

stowa

**stowa**

Stichting Toegepast Onderzoek Waterbeheer

# Atmosferische depositie van pesticiden, PAK en PCB's in Nederland

Atmosferische depositie van pesticiden, PAK en PCB's in Nederland



2003 01

2003 01

PROVINCIE



RIZA  
RIKZ  
Directie IJsselmeergebied



Ministerie van Volkshuisvesting,  
Ruimtelijke Ordening en Milieubeheer

**stowa**

Stichting Toegepast Onderzoek Waterbeheer

**Atmosferische depositie van pesticiden,  
PAK en PCB's in Nederland**

**2003 01**

Arthur van Schendelstraat 816  
Postbus 8090, 3503 RB Utrecht  
Telefoon: 030 - 232 11 99  
Fax: 030 - 232 17 66  
E-mail: [stowa@stowa.nl](mailto:stowa@stowa.nl)  
<http://www.stowa.nl>

Publicaties en het publicatie-overzicht  
van de STOWA kunt u uitsluitend bestellen bij:

*Hageman Fulfilment*

Postbus 1110

3300 CC Zwijndrecht

Telefoon : 078 - 629 33 32

fax: 078 - 610 42 87

E-mail: [info@hageman.nl](mailto:info@hageman.nl)

o.v.v. ISBN- of Stowa rapportnummer  
en een duidelijk afleveradres.

ISBN 90.5773.204.1

**Colofon:**

Utrecht, 2003

Uitgave:  
STOWA, Utrecht

Auteurs:  
J.H. Duyzer, TNO  
A.W. Vonk, TNO

Foto Omslag:  
B. van der Wal

Druk:  
Kruyt Grafisch Advies Bureau

STOWA rapportnummer 2003-01

ISBN nummer 90.5573.204.1

## Ten Geleide

Regelmatig worden door de waterbeheerders bestrijdingsmiddelen en andere ongewenste stoffen in het water aangetroffen. Vaak rijst dan de vraag: waar komen deze stoffen vandaan?. De afgelopen jaren zijn veel bronnen in kaart gebracht. Een tot dusver onderbelichte bron is de atmosfeer. In het onderliggende rapport wordt het onderzoek beschreven dat is uitgevoerd om het belang van atmosferische depositie vast te stellen.

In het kader van de Interdepartementale Werkgroep Atmosferische Depositie (IWAD) is al sinds de tachtiger jaren onderzoek uitgevoerd naar atmosferische depositie. De eerste jaren werden vrijwel uitsluitend modelberekeningen gebruikt om de depositie in kaart te brengen. De onzekerheid in het resultaat van deze berekeningen was echter groot en de behoefte aan meetgegevens nam toe. Na uitgebreid vooronderzoek werd in 1999 gestart met een groot meetprogramma met als doel de depositie van pesticiden, PAK en PCB's beter vast te stellen. In dit rapport worden de resultaten van dit meetprogramma uitgebreid besproken en worden conclusies getrokken.

Met de resultaten van dit onderzoek lijkt de grote onzekerheid in eerdere schattingen van de atmosferische depositie voor veel stoffen te zijn teruggebracht tot aanvaardbare niveaus. Daarmee vormt het rapport een goede basis voor het ontwikkelen van een evenwichtig beleid gericht op verbetering van de milieukwaliteit.

Voor een beperkt aantal stoffen is voor de verschillende waterschapsgebieden berekend:

- 1) wat de depositie in een beheersgebied is, en
- 2) wat de bijdrage van de emissies uit de verschillende provincies in zo'n gebied is.

Tevens is voor een aantal watertypen vastgesteld welke consequentie de atmosferische depositie voor de waterkwaliteit kan hebben.

Het onderzoek werd gefinancierd uit bijdragen van het Ministerie van Volkshuisvesting, Ruimtelijke Ordening en Milieubeheer (VROM), Ministerie van Verkeer en Waterstaat (V en W) (via het Rijksinstituut voor Kust en Zee (RIKZ), Rijksinstituut voor Integraal Zoetwaterbeheer en Afvalwaterbehandeling (RIZA) en de Directie IJsselmeergebied), de Stichting Toegepast Onderzoek Waterbeheer (STOWA), de provincie Noord-Holland, het Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM) en TNO Doelfinanciering. De leden van de IWAD, onder het voorzitterschap van het ministerie van VROM, hebben voor het project als begeleidingsgroep gefungeerd. De verschillende leden en voorzitters (aanvankelijk Douwe Jonkers, thans Hans Meijer) worden voor hun bijdrage in alle fasen van het onderzoek bedankt. Ton van der Linden (RIVM), Remi Laane (RIKZ) en Rob Faasen (RIZA) worden speciaal bedankt voor uitvoerig commentaar op conceptversies van dit rapport.

