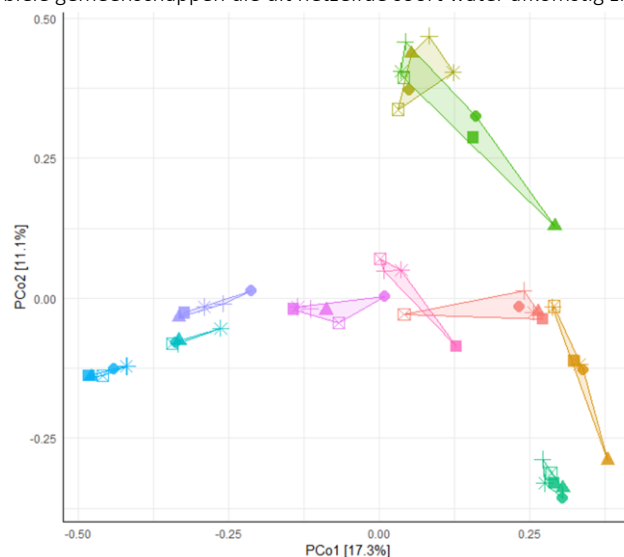
Deze index is een kwantitatieve maat voor verschillen in de microbiële populaties tussen monsters. Deze maat vergelijkt hoeveel verschillende sequenties van micro-organismen er zijn tussen monsters, maar ook hoeveel van elke sequentie voorkomt in ieder monster en hoe deze aantallen verschillen tussen monsters.

$$Bray-Curtis = \frac{2A_{i,j}}{S_i + S_j}$$

waarbij i het ene monster en j het andere monster is; $A_{i,j}$, het laagste aantal sequenties die in allebei de monsters aanwezig zijn, S_i , het totaal aantal sequenties in monster i en S_j , het totaal aantal sequenties in monster j . Het getal dat hier uitkomt (tussen 0 en 1) wordt ook wel de afstand (distance) tussen twee monsters genoemd.

Met deze index wordt dus een afstandswaarde berekend tussen de populatiesamenstelling van monster 1 en monster 2, monster 1 en monster 3, monster 1 en monster N, monster 2 en monster 3, monster 2 en monster N, monster 3 en monster N, etc. Dat levert een kruistabel met monsters op de x en y-as en een afstandswaarde voor de overeenkomst/verschil tussen de populaties tussen twee monsters. Die grote kruistabel wordt middels PCoA gereduceerd tot een groot aantal ongedefinieerde variabelen die verschillen in de mate waarin ze de variantie van de kruistabel verklaren. De twee tot drie variabelen die de hoogste mate van variantie verklaren kunnen vervolgens worden uitgezet op de x en y of x, y en z-as (Ramette et al., 2007), de zogenaamde principal coordinates (PCo's). In een PCoA plot staan op elkaar gelijkende microbiële gemeenschappen dicht bij elkaar en sterk verschillende microbiële gemeenschappen ver van elkaar af.

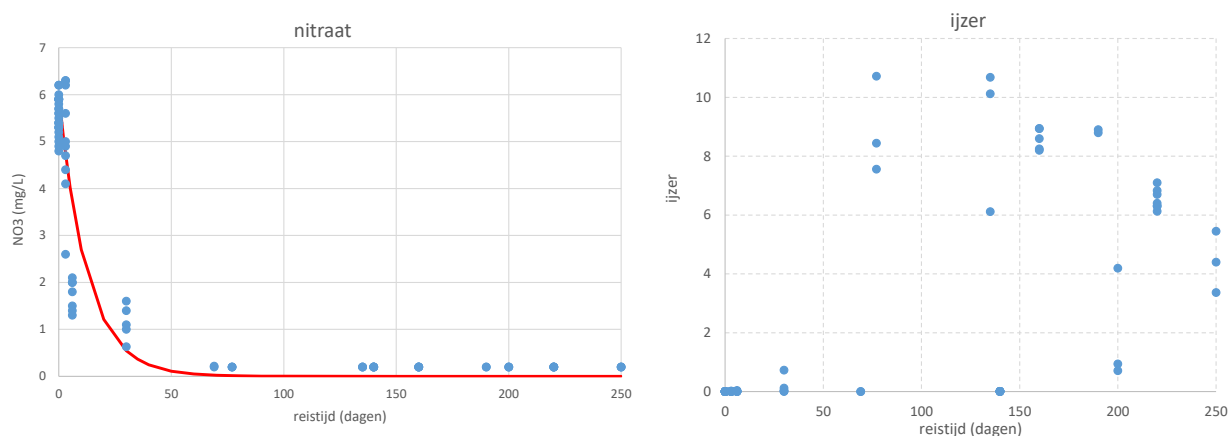
In het geval van NGS data stelt dus elk punt in een PCoA plot een microbiële gemeenschap van een monster voor. Hieronder is een voorbeeld gegeven waarin de x- en y-as samen 28.4% van de variatie in de data verklaren. Er is duidelijk te zien hoe de verschillende microbiële gemeenschappen met elkaar in verhouding staan; de punten met dezelfde kleur zijn microbiële gemeenschappen die uit hetzelfde soort water afkomstig zijn.



3 Resultaten

3.1 Redox parameters

Het grondwater in de meetraai Galgenberg bij DLV ontwikkelt zich van suboxisch naar anoxisch (Figuur 3.1). De nitraatconcentraties in de peilbuizen direct onder het bekken (WP38 t/m WP41) lagen op of onder het niveau van het bekken. Hieruit blijkt dat de redoxreactiviteit van de sliblaag dusdanig beperkt is dat er geen volledige reductie van het infiltrerende bekkenwater optrad. Met een toenemende reistijd zien we verder langs de stroombaan een afname van de nitraatconcentraties tot onder het niveau van de detectielimiet. Het grondwater in deze waarnemingsfilters bevatte wel opgelost ijzer. De ijzerconcentraties liggen tussen 4 en 11 mg/L (Figuur 3.1).



Figuur 3.1. Nitraat en ijzerconcentraties in meetraai Heel versus reistijd vanaf het infiltratiebekken.

Voor drie van de vier infiltratiepanden in het waterwingebied Berkheide (pand 37, 38 en 25) nam de NO_3 niet of nauwelijks af tijdens de eerste meter bodempassage. Hier bleef het infiltratiewater dus (sub)oxisch (zie Tabel 3.1). Pand 40-2 is hierop een uitzondering, de lage NO_3 concentratie en verhoogde Fe concentratie van het water in PB.40 duiden op een overgang naar anoxische omstandigheden tijdens de eerste meter bodempassage.

Tabel 3.1. Gemiddelde concentratie voor nitraat en ijzer voor vier infiltratieplassen en alle vier peilbuizen (bron: Timmer et al., 2021).

	NO_3 (mg/L)		Fe ($\mu\text{g/L}$)	
	oppervlakter water	peilbuis	oppervlakter water	peilbuis
pand 37	8.2	8.2	10	1
pand 38	7.3	7	10	1
pand 25	6.7	6.1	7	2
pand 40-2	4.9	0.5	10	254

3.2 Slib eigenschappen

Tabel 3.2 geeft een overzicht van de belangrijkste fysische en chemische eigenschappen van de slibmonsters uit spaarbekken De Lange Vlieter (DLV) en de infiltratiepanden van het waterwingebied Berkheide.

De belangrijkste resultaten van de slibanalyse zijn:

1. Het slib uit DLV is zeer fijn van aard. De mediane korrelgrootte ligt tussen de 6 en 8 μm , het kleigehalte (< 8 μm) is groter dan 50% en het siltgehalte (8-63 μm) ligt tussen de 40 en 50%. Het slib in de infiltratiepanden van Berkheide bestaat voor het grootste deel uit zand. Mogelijk is dit grote verschil in korrelgrootteverdeling tussen DLV en Berkheide het gevolg van de bemonsteringsmethode. In geval van DLV is het opgezogen slib bemonsterd terwijl bij Berkheide het om de bovenste 10-15 cm uit een steekboring gaat waarbij een deel van de oorspronkelijke waterbodem ook is bemonsterd.
2. Het slib uit DLV heeft een opvallend laag gehalte aan organisch materiaal, ongeveer 2 tot 3%. Dit ligt in dezelfde orde van grote als het slib uit pand 38 van Berkheide. Het organisch materiaalgehalte van pand 40-2 is duidelijk hoger. Dit hoger organisch stofgehalte is waarschijnlijk de reden dat geïnfiltreerde water uit de peilbuizen onder dit pand anoxisch is.
3. Het calciumcarbonaatgehalte van het slib in Berkheide is hoger dan in DLV. Het duinzand in Berkheide is van nature kalkhoudend maar de zeer hoge calciumcarbonaatgehaltes tot 43 % ds. zijn naar verwachting het gevolg van biogeen gevormd kalk in de infiltratiepanden (bijv. door primaire producenten zoals diatomeeën)
4. Niet-pyriet reactief ijzer is een maat voor het gehalte aan ijzerhydroxides in een bodemmonster. Dit gehalte is in DLV veen hoger dan in Berkheide. Hierbij moet wel worden opgemerkt dat de analysemethode in beide gebieden van elkaar verschillen. Voor DLV is het berekend uit XRF data volgens de methode zoals beschreven in Griffioen et al. (2012). Voor Berkheide is het ijzerhydroxide gehalte direct bepaald door een oxalaat extractie op de slibmonsters uit te voeren. Dit laatste is een nauwkeuriger en gevoeliger methode. Het is niet waarschijnlijk dat het verschil in gehalte het gevolg is van de analysemethode. De oorzaak van het hoge ijzerhydroxidegehalte in de slibmonster in DLV is niet verder onderzocht. Mogelijk speelt hier de ijzerdosering van het inlaatwater van DLV een rol.

