

## SAMENVATTING

### Inleiding en probleemstelling

De metaalmijnbouw heeft geleid tot de inbreng van zware metalen in een groot aantal riviersystemen. De daaropvolgende verspreiding van zware metalen wordt voor een belangrijk deel bepaald door de binding die de metalen aangaan met slib- en bodemdeeltjes en door de transportbanen van deze deeltjes in het alluviale deel van riviersysteem. Nadat de slibgebonden metalen worden opgenomen in een van de hydrologische subsystemen, zoals de waterbodem en de oevergronden, blijven ze onderhevig aan processen van geomorfologische, chemische en hydrologische aard. Na sedimentatie kunnen slib en de daaraangebonden metalen worden geremobiliseerd door fysische aantasting van de rivierbodem of -oevers. Chemische processen kunnen ertoe bijdragen dat de bindingsvorm van de metalen verandert of dat ze oplossen en toetreden tot aangrenzende wateren (grond-, bodem- of oppervlaktewater) of worden opgenomen door planten. Geremobiliseerde metalen kunnen, gebonden aan slib of in opgeloste vorm, opnieuw worden getransporteerd en weer neerslaan of worden afgezet in zowel de rivierbedding als in de overstromingsvlakte. Tussen al deze processen treden complexe interacties op die bovendien van aard kunnen veranderen in de loop der tijd. Een beter begrip van de dynamische omstandigheden (het transport, de sedimentatie en remobilisatie) waaraan zware metalen in een riviersysteem worden blootgesteld, is van groot belang voor de voorspelling van het gedrag en de gevaren van zware metalen in een fluviatiele omgeving.

### Het onderzoeksgebied en de doelstellingen

Het onderzoek werd uitgevoerd in het stroomgebied van de grensoverschrijdende rivier de Geul. De Geul ontspringt in het noordwesten van België en stroomt door het mergelland van Zuid Limburg naar de Maas. In de omgeving van de Belgische plaatsen Plombières en Kelmis werd vanaf de late Middeleeuwen tot het midden van deze eeuw lood- en zinkerts gewonnen en verwerkt. Door de lozing van proceswater en de opslag van mijnafval op de oevers van de Geul werden grote hoeveelheden zware metalen ingebracht in het riviersysteem. De daaropvolgende verspreiding heeft geleid tot verhoogde concentraties van zware metalen in het rivierslib en de oevergronden. De aanwezigheid van zware metalen kan een bedreiging vormen voor mens en dier in deze omgeving. Door het natuurlijk meanderende karakter van de Geul worden oude sterk verontreinigde sedimenten voortdurend opnieuw op transport gesteld en uiteindelijk afgevoerd naar de Maas. De Geul draagt daarmee bij aan de verontreiniging van deze, als bron van drinkwater functionerende, op een na grootste rivier in Nederland. Het doel van deze studie omvatte een kwantitatief onderzoek van de verspreiding van zware metalen in het stroomgebied van de Geul. Een groot aantal van de relevant geachte processen werd bestudeerd, waarbij de nadruk lag op een samenhangende, geografische, benadering. Uiteindelijk werd een poging gedaan om met het verworven inzicht en

het verzamelde gegevensbestand een balans van sediment en zware metalen op te stellen. Binnen dit algemeen geformuleerde doel werden een aantal meer specifieke doelstellingen onderscheiden:

- (1) het lokaliseren van de bronnen van zware metalen;
- (2) het analyseren van de hydrologische factoren die van invloed zijn op het transport van slib en zware metalen en het kwantificeren van de vracht van deze stoffen;
- (3) het in kaart brengen van overstromingsgebieden, en de verontreiniging van de oevergronden;
- (4) het bepalen van de sedimentatiesnelheid van verontreinigd slib en de bergingscapaciteit van de overstromingsvlakte;
- (5) het analyseren van de bindingsvormen van zware metalen in slib en bodem;
- (6) het schatten van de consequenties van de aanwezigheid van zware metalen voor het milieu