De directeur van de STOWA,

Februari 2003

ir J.M.J. Leenen



## Korte samenvatting

De afgelopen tien jaar hebben schattingen laten zien dat de atmosfeer een belangrijke diffuse bron van verontreiniging vormt voor het oppervlaktewater. Het gaat daarbij, onder andere, om verontreiniging met organische verbindingen zoals PAK, PCB's en pesticiden en metalen. In een rapport van de Gezondheidsraad van 1998 werd het belang van dit proces voor pesticiden nogmaals benadrukt. De schattingen van de belasting vanuit de atmosfeer waren gebaseerd op berekeningen met modellen. In deze modellen wordt de verspreiding berekend van stoffen, die in de atmosfeer worden geëmitteerd. De onzekerheid in deze schattingen was echter erg groot, mede door het gebrek aan validatie. Voor pesticiden werd een onzekerheid van een factor vijf tot tien geschat. In 1999 werd in het kader van de Interdepartementale Werkgroep Atmosferische Depositie (IWAD) een onderzoeksproject gestart. Het doel van het onderzoek was vooral het vaststellen van de atmosferische depositie op het Nederlandse grondgebied. Het project is uitgevoerd door TNO-MEP en gefinancierd uit bijdragen van het ministerie van VROM, het ministerie van V en W (via het RIKZ, RIZA en de TNO doelfinanciering), het ministerie van LNV (via de TNO doelfinanciering) en de STOWA. Later in 1999 werd het programma uitgebreid door bijdragen van de Provincie Noord-Holland en Rijkswaterstaat Directie IJsselmeergebied. In 2001 werd een aanvullende bijdrage ontvangen van het RIVM. Vanaf zomer 1999 tot en met december 2001 zijn monsters neerslag en lucht genomen op 18 locaties verspreid over Nederland. De monsters werden onderzocht op het gehalte pesticiden, PAK en PCB's. Aanvullend op de metingen werden modelberekeningen uitgevoerd met behulp van het OPS model van het RIVM en gebaseerd op schattingen van de emissies. De schattingen van de emissies van pesticiden in Nederland werden opgesteld door ALTERRA op basis van gebruikscijfers. De schattingen van emissies van de andere stoffen en van pesticiden in het buitenland werden opgesteld door TNO op basis van gegevens over landgebruik en Nederlandse gegevens over emissies.

De meetgegevens zijn uitgebreid geanalyseerd. Daarbij zijn twee gezichtspunten van belang. Enerzijds vormt atmosferische depositie een chronische belasting van het Nederlandse oppervlaktewater voor een aantal stoffen. Het belang van deze bron (de vracht) kan worden afgezet tegen andere bronnen zoals uitspoeling. Anderzijds kan atmosferische depositie in de omgeving van de bron in bepaalde perioden mogelijk leiden tot hoge concentraties in het oppervlaktewater. Bij gebrek aan normen voor neerslag en lucht voor de meeste stoffen geeft een vergelijking met MTR waarden voor oppervlaktewater dan inzicht. Op basis van het onderzoek zijn de volgende conclusies getrokken:

- Samenhangend met het gebruik in bepaalde perioden en gebieden vertoont de depositie van pesticiden een sterk verloop door het jaar en door het land. De jaarlijkse depositie kan daarnaast, door verschillen in gebruik, ook van jaar tot jaar verschillen tot een factor twee vertonen.
- Niet langer toegelaten stoffen worden in het jaar 2001 nog steeds in neerslag en lucht in Nederland aangetroffen. De bronnen hiervan moeten deels in Nederland worden gezocht. Voor stoffen als *atrazin* en *trifluralin* lijken bronnen in het buitenland een belangrijke bijdrage te leveren aan de belasting. Dit geldt waarschijnlijk ook voor enkele reeds lang verboden, persistente stoffen zoals *endrin* en *o,p.DDE* (een omzettingsproduct van DDT). Voor de meeste andere stoffen is de buitenlandse bijdrage minder belangrijk.
- De concentratie van achttien verschillende pesticiden en vier PAK in neerslag overschrijdt regelmatig het MTR niveau voor oppervlaktewater. De concentratie van tweeëntwintig pesticiden en enkele PAK overschrijden bovendien de drinkwaternorm. De gemiddelde concentratie van Borneff PAK overschrijdt de norm voor drinkwater in het jaar 2000.

- Atmosferische depositie vormt voor sommige pesticiden en PAK een belangrijke belasting voor het binnenlands oppervlaktewater:
  1. De gemeten belasting van het oppervlaktewater (uitgedrukt als jaarvracht) in Nederland door atmosferische depositie met pesticiden is van dezelfde orde van grootte als die door drift of die door laterale uitspoeling.
  2. De gemeten belasting door atmosferische depositie van PAK (jaarvracht) is vrijwel even groot als de andere vormen van belasting.
  3. Voor HCB, PCB's en *pentachloorfenol* is de atmosferische route veel belangrijker dan andere routes.
- Berekeningen voor enkele stoffen met een eenvoudig model van het oppervlaktewater laten zien, dat de jaargemiddelde belasting door atmosferische depositie alleen waarschijnlijk niet leidt tot overschrijding van het MTR in het oppervlaktewater. Atmosferische depositie kan wel bijdragen aan de belasting door andere bronnen waardoor overschrijding eerder op kan treden. Voor sommige pesticiden kan de hoge belasting door atmosferische depositie in bepaalde periodes van het jaar en in specifieke regio waarschijnlijk wel leiden tot overschrijding van het MTR in die periode.
- De modelberekeningen geven voor enkele stoffen aan dat het VR (Verwaarloosbaar Risico) niveau in oppervlaktewater *wel* door atmosferische depositie alleen kan worden overschreden.
- Ook de belasting naar de bodem in Nederland (jaarvracht) is geschat. Door het ontbreken van kennis en betrouwbare gegevens zijn schattingen van de depositie naar bodem echter relatief onzeker. Vergelijking met de belasting door andere bronnen is vaak lastig door het ontbreken van goede gegevens. Voor natuurgebieden is de belasting vanuit de atmosfeer echter vaak de enige bron.
- In het algemeen blijkt het OPS model goed bruikbaar om de depositie van pesticiden te berekenen. Het verschil tussen gemeten en berekende deposities was minder dan een factor twee, voor ruim de helft van de stoffen. Voor de rest van de stoffen werden grotere verschillen gevonden. Deze verschillen worden waarschijnlijk veroorzaakt door onjuistheden in de gebruikte schattingen van de emissie. De verschillen tussen de berekende en gemeten depositie van twee verschillende PAK bedroegen een factor twee tot drie.