Tabel 3.2. Overzicht fysische en chemische eigenschappen van slibmonsters De Lange Vlieter en Berkheide.

Parameter	Uitleg / Analyse	Eenheid	DLV			Berkheide		
			LMC-80228_SLIB	LMC-80229_SLIB	LMC-80230_SLIB	40-2 W02	38 W01	38 W002
diepte		m	sliblaag	sliblaag	sliblaag	0-15	0-15	0-10
<i>Korrelgrootteverdeling</i>								
%Clay	< 8 μm	%	51.1	52.5	58.5	6.85	0.75	1.22
%Silt	8-63 μm	%	46.2	45.3	41.5	27.4	0.65	1.26
%Sand	63-2000 μm	%	2.78	2.23	0.03	65.8	98.6	97.5
Median	X50/D50 μm		7.74	7.46	6.09	127	245	250
BOM	organisch materiaal	% ds.	1.82	2.9	1.98	15.6	1	2.4
CaCO3	calcium carbonaat	% ds.	2.32	4.5	2.64	43	5.4	17.4
Fe_Reac	niet-pyriet reactief ijzer	ppm	39200	44300	40600	711	222	420
CEC	kationuitwisselingscapaciteit	meq/kg ds.	145	129	142	290	20.2	45.1
pyriet S	pyriet als S	% ds.	500	600	500	4600	1400	1900

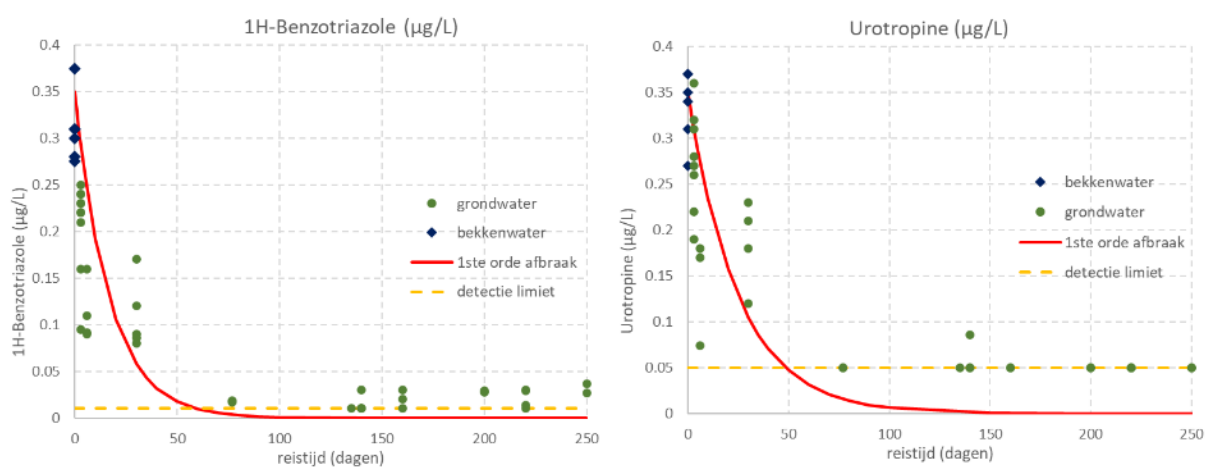
3.3 Organische microverontreinigingen

De watermonsters uit het GOBAM onderzoek in Berkheide zijn geanalyseerd op 164 stoffen. Dit is een stuk meer dan de 8 benzotriazolen en 4 HILIC stoffen die in de meetraai Galgenberg zijn geanalyseerd. Voor de vergelijking van de OMV afbraak tussen het duininfiltratiesysteem en de oeverinfiltratiesysteem kijken we alleen naar de stoffen die in beide onderzoeken zijn geanalyseerd. Het gaat dan om de volgende vijf stoffen:

- 1H-Benzotriazool, 4-Methyl-1H-benzotriazool, 5-Methyl-1H-benzotriazool
- Metformine, Urotropine

Na 1.5 jaar verblijftijd in het spaarbekken De Lange Vlieter ligt de gemiddelde 1H-benzotriazool en urotropine concentratie op ongeveer 0.32 µg/L (Figuur 3.2). Tijdens infiltratie nam deze concentratie vervolgens relatief snel af. Binnen 50 dagen reistijd lag de concentratie van beide stoffen op het niveau van de detectielimiet. De halfwaardetijd ($T_{1/2}$) zoals weergegeven in Tabel 3.3 voor de stoffen in de meetraai Galgenberg is afgeleid door het fitten van een 1-ste orde afbraak door de punten in Figuur 3.2. Verdunning speelt in het bodempassagetraject tot circa 50 dagen reistijd nauwelijks een rol. Bij de meetpunten met een reistijd groter dan ongeveer 100 dagen kan hier wel sprake van zijn maar dit heeft weinig invloed op de eerste-orde fit (zie Van der Grift en Timmers, 2020). Naast deze $T_{1/2}$ geeft Tabel 3.3 ook de tijd vanaf infiltratie waarop de gemeten concentratie op het niveau van de detectielimiet liggen ($t_{\text{depletion}}$).

Voor het duininfiltratiesysteem Berkheide is er niet sprake van een meetraai maar slechts één meetpunt onder de pandbodem. De $T_{1/2}$ is hier berekend uitgaande van de reistijd van het water tot het peilbuisfilter en de gemeten concentratie in het infiltratiepand en de peilbuis onder het infiltratiepand (Tabel 3.4).



Figuur 3.2. Concentraties benzotriazool en urotropine langs meetraai Galgenberg en een 'gefite' eerste-orde afbraak. Voor concentraties onder de detectielimiet is de helft van de detectielimiet geplot, deze waarden zijn niet gecorrigeerd voor verdunning met grondwater.

Bij vergelijking van de $T_{1/2}$ tussen de infiltratiesystemen valt op dat voor de meest stoffen de afbraak onder (sub)oxische bodemcondities in Berkheide sneller verloopt dan in Galgenberg. Een uitzondering hierop is urotropine dat in de meetraai Galgenberg een $T_{1/2}$ heeft van ruim 17 dagen terwijl er onder pand 38 geen afbraak wordt gemeten. Het is verder opvallend van bij drie van de vijf OMV in pan 38 de $T_{1/2}$ korter is dan één dag. Als we de $T_{1/2}$ tussen de (sub)oxische pandbodem (iP38) en de anoxische pandbodem (iP40-2) met elkaar vergelijken is duidelijk te zien dat de $T_{1/2}$ onder anoxische condities groter is dan onder oxische condities.

Tabel 3.3. Halfwaardetijden benzotriazolen en HILIC stoffen in meetraai Galgenberg, C_0 is concentratie in bekken, C_t is concentratie op $t_{\text{depletion}}$, $t_{\text{depletion}}$ is reistijd waarop stof uit het water is verdwenen.

Parameter	meetraai	Redox level	$t_{\text{depletion}}$ [d] for C_t	C_0 µg/L	C_t µg/L	$\Delta C/\Delta t$ µg/d	$T_{1/2}$ d
1H-benzotriazole	Galgenberg	(sub)oxic	75	0.38	0.01	0.005	12.0
2-Methyl-1H-Benzotriazole	Galgenberg	(sub)oxic	140	0.02	0.02	0.000	99999
4-methyl-1H-benzotriazole	Galgenberg	(sub)oxic	140	0.14	0.00	0.002	22.8
5-methyl-1H-benzotriazole	Galgenberg	(sub)oxic	80	0.09	0.00	0.001	14.5
2-Aminobenzothiazole	Galgenberg	(sub)oxic	140	0.02	0.02	0.000	99999
2-Hydroxybenzothiazole	Galgenberg	(sub)oxic	140	0.02	0.02	0.000	99999
5,6-Dimethyl-1H-Benzotriazole	Galgenberg	(sub)oxic	140	0.01	0.01	0.000	99999
5-Cl-1H-Benzotriazole	Galgenberg	(sub)oxic	140	0.01	0.01	0.000	99999
Melamine	Galgenberg	(sub)oxic	30	1.56	0.10	0.019	7.5
Metformine	Galgenberg	(sub)oxic	10	0.47	0.05	0.006	3.1
Guanylurea	Galgenberg	(sub)oxic	30	0.26	0.01	0.003	6.9
Urotropine	Galgenberg	(sub)oxic	75	0.37	0.02	0.005	17.4