#### Het transport van zware metalen

De relaties tussen het debiet, de concentraties van zwevend slib en de daaraan gebonden zware metalen, werden in detail onderzocht voor een hoogwaterperiode in maart 1988. Uit de onderzoeksresultaten bleek dat het debiet slechts een beperkte invloed heeft op het transport van zwevend slib en de metalen lood, zink en cadmium. Tijdens afvoerpieken is de hoeveelheid getransporteerd slib in hoge mate afhankelijk van het debiet, maar in de perioden tussen afvoerpieken wordt de kwaliteit en kwantiteit van het getransporteerde slib veeleer bepaald door de sterk variërende activiteit van de verschillende bovenstroomse bronnen van sediment. Door waarnemingen van meerdere hoogwaterperioden te combineren, was het desondanks mogelijk significante regressiecurves op te stellen voor de relatie tussen het debiet enerzijds en slibconcentraties en metaalgehalten anderzijds. Deze curves, met correlatiecoëfficiënten in het bereik van 0.63 tot 0.92, werden gebruikt om het jaarlijks transport van slib en zware metalen te berekenen. Uit de resultaten blijkt dat een groot deel (25-30%) van het jaarlijks transport van lood (13.9 ton), zink (70.5 ton) en cadmium (0.4 ton) plaatsvindt tijdens de enkele dagen met een debiet groter dan  $10 \text{ m}^3/\text{s}$ . In die perioden is 77-98% van de vracht van metalen gebonden aan het zwevend slib.

#### De kwaliteit van in de overstromingsvlakte afgezet rivierslib

Het door de Geul getransporteerde slib is een belangrijk medium voor de verspreiding van zware metalen door het riviersysteem. Middels het slib vindt uitwisseling van materiaal plaats tussen de rivierbedding, waarin het transport plaatsvindt, en de overstromingsvlakte, waar het slib tijdelijk wordt opgeslagen totdat het door oeveraantasting opnieuw op transport wordt gesteld. Direct na een aantal hoogwaterperioden werden in de overstromingsvlakte monsters genomen van recentelijk afgezet rivierslib. Uit de analyseresultaten bleek dat er geen systematische relatie bestaat tussen het gehalte aan zware metalen in

deze monsters en hun korrelgrootteverdeling. Zowel in de fractie < 63 µm als in de fractie > 63 µm werden sterk verhoogde concentraties van lood, zink en cadmium aangetroffen. Voor lood en zink wordt in 80% van de monster de B-norm overschreden en in 25% van de gevallen de C-norm. Voor cadmium wordt de C-norm slechts in één monster overschreden, maar in bijna 40% van de monsters liggen de concentraties boven de B-norm. Met betrekking tot de chemische bindingsvorm van deze metalen kon eveneens geen verschil tussen de korrelgroottefracties worden aangetoond.

In stroomafwaartse richting neemt de totale hoeveelheid aan zware metalen in de slibmonsters af volgens een exponentieel verband met de afstand tot de bron. Over hetzelfde traject verandert de verdeling van zware metalen over de verschillende chemische bindingsvormen. Door menging met relatief schoon slib en door de interacties tussen het slib en het water neemt het aandeel van de metalen, dat in een relatief mobiele vorm (uitwisselbaar, carbonaatgebonden en gemakkelijk reduceerbaar) aanwezig is, snel toe. De mate waarin dit proces optreedt is afhankelijk van de chemische reactiviteit van de zware metalen en is het grootst voor het relatief mobiele element cadmium. Door de verandering van het chemisch voorkomen van de zware metalen in stroomafwaartse richting, wordt het positieve effect van exponentieel afnemende totaalgehalten deels tenietgedaan.

De invloed van veranderend landgebruik op de verspreiding van zware metalen

Het landgebruik heeft in Nederland sinds de jaren '50 een aantal veranderingen ondergaan. De omvang van het stedelijk gebied en het wegennet is sterk toegenomen en in de landbouw heeft een schaalvergroting en modernisatie plaatsgevonden. Deze veranderingen hebben geleid tot een afname van de capaciteit van het landschap om water te laten infiltreren en te bufferen. In het Zuidlimburgse heuvelland heeft dit geleid tot een toename van de hoeveelheid oppervlakkig afstromend water, waardoor meer wateroverlast kon optreden in stedelijke gebieden en de bodemerosie op de akkers toenam.