Bovenstaande conclusies zijn afgeleid uit het huidige onderzoek. Ondanks de brede aanpak zijn er uiteraard enkele beperkingen die samenhangen met de gekozen opzet:

- Er is gekozen voor een representatief middelenpakket. Een belangrijke groep pesticiden zoals de bis-dithio-carbamaten (*maneb* cs) en enkele belangrijke stoffen zoals *glyfosaat*, *diuron* en *carbendazim*, zijn echter niet, dan wel in beperkte mate, in het onderzoek betrokken.
- De locatie van de meetstations was gericht op het verkrijgen van een landelijk beeld met specifieke aandacht voor verschillen tussen de regio's. De meetlocaties zijn daarom zodanig gesitueerd dat beïnvloeding door locale bronnen minimaal is. In de directe omgeving van bronnen, bijvoorbeeld binnen een straal van een kilometer rond belangrijke bronnen zou de depositie aanzienlijk hoger kunnen zijn en gemakkelijk aanleiding kunnen geven tot overschrijding van MTR niveaus.
- Naast de directe belasting is er ook de indirecte belasting. Dit is de depositie op het land die door afspoeling in het oppervlaktewater terechtkomt. De bovenstaande conclusies zijn gebaseerd op de gemeten depositie exclusief deze indirecte depositie. De grootte van deze indirecte belasting is echter erg onzeker. Eerste schattingen laten zien dat deze route even groot zou kunnen zijn als de directe depositie, waardoor de totale atmosferische belasting nog eens tweemaal zo hoog kan worden.

- Vergelijking met normconcentraties zoals het MTR is alleen mogelijk voor individuele stoffen. Het effect van de depositie door een combinatie van een groot aantal stoffen is niet onderzocht.

#### *Aanbevelingen*

- Monitoren van de atmosferische depositie  
Op basis van de resultaten van de studie wordt een aanzet gegeven voor een strategie gericht op monitoring van de depositie in Nederland. Deze bestaat uit een combinatie van schattingen van de depositie aan de hand van modelberekeningen en een beperkt landelijk meetnet. Aanbevolen wordt het resultaat van de modelberekeningen formeel op te nemen in de Emissieregistratie. Door deze werkwijze kunnen waterkwaliteitsbeheerders en andere belanghebbenden beschikken over consistente schattingen van de depositie in hun (beheers)gebied. Het doel van het meetnet is, onder andere, het vaststellen van de werkelijke belasting met PAK, PCB's en pesticiden, het toetsen van de modellen en het volgen van ontwikkelingen in het vóórkomen van pesticiden in samenhang met veranderingen in het middelenpakket.
- Toelatingsbeleid  
Gezien het vastgestelde belang van atmosferische depositie lijken er argumenten aanwezig om de route via atmosferische depositie in het toelatingsproces van bestrijdingsmiddelen mee te nemen. Er zijn goede mogelijkheden aanwezig de beschikbare kennis om te vormen naar een instrument dat gebruikt kan worden in de toelatingsbeoordeling. In een pilotstudy zouden de mogelijkheden hiervoor kunnen worden onderzocht.





## **Uitgebreide samenvatting**

### **S.1 Inleiding**

Stoffen komen langs verschillende routes in het oppervlaktewater terecht. Directe lozingen, afspoeling en drift zijn daarbij belangrijk. Ook vanuit de atmosfeer kunnen stoffen naar het aardoppervlak worden getransporteerd, gebonden aan neerslag of door directe opname uit de lucht. Recentelijk uitgevoerde modelberekeningen laten zien dat voor veel oppervlaktewateren de belasting via de atmosfeer een belangrijk aandeel vormt van de totale belasting met (persistente) organische verbindingen. Dit geldt vooral voor de pesticiden. Zo vormt de atmosfeer voor de Noordzee de belangrijkste bron van veel pesticiden. Ook voor het zoete oppervlaktewater levert de atmosfeer vaak een belangrijke bijdrage aan de belasting. In 1998 verscheen een advies van de Gezondheidsraad over het belang van de atmosferische verspreiding van pesticiden.

De onzekerheid in de gemaakte schattingen is echter zeer groot. Dit hangt, onder andere, samen met het gebrek aan goede gegevens over de emissie van de verschillende stoffen. Bovendien ontbreken metingen die het mogelijk maken de gemaakte schattingen te valideren.

#### *S.1.1 Het project*

De Interdepartementale Werkgroep Atmosferische Depositie (IWAD) is al enige jaren bezig met het initiëren van onderzoek gericht op het verkleinen van de onzekerheid in schattingen van de depositie van persistente verbindingen. Na een eerste studie, waarin modelberekeningen werden uitgevoerd, werd een lijn uitgezet gericht op het verkleinen van de onzekerheid door middel van metingen. Vervolgens werd een eerste strategie voor een meetprogramma ontwikkeld. Daarna werden in een pilotstudie meetmethoden ontwikkeld, getoetst en op beperkte schaal ingezet. Deze studie gaf aan dat het goed mogelijk is metingen van de depositie uit te voeren. Uiteindelijk werd een enquête uitgevoerd onder alle bij de problematiek van de atmosferische depositie betrokken instanties, zoals waterkwaliteitsbeheerders, Rijkswaterstaat en Ministeries. In de enquête werd de behoefte aan informatie bij de betrokkenen geïnventariseerd. Op basis van de resultaten van die enquête werd een uitgebreid programma opgesteld.