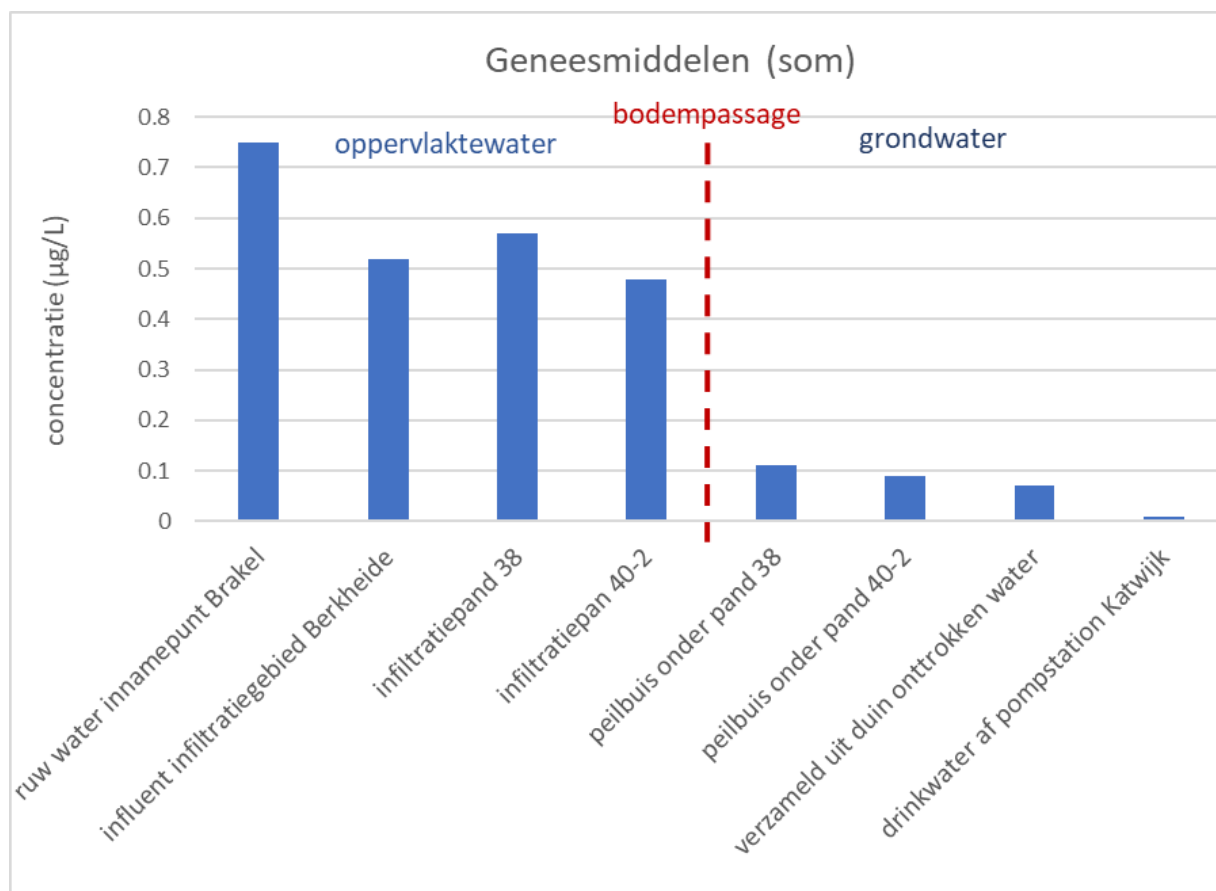
Tabel 3.4. Halfwaardetijden benzotriazolen en HILIC stoffen in pan 38 en 40-2 in waterwingebied Berkheide, C_0 is concentratie in het infiltratie pan, C_t is concentratie op in de peilbuis onder het infiltratie pan, t_{travel} is reistijd door de bodem vanaf infiltratie tot de peilbuis.

Parameter	meetraai	Redox level	t_{travel} [d] for C_t	C_0 µg/L	C_t µg/L	$\Delta C/\Delta t$ µg/d	$T_{1/2}$ d
1H-benzotriazole	iP.38	(sub)oxic	0.67	0.7	0.14	4.000	0.3
1H-benzotriazole	iP40-2	anoxic	4.58	0.43	0.48	-0.104	99999
4_methylbenzotriazol	iP.38	(sub)oxic	0.67	0.39	0.32	0.219	2.3
4_methylbenzotriazol	iP40-2	anoxic	4.58	0.23	0.19	0.211	16.6
5-methyl-1H-benzotriazole	iP.38	(sub)oxic	0.67	0.16	0.04	3.000	0.3
5-methyl-1H-benzotriazole	iP40-2	anoxic	4.58	0.16	0.11	0.455	8.4
Metformine	iP.38	(sub)oxic	0.67	0.23	0.001	233.000	0.1
Metformine	iP40-2	anoxic	4.58	0.33	0.002	166	0.6
Urotropine	iP.38	(sub)oxic	0.67	0.81	0.81	0.000	99999
Urotropine	iP40-2	anoxic	4.58	0.47	0.41	0.146	23.2

In Heel is voor een aantal stoffen een duidelijk verschil te zien tussen de afbraaksnelheid van de stof in het spaar-bekken (met een gemiddelde verblijftijd van het water van ongeveer 1.5 jaar) en de afbraaksnelheid tijdens bodempassage: de stoffen die in het spaarbekken boven de detectielimiet worden gemeten verdwenen relatief snel uit het geïnfilterde water. Eenzelfde patroon is ook te zien voor Berkheide. Figuur 3.3 geeft als voorbeeld de somconcentratie van geneesmiddelen die bij inname van het Maaswater boven de rapportagegrens zijn aangetroffen (waarin metformine een belangrijke component is) en in de opeenvolgende zuiveringsstappen van Dunea.

Wanneer we de gemiddelde concentraties bij de opeenvolgende zuiveringstappen op een rijtje zetten is duidelijk te zien dat de grootste sprong in afname van de concentratie optreedt tussen de infiltratiepanden en de peilbuizen onder de infiltratiepanden 38 en 40-2. De korte bodempassage was verantwoordelijk voor 58% van de totale afname in somconcentratie geneesmiddelen vanaf het ingenomen ruwwater tot het drinkwater. De voorzuivering zonder AOP en het verblijf als oppervlaktewater in de plassen had een beperkter effect op de concentratie (31% afname). Ook was het verschil in concentratie tussen de peilbuizen onder de infiltratiepanden en verzameld uit duin onttrokken water relatief gering (slechts 3% afname) en de nazuivering is nog verantwoordelijk voor 8% van de afname. Deze cijfers duiden erop dat de eerste meter bodempassage een grote invloed heeft op de verwijdering van OMVs, het blijkt de belangrijkste zuiveringsstap te zijn in de drinkwaterbereiding. Deze waarnemingen zijn in overeenstemming met de waarneming langs de meetraai Galgenberg, waarbij de sterkste afname in concentratie te zien in de WPs direct onder de waterbodem. Bij Heel is alleen geen vergelijking gemaakt met de OMV verwijdering tijdens zuiveringsstappen voor inname van het water in De Lange Vlieter en tijdens de nazuivering, zoals wel gedaan door Hartog 2014.

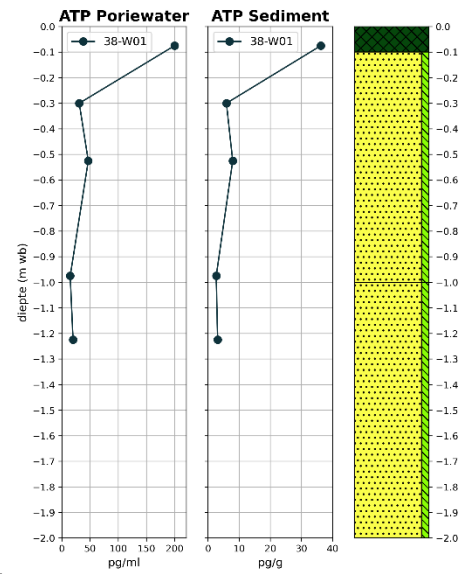
Uit het GOBAM onderzoek is ook gebleken dat de korte bodempassage een bijdrage levert aan de verwijdering van stoffen die bij de AOP moeilijk worden verwijderd. Metformine springt wat betreft concentraties het meest in het oog. Dit geneesmiddel wordt tijdens AOP nauwelijks verwijderd (gemiddeld bijna 20%) terwijl het wel goed verwijderd tijdens de korte bodempassage.



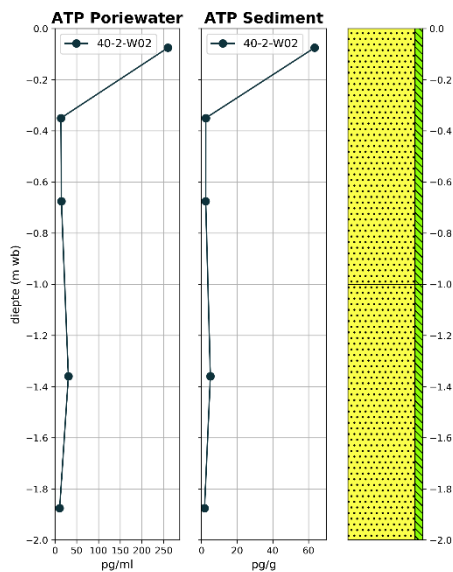
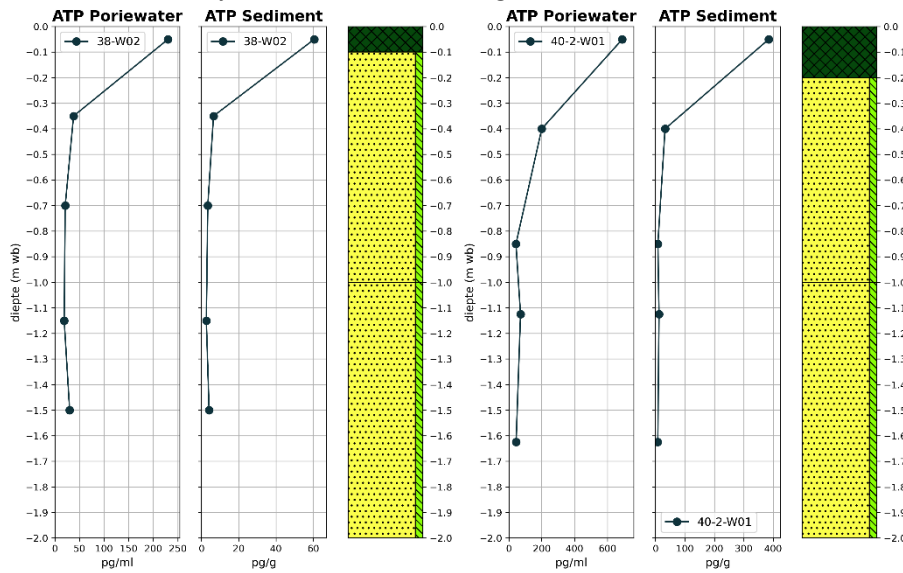
Figuur 3.3. Somconcentraties van de geneesmiddelen tijdens het zuiveringsproces van Dunea bij de nulmeting (zonder AOP voorbehandeld water) en effectmeting (met AOP voorbehandeld water), gemiddelde waarde + standaarddeviatie (bron: Timmer et al., 2021).