Uit een statistische analyse van neerslag- en afvoerreeksen bleek dat de afvoer van de Geul eveneens wordt beïnvloed door deze veranderingen in het functioneren van de hydrologische kringloop. Na een regenbui wordt in de huidige situatie voor de Geul een hogere piekafvoer geregistreerd dan in de jaren vijftig. De frequentie van hoge afvoeren is om die reden toegenomen, evenals de omvang van het gebied dat regelmatig wordt overstroomd.

Tijdens hoge afvoeren verlegt de Geul haar bedding door aantasting van de oevers. Door een reeks luchtfoto's uit de periode 1949-1985 met elkaar te vergelijken, kon worden vastgesteld dat de snelheid waarmee dit gebeurt is toegenomen en plaatselijk kan oplopen tot 5 meter per jaar. De versnelde aantasting leidt ertoe dat oude, sterk verontreinigde sedimenten - daterend uit de periode van actieve mijnbouw - opnieuw door het riviersysteem gaan circuleren. Vergelijking van de kwaliteit van recentelijk afgezet slib met die van de toplaag van de bodem in de overstromingsvlakte, toonde aan dat het recente slib in hogere mate is belast met zware metalen en daarmee een bedreiging

vormt voor de kwaliteit van de oevergronden.

#### Het karteren van overstromingsgebieden met behulp van een Digitaal Terrein Model

De processen die bijdragen tot de ontwikkeling van een overstromingsvlakte hebben een relatie met de hoogteligging van het terrein. De snelheid waarmee slib wordt afgezet op de oevergronden is afhankelijk van de overstromingsfrequentie, en de kwaliteit van het gedeponeerde slib is afhankelijk van de stroomsnelheid tijdens sedimentatie. Om die reden kan bij het bestuderen van deze processen naast geomorfologische kaarten en bodemkaarten, gebruik worden gemaakt van een Digitaal Terrein Model (DTM) .

Uitgaande van de informatie op de hoogtekaarten van de Topografische Dienst werden verschillende interpolatiemethoden gebruikt voor het construeren van een DTM van een deel van het Geuldal. Het fitten van mathematical splines gaf de meest betrouwbare resultaten. Door een aantal sterk vereenvoudigde verhanglijnen te construeren was het mogelijk overstromingsgebieden te begrenzen in het DTM. Verificatie van de ligging van een aantal overstromingsgebieden vond plaats met behulp van foto's die waren genomen tijdens een hoogwaterperiode in oktober 1986. De overstromingskaart bleek een sterk verklarend karakter te hebben met betrekking tot de concentraties van zware metalen in de bodem: 44-65 procent van de variantie in de concentraties van zware metalen in de bodem kon worden verklaard door de monsters te groeperen volgens de kaarteenheden op de overstromingskaart.

#### Kwantitatieve methoden voor het karteren van bodemverontreiniging

De hierboven besproken methode voor het karteren van overstromingsgebieden en bodemverontreiniging geeft geen informatie over de ruimtelijke variabiliteit van het gekarteerde fenomeen binnen een kaarteenheden. Er zijn een aantal interpolatiemethoden beschikbaar waarmee wel een uitspraak over de ruimtelijke variabiliteit kan worden gedaan. In de hoofdstukken 11 en 12 worden een aantal van deze methoden met elkaar vergeleken en wordt - op twee ruimtelijke schaalniveaus - hun geschiktheid voor het karteren van de bodemverontreiniging in het Geuldal geëvalueerd.