In het voorjaar van 1999 werd gestart met het programma waarvan het doel als volgt was geformuleerd:

*Het bepalen van de belasting van de kustwateren en de Noordzee (met nadruk op het Nederlands Continentaal Plat) en het Nederlands grondgebied (water en bodem) met persistente*

*organische verbindingen (POP) vanuit de atmosfeer en het aangeven van de bronnen van deze belasting. Als resultaat van dit onderzoek wordt zowel op nationale als op regionale schaal overzicht van het belang van atmosferische depositie verkregen. In de toekomst zal een strategie moeten worden ontwikkeld, gericht op het monitoren van ontwikkelingen in de depositie.*

Het programma wordt gefinancierd uit bijdragen van het ministerie van VROM, het ministerie van V en W (via het RIKZ, RIZA en de TNO doelsubsidie), het ministerie van LNV (via de TNO doelsubsidie) en de STOWA. Later in 1999 werd het programma uitgebreid door bijdragen van de Provincie Noord-Holland en Rijkswaterstaat Directie IJsselmeergebied. De financiering van het meetprogramma stopte in het najaar van 2001. Een aanvullende bijdrage van het RIVM maakte het echter mogelijk gedurende het hele jaar 2001 metingen uit te voeren. In totaal zijn daarmee ruim twee en een half meetjaren beschikbaar.

Na de voorbereidingsfase waarin monsternemingsmethoden werden ontwikkeld, geëvalueerd en getest, werd in het najaar van 1999 gestart met monsterneming. Over de resultaten van de voorbereidingsfase werd uitvoerig gerapporteerd. Na het eerste halfjaar en het eerste jaar waarin metingen werden uitgevoerd werden tussenrapportages opgesteld. In 2001 verscheen een uitgebreide rapportage over de metingen in het kalenderjaar 2000.

In het thans voorliggende rapport worden de resultaten van het complete programma gepresenteerd. In deze uitgebreide samenvatting wordt eerst het programma beschreven, vervolgens worden de resultaten gepresenteerd en besproken. Tenslotte worden conclusies getrokken.

### *S.1.2 De processen*

De hier bestudeerde stoffen komen op verschillende manier in de lucht terecht. PAK komen vrij bij verbrandingsprocessen, PCB's verdampen uit, in het verleden gebruikte, transformatoren en condensatoren en pesticiden verdampen tijdens en na de toepassing. In de lucht gekomen worden stoffen getransporteerd door de wind en daarbij verdund. Tijdens het transport door de lucht staan ze aan allerlei processen bloot. De belangrijkste zijn: opname aan in lucht zwevende deeltjes, omzetting door ozon of radicalen, fotolyse, en depositie. Veel van de hier bestudeerde stoffen hebben een lage dampspanning en zullen snel aan in de lucht zwevend stof worden opgenomen. Ze worden dan als deeltjes (fijn stof of aërosol) door de lucht getransporteerd. Atmosferische depositie is het proces waarbij stoffen worden getransporteerd naar het aardoppervlak (zowel land als wateroppervlak) en daar worden opgenomen. Daarbij is natte depositie het proces waarbij stoffen worden opgenomen in neerslag. Droge depositie is het proces waarbij stoffen door turbulentie in contact komen met het aardoppervlak en daar worden opgenomen. Zo kunnen goed oplosbare stoffen gewoon in oppervlaktewater op worden genomen.

Het meten van natte depositie is relatief eenvoudig. De concentratie van een stof in neerslag wordt bepaald. De natte depositie is dan de gemiddelde concentratie vermenigvuldigd met de hoeveelheid neerslag. Het meten van droge depositie is erg lastig. In dit onderzoek wordt volstaan met een meting van de concentratie in lucht. Uit deze concentratie wordt met behulp van de zogenaamde droge depositiesnelheid de depositieflux berekend. Deze depositiesnelheid is afhankelijk van de stoffeigenschappen en van de eigenschappen van het oppervlak waarop de depositie plaatsvindt.

## **S.2 Werkwijze**

In het uitgevoerde programma worden metingen en modelberekeningen uitgevoerd.

### *S.2.1 Metingen*

Gedurende een periode van ruim twee jaar zijn op achttien locaties monsters neerslag en lucht genomen. Op de meeste stations werden steeds, gedurende perioden van vier weken, monsters genomen. Op drie stations werden wekelijks luchtmonsters verzameld. De luchtmonsters werden verzameld met behulp van hoog-volume pompen, die lucht aanzuigen door een filter-foam combinatie en een adsorptiemiddel. Neerslagmonsters werden verzameld met een zogenaamde wet-only sampler. De monsters zijn geanalyseerd op een groot aantal verbindingen met behulp van gaschromatografie gekoppeld met massa-spectrometrie (GC/MS) De monsters zijn geanalyseerd op hun gehalte aan PCB's, PAK en pesticiden. Daaronder zijn de zeven *indicator-PCB's* en de *zestien PAK van EPA*. Ook is onderzocht in hoeverre PAK in de gasfase dan wel gebon-

den aan deeltjes voorkomen. De concentratie van pesticiden werd in alle monsters bepaald, die van PAK en PCB's in de monsters van negen stations.