De gevonden resultaten voor komen goed overeen met eerder uitgevoerd BTO onderzoek naar de afbraak van geneesmiddelen tijdens bodempassage (De la Loma en Hartog, 2016). In dit onderzoek zijn voor vijf bodempassagesystemen de concentraties aan geneesmiddelen in de infiltratieplassen vergeleken met de concentratie in het ruwwater. Dit onderzoek laat ook relatief hoge verwijderingspercentages zijn van geneesmiddelen tijdens bodempassage (tot 58%). Een opvallende bevinding die overeenkomt met de resultaten uit het huidige BO onderzoek is dat bij het bodempassagesysteem met een directe overgang naar anoxische condities de verwijdering van geneesmiddelen het kleinst is. De la Loma en Hartog (2016) concluderen dat de aanwezigheid van verschillende redoxzones, met name (sub)oxische zones, tijdens bodempassage de afbraakpotentie voor geneesmiddelen verhoogd.

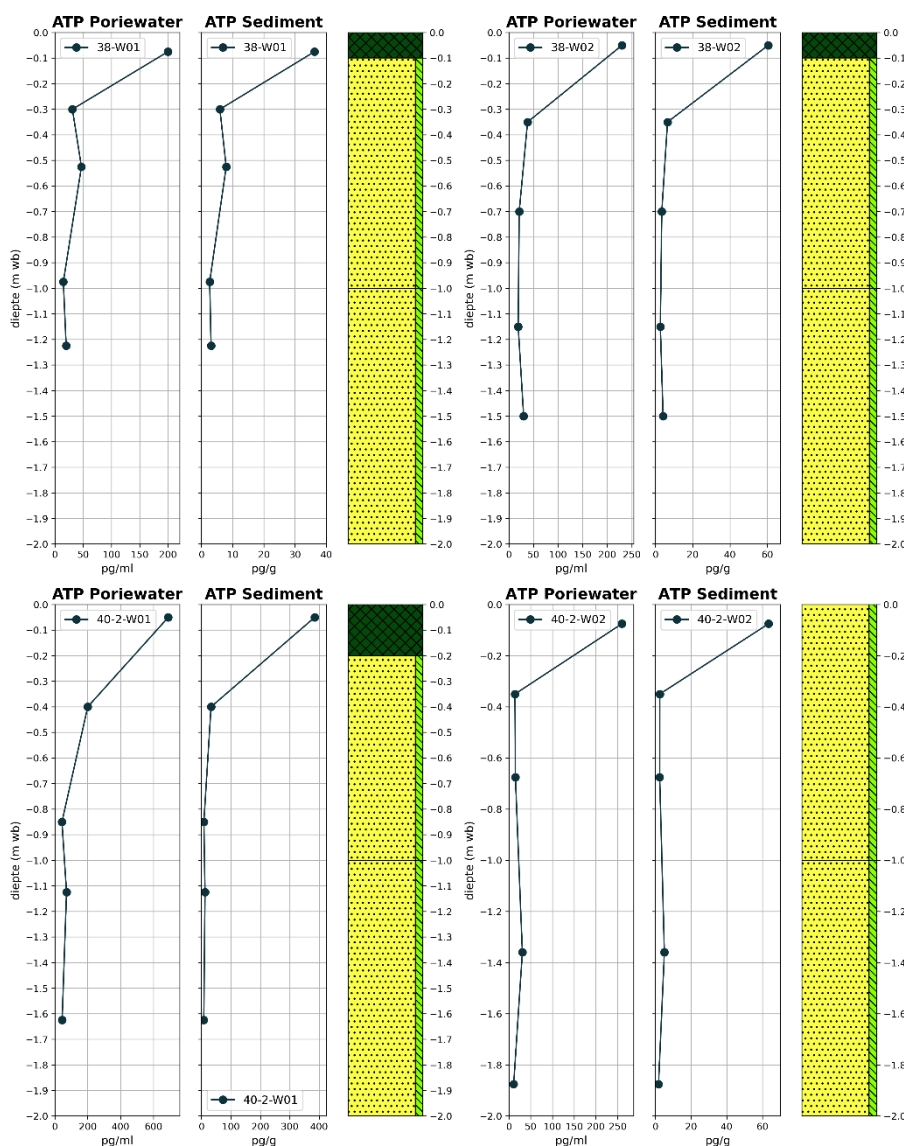
3.4 Biologische activiteit (ATP)



ATP concentraties zijn een maat voor de biologische activiteit.



Figuur 3.4 geeft de ATP concentratie in het poriewater en het sediment in de boorkernen uit Berkheide. Het verschil tussen de toplaag en de diepere monsters is duidelijk: de toplaag heeft duidelijk de hoogste biologische activiteit. Verder is te zien de toplaag van de diepere bodemboringen (W02) van pand 38 een hoger ATP gehalte heeft dan de oeverboringen (W01), wat te maken kan hebben met de dikkere laag slib in het midden van het pand. Voor pand 40-2 geldt het omgekeerde. Het monster op ca. 40-cm heeft hier ook hogere ATP gehalten dan de monsters van een vergelijkbare diepte uit de overige boringen.



Figuur 3.4. ATP concentratie in poriewater onder infiltratiepanden, van links naar rechts pandbodemboringen W01 en W02 van pand 40-2 (boven) en pand 38 (onder).

De ATP concentraties van het sediment bij Heel zijn alleen bepaald in de eerste 10 cm van het sediment van twee locaties (monsters S1 t/m S6, tabel). Hierbij variëren de ATP concentraties van het sediment tussen 10300 en 18600 pg/gr droog sediment). De ATP concentraties voor deze metingen zijn dus vele malen hoger dan de ATP metingen in het sediment bij Berkheide in de eerste 10 cm (Figuur 2.5: 36-385 pg/gr). Waarom dat de ATP concentraties zo veel hoger zijn is niet te relateren aan verschil in organische stofgehalte (1.8-2.9 voor DLV t.o.v. 1-15.6 voor Berkheide) of het nitraatgehalte in het bekken en de panden (6 mg/L voor DLV t.o.v. 5-8.3 mg/L voor Berkheide).

Tabel 3.5. ATP gehalten sedimentmonsters Heel

	ATP op droog materiaal
	pg/gr
S1 Zand	18600
S2 Zand	17600
S3 Zand	18000
S4 Zand	14300
S5 Zand	10300
S6 Zand	15000

3.5 Microbiële populaties

DLV

De microbiële populatie analyse van DLV was uitgevoerd op het bekken plaswater (B), bodemmonsters van het sediment van 6 locaties (loc 1 t/m loc 6) en het gebaggerd slib (S). Dit was gedaan om te kijken of er verschillen te zien waren tussen het slib en het onderliggende sediment, en of er bacteriegroepen te koppelen waren aan bepaalde redox condities en afbraak van OMPs. Er waren geen analyse van het sediment dieper uit het bodemprofiel uitgevoerd.

Uit analyse van de meetraai bij DLV kwam naar voren dat een aantal groepen van micro-organismen een positieve correlatie met het redox potentiaal vertonen, voornamelijk groepen die uiteraard ook in het oppervlaktewater dominant zijn, maar ook groepen in het sediment van het bekken, zoals een aantal *Planctomyceten* (Figuur 3.1). Uit de analyse van de microbiële populaties van het verwijderde slibmonster uit DLV (maart 2019) en het sediment na slibverwijdering (maart 2020), kwam ook naar voren dat het verwijderde slib minder groepen van micro-organismen bevatten die een positieve correlatie met het redoxpotentiaal vertonen dan het sediment. Vooral *Planctomyceten* (o.a. *Pirellulaceae* en *Gemmataceae*), *Nitrosopumilaceae*, *Nitrosomadaceae*, en *Nitrospiraceae* kwamen meer voor in het sediment dan in het slib en de meeste van deze groepen vertoonden ook een positieve correlatie met het redoxpotentiaal en de nitraatconcentraties (Figuur 2.4). *Pirellulaceae*, *Nitrosomadaceae* en *Nitrosopumilaceae* bevatten anaerobe ammonium-oxideerders en *Nitrospiraceae* bevatten aerobe ammonium en nitriet oxideerders (Prosser et al., 2014; Daims et al., 2018; Kellogg et al., 2016) wat de sterke correlatie met nitraatconcentraties verklaart. Het was verder in dit project duidelijk geworden dat oxiderende processen stimulerend leken te werken voor de afbraak van OMVs bij DLV, wat deze observaties ondersteunde. Deze resultaten gaven samen aan dat het slib minder relevant is voor de afbraak van OMVs dan het sediment.