In een geomorfologische eenheid werden op een regelmatig netwerk en op onderlinge afstanden van 5 meter een groot aantal bodemonsters genomen. Drie subsets van monsters werden gebruikt om de zinkconcentraties te schatten op de lokaties in een andere subset, waar het werkelijke zinkgehalte van de bodem bekend was. Uit een statistische analyse van de interpolatiefouten bleek dat geostatistische methoden, die gebruik maken van informatie omtrent de ruimtelijke correlatiestructuur van de onderzochte variabele, beter in staat zijn een betrouwbaar ruimtelijk model van zinkconcentraties in de bodem te construeren dan andere veel gebruikte methoden. Op dit schaalniveau kon het ruimtelijk model bovendien belangrijk worden verbeterd door tijdens de interpolatie gebruik te maken van extra informatie met betrek-

king tot de hoogteligging van een niet bemonsterde lokatie. Daartoe werd gebruik gemaakt van de geostatistische interpolatiemethode die bekend staat als co-kriging.

De merites van co-kriging werden verder getest op het schaalniveau van de overstromingsvlakte. Opnieuw werden een groot aantal monsters genomen, waarvan eveneens een deel opzij werd gezet voor het valideren van de ruimtelijke modellen van zinkgehalten in de bodem. De aanvullende hoogtepunten werden gecorrigeerd voor het effect van het lengteprofiel, hetgeen de hoogte t.o.v. de rivierbedding opleverde (Relative Elevation: RE). Drie methoden werden met elkaar vergeleken: (1) lineaire regressie van RE versus het zinkgehalte, (2) kriging (zonder aanvullende hoogte-informatie) en (3) co-kriging (met aanvullende hoogte-informatie). De resultaten van dit onderzoek maakten duidelijk dat co-kriging kleinere schattingsfouten van het zinkgehalte in de bodem op niet bemonsterde lokaties oplevert dan lineaire regressie of kriging. Bovendien levert co-kriging geringere schattingsvarianties dan kriging zonder aanvullende informatie. Op deze wijze werd aangetoond dat informatie met betrekking tot het proces dat de oorzaak is van de verontreiniging, namelijk het bestand van hoogtepunten, kan worden gebruikt om het ruimtelijk patroon van de verontreiniging kwantitatief in kaart te brengen.

#### De depositie en berging van sediment in de overstromingsvlakte

Door de voortdurende aanvoer van slib tijdens overstromingen is de kwaliteit van de oevergronden van de Geul onderhevig aan veranderingen in de tijd. Gezien de hoge concentraties van zware metalen in het recentelijk afgezette slib is het van belang inzicht te verwerven in de snelheid waarmee dit proces plaatsvindt en in de bergingscapaciteit van de overstromingsvlakte. Cesium-137 ( $^{137}\text{Cs}$ ), aanwezig in het milieu door het bovengronds testen van nucleaire wapens tussen 1954 en 1963 werd gebruikt als tracer voor de bepaling van sedimentatiesnelheden. Door het kernreactorongeval te Tsjernobyl in 1986 werd een nieuwe hoeveelheid  $^{137}\text{Cs}$  in het milieu gebracht, waardoor het mogelijk werd dezelfde waarnemingen ook op een korte tijdschaal te doen. Door metingen van het  $^{137}\text{Cs}$ -gehalte van bodemonsters genomen op verschillende diepten beneden maaiveld kon worden vastgesteld dat de sedimentatiesnelheden in het Geuldal variëren tussen 0.4 en 2.7 cm/jaar. De sedimentatiesnelheid in de periode 1986-1988 blijkt bovendien aanmerkelijk hoger te zijn dan die in de periode 1963-1986. In een studiegebied van 58.3 ha dat in detail werd bestudeerd bleek dat de bovenste 40 cm van het bodemprofiel, afgezet gedurende de afgelopen 30-45 jaar, wordt gekenmerkt door hogere concentraties van zware metalen dan het deel van het profiel op grotere diepte. Deze recente afzettingen zijn afkomstig van de erosie van verontreinigde oevers in het bovenstroomse deel van het dal. Met behulp van de interpolatietechniek kriging werden kaarten gemaakt van de bodemverontreiniging op 10, 20, 30 en 40 cm diepte. Verontreinigingskaarten werden gebruikt voor de berekening van de totale hoeveelheid zware metalen die in het studiegebied van 58.3 ha zijn opgeslagen. De berekeningen lieten zien dat in de bovenste 100 cm van dit gebied 88.8 ton lood, 372.6 ton zink en 1 ton cadmium ligt opges-

lagen. Van deze hoeveelheid kan slechts 2-9% worden toegeschreven aan de 'natuurlijke' aanwezigheid van zware metalen.