Er wordt in Nederland en de rest van Europa een zeer grote groep van gewasbeschermingsmiddelen gebruikt. Alleen al in Nederland zijn ruim tweehonderd werkzame stoffen als pesticiden toegelaten voor gebruik in de landbouw. Het is onmogelijk alle gebruikte stoffen volgens één monsternemingsmethode en analysemethode in lage concentraties te bepalen. Teneinde de kosten te beperken is daarom een keuze gemaakt uit de voorkomende stoffen. Er is vervolgens een specifieke methode ontwikkeld waarmee een grote groep belangrijke stoffen kan worden bepaald. De volgende aspecten hebben bij de selectie een rol gespeeld:

- het voorkomen van stoffen in oppervlaktewater en in neerslag
- voorkeuren van opdrachtgevers
- een representatieve keuze, gelet op toepassing (herbiciden, insecticiden, enz.), teelten en toelatingsstatus (wel of niet toegelaten stoffen)
- de mogelijkheid de stof in de verwachte, lage, concentratie te kunnen bepalen.

Gedurende het eerste jaar zijn de monsters van vier locaties op een aanvullende groep stoffen onderzocht. Op basis van deze uitkomsten is het analysepakket in het tweede jaar aangepast. Gedurende het eerste jaar is ook op vier locaties onderzoek verricht naar het voorkomen van *trifenylytin* en enkele polaire pesticiden zoals *carbendazim* en *diuron*. Bij deze laatste groep was de detectiegrens echter relatief hoog waardoor de kans op het aantreffen van de stoffen klein was.

De locaties waarop de monsters zijn genomen zijn zodanig over Nederland verdeeld, dat een redelijke ruimtelijke dekking over Nederland wordt bereikt. Bovendien zijn locaties in de nabijheid van gebieden met specifieke agrarische activiteiten, en daaraan gerelateerd gebruik van bestrijdingsmiddelen, geselecteerd. Door deze werkwijze wordt zowel een goed ruimtelijk overzicht verkregen, als inzicht in de situatie in de verschillende regio's, met verschillende agrarische activiteiten. De locaties van de meetstations werden zorgvuldig geselecteerd, waarbij specifiek aandacht werd besteed aan hun ligging ten opzichte van bronnen en de beïnvloeding door obstakels zoals gebouwen. De metingen op deze locaties geven een goed beeld van de atmosferische depositie in de betrokken gebieden en geven ook goed aan hoe deze over Nederland varieert. Volgens een zeer ruwe analyse zijn de meetstations representatief op schalen van 50 bij 50 km. Door de gemaakte keuzen komt met het huidige meetnet de depositie dicht bij bronnen niet in beeld. Inzicht in de depositie op deze schaal vereist een andere opzet van het onderzoek.

Met financiering van de provincie werden extra meetstations in Noord-Holland geplaatst. De dichtheid van de meetstations is daar dus hoger.

### S.2.2 Modelberekeningen

Met een verspreidingsmodel wordt berekend hoe stoffen door de atmosfeer worden verspreid. Daarbij wordt rekening gehouden met de processen waardoor stoffen uit de atmosfeer worden verwijderd zoals droge depositie (verticaal transport naar het aardoppervlak), natte depositie en afbraak.

Op basis van gegevens over de ruimtelijke verdeling van emissies van stoffen, hun fysisch-chemische eigenschappen en meteorologische omstandigheden kan met een model de depositie over een gebied berekend worden. Het aantrekkelijke van modelberekeningen is, dat inzicht ontstaat in de relatie tussen emissies, (en veranderingen daarin), en de depositie. Bovendien kunnen voor elke plaats berekeningen worden gemaakt en kunnen deposities voor een specifieke regio (bijvoorbeeld waterstroomgebieden) worden afgeleid.

Deze eigenschappen maken modellen uitermate geschikt voor onderzoek naar de mogelijke effecten van beleidsmaatregelen op de depositie. De onzekerheid in het resultaat van modelberekeningen is echter vaak zo groot, dat de geschiktheid voor het gebruik voor beleidsontwikkeling beperkt is. In het hier beschreven onderzoek wordt, op basis van de vergelijking van de gemeten en berekende concentraties en deposities, een eerste uitspraak gedaan over de kwaliteit van modelberekeningen voor een groot aantal stoffen.

Een bijkomend voordeel van modelberekeningen is de mogelijkheid voor zogenaamde *herkomstanalyse*. Aangezien met de modellen een relatie gelegd kan worden tussen emissie op een bepaalde locatie en depositie elders, kan nagegaan worden, in hoeverre bepaalde bronnen verantwoordelijk zijn voor de depositie in een gebied.

In het hier beschreven onderzoek zijn berekeningen uitgevoerd op basis van gegevens over de emissie uit de Emissieregistratie (voor PAK) en een emissie-berekening voor pesticiden uitgevoerd door ALTERRA, in het kader van de MJP-G evaluatie. De schattingen van emissies van de andere stoffen werden betrokken uit de Emissieregistratie. De emissies van pesticiden in het buitenland werden berekend door TNO.

### S.3 Meetresultaten

Een uitvoerige analyse van de metingen werd uitgevoerd. In het rapport staan overzichten van een groot aantal gegevens, zoals de gemiddelde concentratie en depositie van alle stoffen. Deze worden besproken en vergeleken met kwaliteitsnormen voor oppervlaktewater. Voor een aantal veel voorkomende stoffen zijn de gemeten waarden vergeleken met waarden berekend met het verspreidingsmodel OPS.