	B	Sediment						S
D_1__Omnitrophicaeota; D_4__ bacterium-	0	0.2	0.2	0.2	0.2	0.1	0.2	0.4
D_1__Chloroflexi; D_4__ bacterium-	6.3	3	3	3.2	2.6	2.6	2.7	4.8
D_1__Thaumarchaeota; D_4__ Nitrosopumilaceae-	0	5	5.3	5.4	3.9	4	4.7	1.1
D_1__Actinobacteria; D_4__ Sporichthyaceae-	0	0.1	0.1	0.1	0.1	0	0.1	0
D_1__Patescibacteria; D_4__ bacterium-	0	0.2	0.2	0.3	0.1	0.1	0.1	0.6
D_1__Proteobacteria; D_4__ Gallionellaceae-	0	0.1	0.2	0.2	0.1	0.1	0.2	0.1
D_1__Nanoarchaeaeota; D_4__ euryarchaeote-	0	0.1	0.1	0.1	0	0	0	0.3
D_1__Planctomycetes; D_4__ Pirellulaceae-	0	6	6.8	6.8	9	8.3	7.9	3.7
D_1__Proteobacteria; D_4__ bacterium-	0.2	2.2	2.2	2.3	3	2.9	2.8	1.1
D_1__Proteobacteria; D_4__ Burkholderiaceae-	8.2	2.3	2.1	1.9	1.4	1.4	1.3	1.2
D_1__Nitrospirae; D_4__ bacterium-	0	0.5	0.6	0.5	0.3	0.2	0.3	1.4
D_1__Omnitrophicaeota; D_4__Omnitrophaceae-	0	0.2	0.2	0.1	0.2	0.2	0.3	0.2
D_1__Proteobacteria; D_4__ Nitrosomonadaceae-	0	3	3.2	3.3	3.8	4	3.7	1.2
D_1__Planctomycetes; D_4__ bacterium-	0	2.6	2.6	2.4	4.4	4.5	4.5	1.8
D_1__Nanoarchaeaeota; D_4__ archaeon-	0	0.1	0.1	0.1	0	0	0	0
D_1__Acidobacteria; D_4__ bacterium-	0	2.7	2.9	3	3.1	3.4	3.3	3.7
D_1__Nitrospirae; D_4__ Nitrospiraceae-	0	2.7	2.6	3	2	2.6	2.4	0.5
D_1__Planctomycetes; D_4__ Gemmataceae-	0	2.7	2.8	2.8	4.9	4.7	4.7	1
D_1__Rokubacteria; D_4__ Methylomirabilaceae-	0	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.2	0.9
D_1__Thaumarchaeota; D_4__ archaeon-	0	0	0	0	0	0	0	0.1
D_1__Planctomycetes; D_4__ Brocadiaceae-	0	0.5	0.6	0.6	0.2	0.3	0.3	0.3
D_1__Proteobacteria; D_4__ TRA3-20-	0	1.4	1.5	1.5	1.6	1.6	1.8	0.6
D_1__Bacteroidetes; D_4__ Flavobacteriaceae-	7.9	2.9	1.5	1.7	0.3	0.3	0.3	0.1
D_1__Proteobacteria; D_4__ Rhodocyclaceae-	0	0.6	0.4	0.4	0.3	0.3	0.3	0.1
D_1__Chloroflexi; D_4__ Anaerolineaceae-	0	0.9	1.2	1	0.8	0.7	0.8	5
Bekken_103 -		loc1_s1 -	loc1_s2 -	loc1_s3 -	loc1_s4 -	loc1_s5 -	loc1_s6 -	SLUB

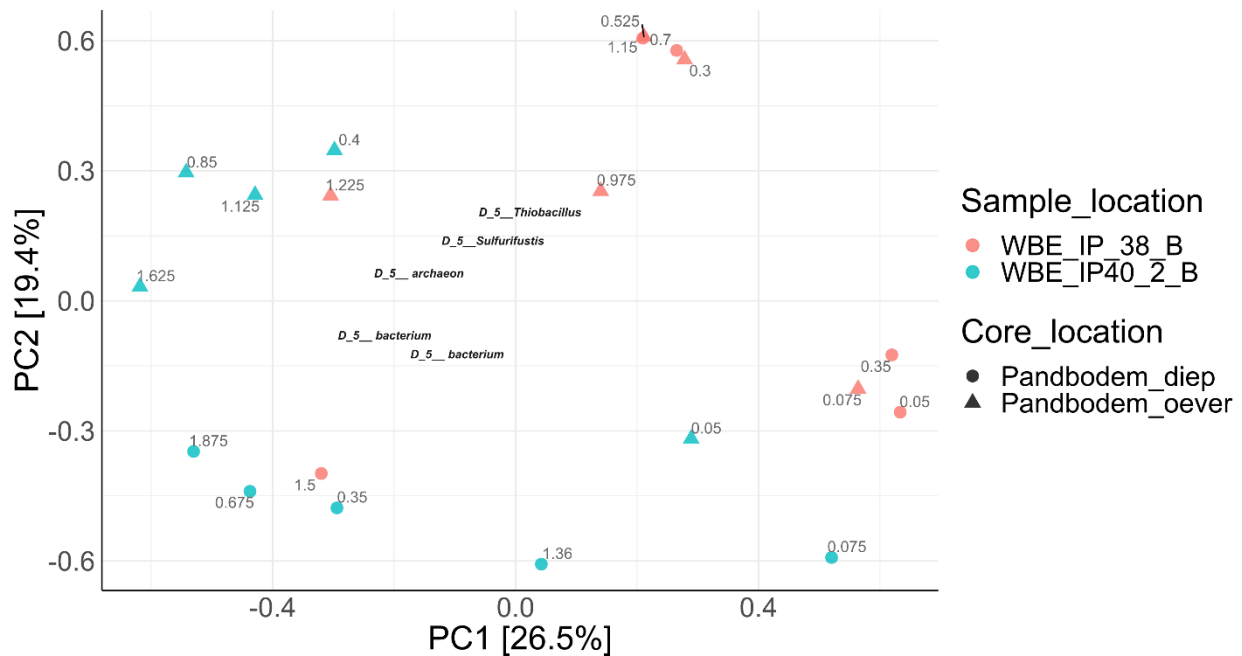
Figuur 3.1. Heatmap van de gemiddelde relatieve abundanties (%) van 25 meest abundante families van micro-organismen in alle locaties: het bekken 103 (B), de pompputten (PPs), de bodemmonsters (locatie 1 s1-s3 en locatie 2 s4-s6), het gebaggerd slib (S) en de waarnemingsputten (WPs).

Berkheide

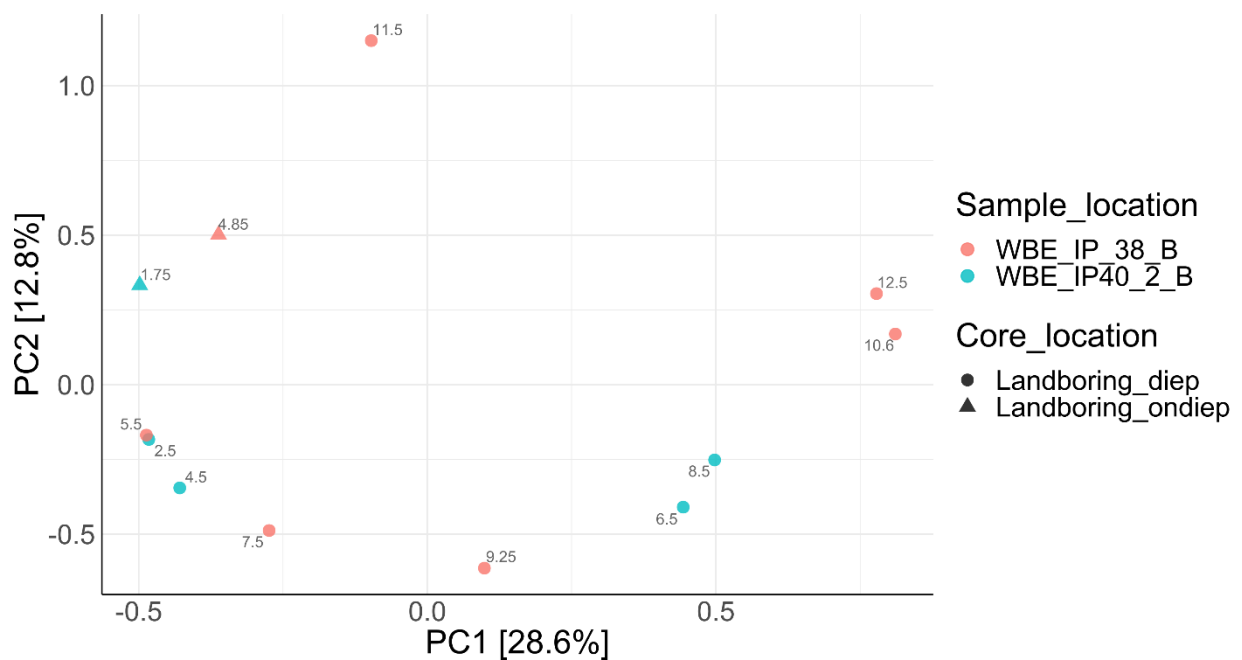
Microbiële populatie analyse was uitgevoerd op de bodemmonsters van de oeverboringen (W01 en W02) en landboringen (B01 en B02) van pand 38 en 40-2 van Berkheide. Dit was gedaan om te zien of en hoe de microbiële populatie samenhangt met veranderingen in de waterkwaliteit en de afbraak van organische microverontreinigingen. Dit is het eerste project bij KWR waar we de microbiële populatie van de ondergrond hebben bepaald in betrekking tot duininfiltratie. Naast de inzichten die we in dit project proberen te krijgen, helpt deze informatie om een database op te bouwen van de ondergrond om zo in de toekomst meer begrip te krijgen van de relatie tussen biogeochemische processen en afbraak van OMVs. Naast deze bodemmonsters zijn er ook monsters genomen van het water uit de panden en uit de peilbuizen bij de panden tijdens het vorig GOBAM onderzoek. Deze monsters zijn in deze synthese ook meegenomen waar nodig geacht.