#### De balans van zware metalen

Gebruikmakend van de gegevens met betrekking tot het transport, de sedimentatie, de berging en de mechanische remobilisatie van met zware metalen belast slib- en bodemmateriaal, werden voor het alluviale deel van het stroomgebied in Nederland balansen opgesteld van sediment en de metalen lood, zink en cadmium. Volgens de berekeningen bevindt zich in de overstromingsvlakte ca.  $47.580 \cdot 10^6$  ton bodemmateriaal, waaraan 7461 ton lood, 19205 ton zink en 84 ton cadmium wordt gebonden. Per jaar wordt er door grensoverschrijdend transport 5325 ton sediment, 7702 kg lood, 57400 kg zink en 171 kg cadmium aangevoerd uit België, terwijl er 30565 ton sediment, 13941 kg lood, 70475 kg zink en 435 kg cadmium wordt afgevoerd naar de Maas. De herverdeling van materiaal in het stroomgebied, door met name sedimentatie en oeveraantasting, leidt tot een netto jaarlijkse afvoer van materiaal uit de overstromingsvlakte van 22925 ton sediment, 5392 kg lood, 11628 kg zink en 3.8 kg cadmium. Van de totale hoeveelheid lood, zink en cadmium die per jaar in het Nederlandse deel van de rivierbedding wordt gebracht, kan 66, 47 en 39 % respectievelijk worden verklaard door grensoverschrijdend transport, 32, 52 en 59 % respectievelijk door oeveraantasting en slechts 1-2 % door bijdragen van zijrivieren, aanvoer via hellingprocessen en aanvoer vanuit de alluviale aquifer.

Indien de vracht van zware metalen door de Geul te Meerssen wordt vergeleken met de vracht van de Maas te Eijsden, dan blijkt dat de Geul een bijdrage levert met een omvang van respectievelijk 9.7, 7.8 en 4.7 % van de vrachten van lood, zink en cadmium door de Maas. Een zelfde berekening m.b.t. de lozing van afvalwater levert de volgende percentages: de afvoer van zware metalen door de Geul naar de Maas heeft een omvang van 19.4, 16.9 en 2.3 % van de totale hoeveelheid in Nederland geregistreeerde lozingen (dus niet alleen op de Maas) van respectievelijk lood, zink en cadmium via afvalwater.

#### De schatting van gezondheidsrisico's

De aanwezigheid van zware metalen in het slib, het water en de bodems van de Geul kan negatieve effecten hebben op de gezondheid van de mensen en dieren die in het Geuldal verblijven. Een eenvoudig model werd gebruikt om een schatting te maken van de risico's die de aanwezigheid van lood en cadmium in de bodem met zich meebrengen. De geschatte hoeveelheid ingenomen metalen werd vergeleken met grenswaarden die door de Wereld Gezondheids Organisatie worden opgegeven, de zgn. A.D.I.-waarden (Acceptabel Daily Intake). Volgens een reële benadering, waarbij wordt aangenomen dat beperkte hoeveelheden verontreinigd materiaal worden geconsumeerd, bleek de A.D.I. voor jonge kinderen te worden overschreden in gebieden waar de bodem loodgehalten bevat boven de B-waarde. Deze gebieden nemen ongeveer 43 % van de oevergronden in beslag en liggen vrijwel alle ten zuiden van Wijlre. De A.D.I. voor loodinnname door volwassenen wordt in

de reële benadering nergens overschreden. De A.D.I. voor cadmiumin-  
name door zowel kinderen als volwassenen wordt bij een reële benader-  
ing eveneens nergens overschreden.