De belangrijkste resultaten en conclusies worden hierna kort besproken:

#### S.3.1 Concentratie in lucht

De concentratie van PAK in luchtmonsters was meestal goed meetbaar. Bepaling van de concentratie van PCB's en pesticiden was veel lastiger. Veel stoffen werden slechts enkele malen aangetroffen. In totaal werden zo'n 50 verschillende pesticiden één of meerdere keren in lucht aangetroffen. Daarvan kwamen *chloorprofam*, *dichlobenil*, *DNOC*, *fluazinam*, *hexachloorbenzeen*, *pentachloorfenol*, *procymidon*, *propachloor*, *triallaat*, *trifluralin*, *chloorthalonil*, *kresoxim-methyl* en *vinclozolin* veel voor. Daarnaast werden enkele zeer persistente (en lang verboden) stoffen zoals *endrin* en *telodrin*, *o,p-DDD* en *o,p-DDE*, enkele keren, aangetoond. Ook een groot aantal, meer recentelijk in Nederland verboden stoffen, zoals *atrazin*, *endosulfan* enz. werden regelmatig aangetroffen. *Aldrin*, *deltametrin*, *dicofol*, *disulfoton*, *fenitrothion*, *fenthion*, *fosfamidon*, *heptenofos*, *metamitron*, *methomyl*, *parathion-methyl*, *triadimenol* en *2.4-D* konden niet in luchtmonsters worden aangetoond.

#### S.3.2 Concentratie in neerslag

De concentratie van PAK in neerslagmonsters kon ook zeer goed worden vastgesteld. PCB's en veel pesticiden konden veel minder vaak worden aangetoond, al was de detectie minder vaak een probleem dan in de luchtmonsters. Ook in neerslag werden zo'n 50 verschillende pesticiden aangetroffen. Daaronder was een aantal verboden persistente stoffen zoals *o,p-DDD* en een groot aantal recentelijk in Nederland verboden stoffen zoals *trifluralin* en *atrazin*.

Niet in neerslag konden worden aangetoond: *aldrin*, *bitertanol*, *deltamethrin*, *demeton-S-methyl*, *dicofol*, *disulfoton*, *endrin*, *fosfamidon*, *heptachloor*, *heptachloorepoxide*, *heptenofos*, *methomyl*, *o,p'-DDE*, *telodrin*, *triadimenol* en *triazofos*.

Op een aantal monsters werden analyses uitgevoerd met behulp van een LC-MS methode, waarmee de meer polaire pesticiden kunnen worden aangetoond. Van deze groep werd alleen *isoproturon* regelmatig aangetroffen.

### S.3.3 Verdeling over de fasen

Zoals hiervoor vermeldt zullen stoffen in lucht zich verdelen over de gasfase en de deeltjesfase (zwevend stof of aërosol) afhankelijk van hun dampspanning en de concentratie van deeltjes. Deze verdeling bepaalt hoe de stof zich in de atmosfeer gedraagt. Voor de modellering van de verspreiding door de lucht en de depositie is het daarom belangrijk hoe een stof is verdeeld over deze twee fasen. De verdeling van de PAK en PCB's tussen de gasfase en de aërosolfase en het voorkomen van stoffen in de lucht dan wel in de neerslag kan goed worden verklaard op basis van theoretische overwegingen. Voor de pesticiden is de overeenkomst tussen de theoretische en waargenomen verdelingen slecht te noemen. Naar een verklaring voor deze afwijking is geen uitgebreid onderzoek gedaan. Waarschijnlijk spelen de kwaliteit van de, in de vergelijking gebruikte, parameters, zoals de dampspanning en de Henry-coëfficiënt, de kennis over de snelheid waarmee het evenwicht tussen gasfase en deeltjesfase zich instelt in relatie tot de transportafstand door de atmosfeer evenals meetartefacten, die samenhangen met de detectiegrens, hierbij een rol.

In welke mate een stof in neerslag wordt opgenomen hangt ook af van allerlei fysische parameters zoals de dampspanning en de oplosbaarheid in de neerslag. Voor PAK en PCB's was de overeenkomst tussen de verwachte verhouding tussen de concentratie in neerslag en die in lucht, enerzijds en de waargenomen verhouding anderzijds, goed. Voor de groep pesticiden kwamen deze verhoudingen totaal niet overeen.

### S.3.4 Vergelijking met normen

Er zijn op dit moment vrijwel geen kwaliteitsnorm voor de concentratie van pesticiden, PCB's en PAK in lucht of neerslag. Alleen voor *benzo[a]pyreen* geldt een norm voor lucht. De MTR-waarde voor de concentratie van *benzo[a]pyreen*

(1 ng/m<sup>3</sup>) in lucht werd echter op geen van de meetlocaties overschreden.

Om toch de hoogte van de waargenomen concentraties te kunnen beoordelen is een vergelijking gemaakt met de kwaliteitsnormen voor oppervlaktewater. Vergelijking met deze normen heeft daarom geen formele of wetenschappelijke betekenis, maar dient als een eerste indicatie. De concentratie in neerslag van achttien verschillende pesticiden overschreed één of meerdere keren het MTR-niveau voor oppervlaktewater. Het betrof zeven insecticiden, vier herbiciden, vier fungiciden en twee stoffen die als insecticide/acaricide gebruikt worden. Daarnaast werd *methiocarb*, een stof met een brede toepassing, boven het MTR aangetroffen. *Dichloorvos* en *chloorthalonil* werden in meer dan 20% van de neerslagmonsters boven het MTR niveau aangetroffen. Ook de concentratie van *trifenylin* overschreed vaak het MTR, voornamelijk in Veendam en Yerseke. De concentratie van deze stof in Anna Paulowna en Lelystad overschreden slechts een enkele keer het MTR. Van de PAK overschreden de concentraties van *benzo[a]-antracene*, *benzo[k]-fluoranteen*, *fenantreen* en *fluoranteen* enkele keren het MTR-niveau voor oppervlaktewater.