Zoals beschreven in paragraaf 2.3 was de T½ voor de verwijdering van de vergeleken OMVs onder anoxische condities en lange verblijftijd (pand 40-2) veel langer dan onder (sub)oxische condities met korte verblijftijd (pand 38). Het was uit de microbiële populatie analyse van het geïnfilterde water (de peilbuizen) ook duidelijk geworden dat de peilbuis van pand 40-2 minder gelijkenis vertoonde met de andere peilbuizen (van pand 37, 38 en 25) (Timmers et al., 2021). Daarnaast was bekend geworden dat infiltratiepand 40-2 een veel langere verblijftijd en een hogere biologische activiteit (ATP en celaantallen), biologisch productiepotentiaal (BP₇ en BPC₁₄), en meer organisch materiaal vertoonde, met mogelijk meer primaire productie dan infiltratiepand 38 (Timmers et al., 2021). In de

bodemanalyse is te zien dat de bodem van pand 38 en 40-2 in de eerste meter van de steekboringen (WO1 en WO2) sterk verschillen in microbiële samenstelling, en dat alleen de diepere bodemlagen van pand 38 (>1.2 m) enige gelijkenis vertonen met de andere bodemlagen van pand 40 onder 15 cm (Figuur 3.2). Nog diepere bodemlagen (de landboringen) verschillen steeds minder tussen pand 38 en 40 (Figuur 3.3).



Figuur 3.2. Principal Coordinates Analysis (PCoA) plot gebaseerd op Bray Curtis distance van de pandboring bodemmonsters van Berkheide waarop microbiële analyse gedaan is met NGS. De assen verklaren een aandeel van de variatie in de data, in dit geval 26.5% voor de X-as en 19.4 % voor de Y-as. Elk punt staat voor een microbiële gemeenschap van een monster. De verschillende kleuren geven de meetlocaties weer en de vormen zijn monster van de oeverpandbodem (WO1) of diepe pandbodem (WO2.), zie legenda. De labels bij de punten geven de diepte van het monster weer (in m).

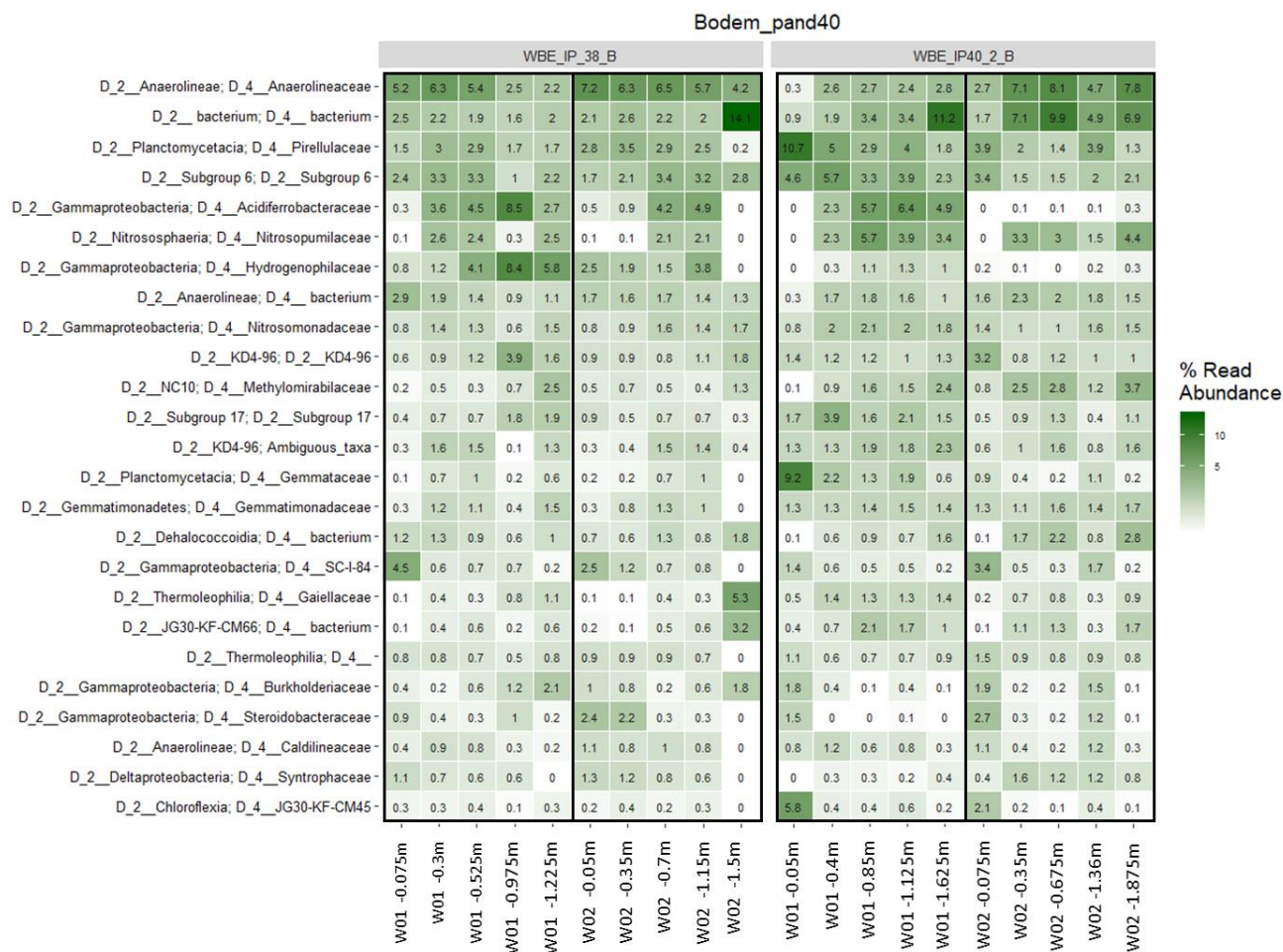


Figuur 3.3. Principal Coordinates Analysis (PCoA) plot gebaseerd op Bray Curtis distance van de landboring bodemmonsters van Berkheide waarop microbiële analyse gedaan is met NGS. De assen verklaren een aandeel van de variatie in de data, in dit geval 28.6% voor de X-as en 12.8 % voor de Y-as. Elk punt staat voor een microbiële gemeenschap van een monster. De verschillende kleuren geven de meetlocaties weer en

de vormen zijn monster van de ondiepe landboring (B01) of diepe landboring (B02), zie legenda. De labels bij de punten geven de diepte van het monster weer (jn m).

In de bodemanalyse is te zien dat voor pand 38 en 40-2 de eerste 15 cm van de steekboringen (W01 en W02) sterk verschilt in microbiële samenstelling met de lagen eronder (Figuur 3.2), zoals ook bij DLV het geval was tussen het slib en onderliggend sediment. Daarnaast is te zien dat de oeverboring (W01) van pand 38 niet veel verschilt van de diepe pandboring (W02) in de eerste meter, terwijl in pand 40-2 deze boringen na de eerste 15 cm zeer anders zijn. De toplaag van de twee panden is ook verschillend van elkaar, wat zich voornamelijk uit verschillen in de relatieve abundantie van de groepen *Pirellulaceae*, *Gemmataceae* en *Chloroflexia* JG30-KF-CM45. Deze komen in hoge relatieve abundantie voor in de eerste 15 cm van pand 40-2 aan de oever (W01), en minder in de diepe bodem (W02) en nemen in W01 drastisch af in relatieve abundantie met de diepte, terwijl deze juist in pand 38 in relatieve abundantie toenemen onder de eerste 10 cm en redelijk stabiel blijven in relatieve abundantie in de eerste meter (Figuur 3.4). De uiteindelijke relatieve hoeveelheid in beide panden is soortgelijk bij hogere diepte, maar dat wil niet zeggen dat de absolute abundantie overeenkomt. Wat dit in ieder geval laat zien, is dat er een sterk afnemende trend heerst in pand 40-2 met de diepte, vooral aan de oever (W01) terwijl deze groepen redelijk constant voorkomen in de eerste meter van de oever en diepe bodem (W01 en W02) van pand 38. Dit komt overeen met ATP metingen, waarbij het ATP gehalte vooral aan de oever van pand 40-2 veel hoger is dan in het midden van hetzelfde pand en beide boringen van pand 38.

In de eerste meter zijn weinig verschillen te zien tussen W01 en W02 van pand 38, terwijl de microbiële populaties van W01 en W02 van pand 40-2 sterk verschillen, net als de toplaag (Figuur 3.2 en 3.4). Deze verschillen worden voornamelijk veroorzaakt door de genera *Sulfurifustis* (de familie *Acidiferrobacteriaceae*) en *Thiobacillus* (de familie *Hydrogenophilaceae*). Deze groepen komen namelijk beide veel voor onder de eerste 10 cm van W01 en W02 van pand 38, terwijl deze alleen veel voorkomen onder de eerste 10 cm van W01 van pand 40. Deze genera bevatten beide aerobe zwavel-oxiderende bacteriën, waarvan *Thiobacillus* naast zuurstof ook nitraat hiervoor kan gebruiken. Daarnaast kan *Thiobacillus* ijzer(II) oxideren. Dit toont de meer (sub)oxische condities in pand 38 aan de oever en diepe bodem, wat voor pand 40 dus alleen lijkt te gelden voor de oeverboring (W01). Dit kan duiden op meer anoxische condities van de diepe boring in het midden van het pand 40-2.



Figuur 3.4. Heatmap van de gemiddelde relatieve abundanties (%) van 25 meest abundante families van micro-organismen in pandbodemplaatjes van pand 38 (WBE_IP_38_B) en pand 40 (WBE_IP40_2_B), waarbij de oever (W01) en diepe boring (W02) diepte van het monster (in m) is weergegeven op de x-as.

4 Discussie: invloed van sliblaag op verwijdering OMVs tijdens bodempassage

4.1 Invloed sliblaag op redoxconditie en bacteriepopulatie

Bij DLV lag het verschil in de toplaag (slib) en het sediment daaronder voornamelijk in de microbiële groepen die een correlatie met het redox potentiaal en nitraat hadden. In het bodemonderzoek bij Berkheide is het redoxpotentiaal en nitraat niet bepaald en kunnen we die vergelijking niet maken. Wel zien we dat de groepen die meer aanwezig waren in het sediment dan in het slib bij DLV (o.a. *Planctomyceten* (o.a. *Pirellulaceae* en *Gemmataceae*), vooral in pand 38 redelijk stabiel toenamen in de eerste meter, terwijl deze in pand 40-2 na de eerste 10 cm drastisch afnamen in relatieve abundantie aan de oever (W01). Daarnaast was de aanwezigheid van zwavel-oxiderende bacteriën lager in W02 van pand 40-2. Dit kan te maken hebben met de meer (sub)oxische condities in pand 38 in de eerste meter, terwijl in pand 40 er snel anoxische condities heersten met de diepte in W02. Dit kan komen door het hoger aandeel organisch materiaal en hogere biologische productie potentie dat in het pand met langere verblijftijd aanwezig was (Timmers et al., 2021), wat tijdens afbraak zorgt voor anoxische condities. Voor DLV zijn geen diepteprofielen gemaakt, en weten we dus niet hoe deze groepen van micro-organismen in die bodem met de diepte voorkomen. Wel weten we dat het water pas op een grotere afstand tot de waterbodem anoxisch wordt (vanaf circa 50 dagen reistijd). Het zou kunnen zijn dat de sterke veranderingen en verschillen van de microbiële populatie in de bodem van pand 40-2 een direct effect heeft op de verwijderingscapaciteit van OMVs.

4.2 Invloed bacteriepopulatie op verwijdering OMV's

Het onderzoek aan DLV liet zien dat afbraak van de gemeten OMVs het beste plaatsvindt onder hoge redox / (sub)oxische condities. Recent onderzoek van KWR heeft aangetoond dat afbraak van verschillende OMVs plaatsvindt in oxische snelle zandfilters (di Marcantonio et al. 2020), en dat pyrazool, metformine en guanylureum tot wel 90% afgebroken worden in kolomstudies van snelle zandfilters (van Bel et al., 2020). In dit laatste onderzoek zijn kandidaten-bacteriën geïdentificeerd die mogelijk betrokken zijn bij de afbraak van metformine en pyrazool, o.a. *Planctomyceten* zoals *Gemmataceae* en *Pirellulaceae*. In deze synthese is aangetoond dat deze groepen verschillen in abundantie in de kernen van de verschillende panden, waarbij een drastisch relatieve afname te zien was in de eerste 10-15 cm van de oeverboring (W01) van pand 40. Omdat de meeste reactiviteit en OMP verwijdering plaats lijkt te vinden in de eerste meter bodempassage onder (sub)oxische condities, kan dit verschil van cruciaal belang zijn.

4.3 Synthese

Uit dit onderzoek blijkt dat er bij oeverinfiltratie en duininfiltratie snelle verwijdering plaatsvindt van OMV's tijdens de eerste meter bodempassage. Bij Heel heeft het slib een relatief laag organische stofgehalte ($\pm 2\%$) waardoor de redoxcondities in het sediment onder de sliblaag minder snel anoxisch worden dan bij infiltratie door een sliblaag met (veel) hogere percentages organisch stof (Tabel 4.1). Het slib in infiltratiepand 38 in waterwingebied Berkheide heeft ook een relatief laag organisch stofgehalte.

Suboxische omstandigheden tijdens de eerste meter bodempassage lijken ideaal te zijn voor afbraak van OMV's. Dit resulteerde namelijk in een hoge relatieve abundantie van bacteriën die geassocieerd zijn met hogere redoxcondities en die mogelijk in staat zijn OMV's af te breken. Sommige van deze bacteriegroepen zijn aangetroffen de overgangzone in Heel en onder het oxische pand bij Berkheide (met snelle OMV afbraak).

De sliblaag in infiltratiepand 40-2 heeft een hoger organisch stofgehalte. Dit resulteert in een snelle overgang naar anoxische condities in het sediment onder de sliblaag, wat mogelijk minder gunstig is voor afbraak van de meeste OMV's. De bacteriën die in Heel een correlatie vertoonden met nitraat en een positief redox potentiaal zijn hier alleen aangetroffen in de toplaag. Op welke diepte het water in het sediment anoxisch werd weten we niet precies, maar de mediaan $T_{1/2}$ van de vijf gemeten OMV's is hier dan ook groter dan onder infiltratiepand 38 (Tabel 4.1).

Naar verwachting heeft de samenstelling van de sliblaag dus een grote invloed op de biogeochemische condities in het sediment onder de sliblaag. Het is mogelijk dat de verblijftijd van het water in de suboxische zone een belangrijke invloed heeft op de afbraak van OMV's tijdens bodempassage.

Dit onderzoek is een casus, gebaseerd op een zeer beperkt aantal locaties. Dit maakt het lastig om algemene conclusies te trekken over de relatie tussen sliblaag en OMV-afbraak tijdens de eerste meter bodempassage. Aan de andere kant is in dit onderzoek niet alleen OMV's gemeten, maar ook biochemische parameters die helpen verklaren waarom afbraak sneller of langzamer verloopt. We zien daarom voldoende aanknopingspunten voor vervolgonderzoek, waarbij de focus kan liggen op het identificeren van de relatie tussen slibcondities en verwijdering van OMV's.

Tabel 4.1. Samenvatting van de hydrogeochemische en microbiologische eigenschappen van de infiltratiepanden en de verwijdering voor een selectie van OMP's

Parameter	Heel	Berkheide IP 38	Berkheide IP 40-2
Kleifractie (< 8 µm) sliblaag (%)	51-59	0.75-1.2	7
Organisch materiaal sliblaag (%)	2-3	1-2.4	15.6
Redox conditie onder sliblaag	Suboxisch	Suboxisch	Anoxisch
Maximale ATP sediment (pg/gr)*	18600	60	385
Mediaan $T_{1/2}$ OMV **	14.5 dag	0.3 dag	16.6 dag

(*) bovenste 10 tot 15 cm

(**) De mediaan $T_{1/2}$ is berekend op basis van de $T_{1/2}$ van de volgende vijf OMP's: 1H-Benzotriazool, 4-Methyl-1H-benzotriazool, 5-Methyl-1H-benzotriazool, Metformine, Urotropine

Op basis van de resultaten van dit onderzoek reist de vraag of de volledige afwezigheid van een sliblaag niet (nog) gunstiger is voor OMV afbraak in de overgangszone tussen oppervlaktewater en grondwater. Naar verwachting lijkt dit immers tot een nog grotere suboxische zone waarin afbraak plaats kan vinden. Vanuit de waterzuivering is bekend van bij langzame zandfiltratie de 'sliblaag' belangrijk is in het zuiveringsproces. Bij langzame zandfiltratie wordt de 'sliblaag' de Schmutzdecke ('vieze laag' in het Duits) genoemd. Deze bovenste laag van het langzame zandfilter, die bestaat uit organisch materiaal inclusief micro-organismen zoals bacteriën, schimmels en protozoa. Na verwijdering van deze laag heeft het zandfilter weer een langer tijd nodig om optimaal te functioneren. Mogelijk heeft de sliblaag tijdens bodempassage een vergelijkbare invloed: te dik en/of redoxreactief betekend geen infiltratie en ongunstige redoxomstandigheden tijdens bodempassage, afwezig betekend te weinig micro-organismen in de overgangszone die OMV kunnen afbreken.