De concentratie in neerslag van tweeëntwintig pesticiden overschreed één of meerdere malen de drinkwaternorm van 100 ng/l: acht fungiciden, tien herbiciden, twee insecticiden en twee stoffen die als insecticide en acaricide worden gebruikt. Vooral *propachloor* en *chloorprofam* vallen daarbij op door de hoogte en de frequentie van de overschrijding. *DNOC*, een stof met een brede toepassing, overschreed op alle stations de drinkwaternorm. Van de polaire pesticiden overschreed alleen *isoproturon* de drinkwaternorm.

Verder werden opvallend hoge concentraties aangetroffen voor *fenantreen*, *fluoranteen* en *pyreen*. In het jaar 2000 was de concentratie van de Borneff -PAK in neerslag gemiddeld iets hoger dan de norm van 200 ng/l. In 2001 was de concentratie zo'n 25% lager dan deze waarde. De concentraties van *benzo[a]pyreen*, *benzo[b]fluoranteen*, *benzo[k]fluoranteen*, *indeno[1,2,3-cd]fluoranteen* en *fluoranteen* overschreden afzonderlijk enkele malen de normen van 200 ng/l in neerslagmonsters.

#### *Overschrijding van normen in het oppervlaktewater als gevolg van atmosferische depositie*

Aan de hand van berekeningen met een eenvoudig model voor de verspreiding van stoffen in het oppervlaktewater is voor enkele stoffen onderzocht, in hoeverre atmosferische depositie kan leiden tot overschrijding van de kwaliteitsnormen voor oppervlaktewater (MTR respectievelijk VR). Daarbij zijn verschillende karakteristieke watersystemen onderzocht. Het gevoeligst zijn daarbij vennen die vrijwel uitsluitend via neerslag worden gevoed. Uit deze berekeningen blijkt dat de jaargemiddelde belasting waarschijnlijk niet snel zal leiden tot overschrijding van het MTR. Voor enkele stoffen wordt het VR niveau als gevolg van deze belasting in verschillende wateren echter wel overschreden.

Op dit moment zijn alleen normen voor enkelvoudige stoffen beschikbaar. Het is niet duidelijk in hoeverre de combinatie van een groot aantal stoffen leidt tot effecten. Dit zou bijvoorbeeld aan de hand van bio-essays kunnen worden onderzocht.

De gemaakte modelberekeningen zijn uitgevoerd voor landelijk representatieve niveaus. De depositie kent voor de meeste stoffen echter een sterk verloop over het jaar. Daarnaast is er de grote spreiding in de depositie over het land. Het resultaat van de berekeningen suggereert dat de hoge deposities die, in sommige gebieden in het voorjaar en de zomer worden gemeten, wel zouden kunnen leiden tot overschrijdingen van het MTR niveau gedurende die periode. Zoals uit al eerder uitgevoerd onderzoek bleek, kan dicht bij bronnen de depositie nog veel hoger zijn. Berekeningen met een atmosferisch verspreidingsmodel tonen aan dat op één kilometer van een bron de depositie wel een factor vijftig hoger kan zijn dan op een afstand van tien kilometer. De kans op overschrijding van kritische niveaus is daar dus groter. Dichtbij belangrijke brongebieden zou de depositie nog veel hoger kunnen zijn.

## **S.4 De belasting van Nederland door atmosferische depositie (vrachten)**

De vracht door droge depositie op de meetlocaties is berekend op basis van de gemeten concentratie in lucht en een schatting van de depositiesnelheid, gebaseerd op eenvoudige modellen. Samen met de gemeten natte depositie geeft deze droge depositie de totale depositie naar het oppervlaktewater en de bodem. Het aandeel van de natte depositie in de totale vracht door atmosferische depositie is het laagst voor de vluchtige PAK's en PCB's en het hoogst voor de minder vluchtige PAK's en PCB's. Voor de verschillende pesticiden varieert de verhouding tussen natte en droge depositie zeer sterk tussen de verschillende stoffen.

De tabel geeft een overzicht van de depositie van het Nederlands oppervlaktewater (exclusief de grote wateren), de Waddenzee, het IJsselmeer en de Nederlandse bodem voor het jaar 2001.

Voor de bepaling van de depositie schatting zijn steeds gegevens gebruikt van de stations die het meest representatief zijn voor het betrokken gebied. De schattingen van de depositie op de Noordzee zijn onzeker omdat geen rekening is gehouden met het verloop van de concentratie over de Noordzee. De depositie op het bedoelde gebied in de Noordzee is waarschijnlijk lager dan hier aangegeven.

Op verzoek van de provincie Noord-Holland zijn schattingen opgenomen van de depositie in deze provincie.

Tabel 1 De atmosferische depositie van pesticiden naar het Nederlands oppervlaktewater in het jaar 2000 (exclusief grote wateren 2.793 km<sup>2</sup>), het oppervlaktewater in Noord-Holland (800 km<sup>2</sup>), de Waddenzee (2.600 km<sup>2</sup>), het IJsselmeer<sup>1)</sup> (1.928 km<sup>2</sup>) en Nederlandse bodem (36.783 km<sup>2</sup>) in (kg/jr).