4.4 Consequenties voor pandbeheer

Uit voorgaande analyse blijkt dat de dikte en samenstelling van de sliblaag van grote invloed kan zijn op de mate waarin OMV's worden afgebroken tijdens bodempassage. Deze dikte en samenstelling worden mede beïnvloed door de wijze waarop waterbedrijven het infiltratiepand beheren. Zo kan het organisch stof gehalte direct worden beïnvloed door de voorzuivering. De productie van organisch stof in het pand zelf kan actief beheerd worden middels de vegetatie, de aanvoer van nutriënten (voorzuivering) en ook via de retentietijden van het water in het pand. Bedrijven hebben ook invloed op de dikte van de sliblaag door de onderhoudsfrequentie en de mate waarin slib wordt verwijderd bij schoonmaken. Zo kunnen we uit de trendmatige toename van het stijghoogteverschil tussen het bekkenpeil en grondwaterstanden in Heel afleiden dat de bodemweerstand na reinigen afgelopen decennia is toegenomen. Vermoedelijk komt dit doordat het fijne slib deels in de bodem infiltreert en voor verstopping zorgt (diep bed filtratie).

Voor De Lange Vlieter betekent dit ook dat de defosfatering waarschijnlijk positief is voor afbraak van OMV's tijdens bodempassage. De defosfatering leidt immers tot minder vorming van organisch materiaal in het spaarbekken en naar verwachting dus tot diepere suboxische condities in het sediment onder de sliblaag. Vanuit het oogpunt van OMV afbraak is het denkbaar dat de oever dan niet meer schoongemaakt hoeft te worden. Daarnaast blijkt dat verwijderen van de sliblaag weinig tot geen hydraulisch effect meer te hebben.

Op Berkheide lijkt het slib met name op te hopen bovenop de pandbodem. De bodemmonsters in het oorspronkelijke sediment onder de waterbodem, bevatten een fractie fijne deeltjes (klei en zilt, < 63 µm) van ongeveer 1%. Bij Heel was deze fractie met een gemiddelde van 4% duidelijk hoger dan in Berkheide. Ook is uit ervaring bekend dat de grondwaterstanden in de infiltratiegebieden van Dunea na reiniging sterk stijgen door de toename van de infiltratiecapaciteit.

De geringere mate van diep bed filtratie op Berkeheide heeft mogelijk te maken met de kleinere korrel diameter op Berkheide, waardoor slibdeeltjes minder makkelijk en minder ver door het sediment verplaatsen. De verstopping manifesteert zich hier meer als cake op de bodem. Ook de reinigingsmethode op beide locaties is anders. Op Heel wordt het slib weggezogen en op Berkheide wordt ook de toplaag afgeschrapt. Mogelijk wordt met deze laatste methode meer sediment verwijderd.

Kortom: bedrijven kunnen via de voorzuivering, pandbeheer en slibverwijdering invloed uitoefenen op de samenstelling en dikte van de sliblaag en daardoor op de redoxcondities onder de waterbodem. Dit laatste heeft vermoedelijk invloed ook op de afbraak van OMV's tijdens bodempassage. Hierdoor kan een reductie van de belasting van OMV's op de bovengrondse zuivering worden gerealiseerd.

De kennis hierover is echter beperkt. We adviseren de waterbedrijven daarom om vergelijkbare metingen uit te voeren op meerdere locaties, en zo meer inzicht te krijgen in de relatie tussen pandbeheer, redoxcondities, microbiële populatie en afbraak van OMV's. Als we erin slagen de bepalende bacteriën verder te identificeren, kunnen deze mogelijk gericht worden ingezet door optimale condities voor de groei van deze soorten te creëren.

5 Conclusies en aanbevelingen

5.1 Conclusies

In zowel het oeverinfiltratiesysteem De Lange Vlieter als het duininfiltratiesysteem Berkeheide is er afbraak van benzotriazolonen en HILIC stoffen waargenomen tijdens bodempassage. De verwijdering van vijf OMV's gaat in het duininfiltratiesysteem sneller dan in het oeverinfiltratiesysteem. Wanneer de twee infiltratiepanden in Berkeheide met elkaar worden vergeleken, blijkt dat de verwijdering in de (sub)oxische bodem sneller gaat dan in de anoxische bodem.

Het is opvallend dat de afbraak van de gemeten OMVs tijdens infiltratie in de bodem (veel) sneller verloopt dan in het oppervlaktewater van het spaarbekken/infiltratiepand zelf. Uit de metingen in zowel het waterwingebied De Lange Vlieter als Berkeheide blijkt dat de eerste meter bodempassage een grote bijdrage levert aan de verwijdering van OMVs in het gehele zuiveringsproces. De meetgegevens van het GOBAM project laten zien dat van de cocktail aan geneesmiddelen die in het ingenomen ruwwater bij Bergambacht boven de rapportagegrens is aangetroffen en tijdens de drinkwaterbereiding wordt verwijderd, 58% van de verwijdering voor rekening komt van de korte bodempassage. Ter vergelijking 31% wordt verwijderd tijdens de voorzuivering, 3% tijdens de bodempassage vanaf ca 1.5 m tot de onttrekking en 8% tijdens de nazuivering van het onttrokken duinwater. De resultaten sluiten aan bij eerder uitgevoerd BTO onderzoek naar verwijdering van geneesmiddelen in vijf bodempassagesystemen. Hieruit bleek dat de aanwezigheid van verschillende redoxzones, met name (sub)oxische zones, gunstig is voor verwijdering van geneesmiddelen.

Deze gegevens tonen samen aan dat omzetting van OMVs goed verloopt onder (sub)oxidatieve processen. Dat neemt niet weg dat ook onder gereduceerde condities afbraak van andere OMVs plaats kan vinden. Daarnaast zijn reductieve processen waarschijnlijk belangrijk voor de mineralisatie van geoxideerde verbindingen en transformatieproducten van OMVs die ontstaan in de locaties met een hoger redox potentiaal.

5.2 Aanbevelingen

Dit onderzoek heeft geleid tot de hypothese dat de dikte en samenstelling van de sliblaag (met name een hoog organisch stofgehalte) vermoedelijk een negatieve invloed heeft op de afbraakpotentie van OMV's tijdens bodempassage (zie Figuur 5.1). Waterbedrijven hebben zelf invloed op de vorming en eigenschappen van deze sliblaag via bijvoorbeeld de voorzuivering, pandbeheer, en slibverwijdering. Hiermee zou dus in de toekomst mogelijk gericht gestuurd kunnen gaan worden op de afbraakcapaciteit van OMV tijdens bodempassage.

Voor het testen van deze hypothese is het echter noodzakelijk dat er meer gericht onderzoek uitgevoerd wordt aan bodemkernen onder infiltratiepanden met verschillende redoxcondities en dat de relatie met de eigenschappen van de bovenliggende sliblaag bepaald wordt. Hiermee kunnen de handvatten ontwikkeld worden voor sliblaagbeheer waarbij de redoxcondities, organische stofgehalte en andere stuurbare parameters beïnvloed kunnen worden om zo de verwijdering van OMV's tijdens bodempassage verder verbeteren.

Een aanbeveling na dit onderzoek is daarom om meer vergelijkingsonderzoek uit te voeren aan infiltratiepanden en de bodem om zo meer kennis te vergaren over de eerste meter onder het pand, en welke biogeochemische verschillen van belang zijn voor de verwijderingscapaciteit van OMVs. Belangrijke parameters hiervoor zijn 1) Geochemische condities (redox, nitraat, pH, organisch materiaal, etc), 2) Verwijdering van een gestandaardiseerde selectie van OMVs, 3) Biologische activiteit (ATP, BPP) en 4) Microbiële populaties (NGS).



Figuur 5.1: Conceptueel model van de hypothese dat de sliblaag van infiltratiepanden invloed heeft op de redox condities en de microbiële samenstelling en activiteit wat de afbraak van OMV beïnvloed.

Referenties

De la Loma, B. en Hartog, N. (2016) The contribution of soil passage in removing pharmaceutical compounds from infiltrated surface water; Towards potential adaption to increasing concentrations due to climate change and ageing. KWR BTO rapport 2016.074.

Griffioen, J., Klein, J. and van Gaans, P.F.M. (2012) Reaction capacity characterization of shallow sedimentary deposits in geologically different regions of the Netherlands. *Journal of Contaminant Hydrology* 127(1), 30-46.

Laeven, M.P. and Stuyfzand, P.J. (1997) Voorspelling grondstofkwaliteit waterproductiebedrijf Heel, KIWA, Nieuwegein.

Heijnen L., P.J. Stuyfzand, L. Zandvliet, C. Houtman, T. van der Velden-Slootweg, A. Knezev, T. van den Bogert, J. El Majjaoui, T. Knol, P. Bacon, K. Lekkerkerker-Teunissen, P. van der Wielen, R. Hofman-Caris (2018) Microbial profiling en metagenomics analyse voor detailkarakterisering microbiologische processen bij duinfiltratie. KWR-rapport KWR 2018.049.

Timmers, P., Zandvliet, L., Knezev, A., Reus, A., Vughs, D., El Majjaoui, J., Stuyfzand, P., van der Velden-Slootweg, T., Knol, T. (2021) Effecten van geavanceerde oxidatie op de waterkwaliteitsveranderingen en microbiologie bij duinfiltratie. KWR 2020.066

Van der Grift, B. en P. Timmers (2020) Verwijdering OMVs tijdens bodempassage in het infiltratiebekken De Lange Vlieter. KWR BTO(s) rapport 2020.206

Van der Grift, B., Timmers, P en Stuyfzand, P.J. (2021) Geochemisch meetprogramma en voorspellingsberekening OMV afbraak tijdens bodempassage Berkheide. KWR rapport in voorbereiding.