Atmosferische depositie	Oppervlakte water Nederland	Oppervlakte water Noord-Holland	Noordzee <sup>2)</sup>	Waddenzee	IJsselmeer <sup>1)</sup>	Bodem
	2001	2001	2001	2001	2001	2001
	kg/jr	kg/jr	ton/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr
2,4-D	4	1	1	5	2	49
Atrazine	25	6	3	17	13	333
Bentazon	7	1	0,04	1	6	65
Captan	85	29	4	30	53	432
Chloorprofam	290	142	15	382	218	2100
chloorpyrifos-methyl	1	0,2	0,02	1	1	5
Chloorthalonil	38,1	15	3	61	30	298
Diazinon	1	1	0,1	2	1	11
Dichlobenil	443,7	140	42	352	356	362
Dichloorvos	19,3	4	0,2	5	8	132
Dimethoaat	3	0,2	0,1	0	1	25
DNOC	1209	324	181	1207	879	14057
endosulfan II	0,8	0,1	0	1	0	2
epoxiconazol	6	0	-	0	-	39
ethofumesaat	34	7	5	23	19	267
fluazinam	53	11	4	48	56	556
fluroxypyr	9	4	0	10	3	13
heptachloor epoxide	1,8	0		1	-	0
hexachloorbenzeen	2	1	0,1	2	1	8
Kresoxim-methyl	16	4	2	19	10	172
Lindaan	23	8	2	15	11	248
MCPA	13	5	3	16	6	165
mecoprop	12	4	1	13	6	153
methiocarb	7	3	0,2	11	3	83
metolachloor	6	2	1	3	1	72
mevinfos	3	1	0,4	4	2	31
o,p'-DDD	1,1	0,02	0,5	1	1	14
Pentachloorfenol (PCP)	28	11	3	20	23	137
pentachloorbenzeen	0,6	0,3	0,1	1	1	6
pirimicarb	1,1	0,3	0	0	1	13
pirimifos-methyl	352	88	50	312	397	456
procymidon	13	6	1	14	6	109
propachloor	194	50	15	188	279	1685
propoxur	1	0,5	0,2	1	2	19
terbutylazine	29	6	3	16	12	264
tetrabromobisfenol A	7	3	0,3	2	5	92
tolclofos-methyl	12	13	0,1	43	11	74
Triallaat	80	14	10	69	47	115
trifluralin	85	32	11	88	54	124
vinclozolin	107	31	3	117	126	687

1) Met het IJsselmeer wordt bedoeld de Rijkswateren in het IJsselmeergebied.

2) De schatting van de depositie op de Noordzee is onzeker (Zie tekst).



Tabel 2 De atmosferische depositie van PAK en PCB naar het Nederlands oppervlaktewater (2.793 km<sup>2</sup>), het oppervlaktewater in Noord-Holland (800 km<sup>2</sup>), de Noordzee (508126 km<sup>2</sup> in **ton/jr**), de Waddenzee (2.600 km<sup>2</sup>), het IJsselmeer<sup>1)</sup> (1.928 km<sup>2</sup>) en Nederlandse bodem (36.783 km<sup>2</sup>) in (kg/jr).

Atmosferische depositie	Oppervlakte water	Oppervlakte water Noord-Holland 2001	Noordzee <sup>2)</sup>	Waddenzee	IJsselmeer <sup>1)</sup>	Bodem
	2001	2001	2001	2001	2001	2001
	kg/jr	kg/jr	ton/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr
<b>PAK</b>						
acenafteen	454	139	92	836	268	498
acenaftyleen	44	13	2	78	23	98
antracene	46	13	3	81	23	162
benzo[a]antracene	19	6	3	35	12	207
benzo[a]pyreen	30	10	6	56	18	170
benzo[b]fluoranteen	82	29	14	151	48	520
benzo[g,h,i]peryleen	33	12	6	61	20	553
benzo[k]fluoranteen	59	21	11	109	35	734
chryseen	56	17	8	105	35	426
dibenz[a,h]antracene	7	3	1	14	5	74
fenantreen	1974	645	160	3553	1085	3176
fluoranteen	710	262	68	1307	419	3646
fluoreen	950	265	127	1738	551	953
indeno[1,2,3-cd]pyreen	32	11	7	58	18	263
naftaleen	1786	567	102	3448	1215	931
pyreen	382	121	32	692	215	1304
<b>PCB</b>						
PCB-101	0,6	0,1	0,3	1,3	0,5	4,8
PCB-118	0,5	0,01	0,03	1,4	0,7	6,5
PCB-138	0,5	0,1	0,01	1,1	0,5	6,3
PCB-153	0,7	0,1	0,1	1,4	0,6	9,0
PCB-20	1,3	0,4	0,5	2,3	0,7	14,2
PCB-28	1,0	0,2	0,5	1,7	0,5	11,9
PCB-52	1,5	0,3	0,6	3,2	1,3	15,0
PCB-8	0,4	0,1	0,1	0,7	0,2	2,5

1) Met het IJsselmeer wordt bedoeld de Rijkswateren in het IJsselmeergebied.

2) De schatting van de depositie op de Noordzee is onzeker (Zie tekst).

### PAK en PCB's

Hoge waarden voor de depositie naar het Nederlandse oppervlaktewater werden gevonden voor *fenantreen*, *naftaleen* en *fluoreen*, *fluoranteen* en *acenafteen* met 0,5 tot 4 ton in het jaar 2000. De depositie van de meeste PAK is in 2001 afgenomen ten opzichte van het jaar 2000, met gemiddeld 40 procent. Alleen de depositie van *dibenz[a,h]-antracene* nam iets toe. De depositie van PCB-52 naar het Nederlandse oppervlaktewater was relatief hoog in 2000, met ruim 4 kg per jaar. De depositie van de andere PCB varieerde tussen 0,5 en 2,5 kg per jaar. De depositie van PCB's is in het jaar 2001 met 30 procent afgenomen ten opzichte van het jaar 2000.

### Pesticiden

Hoge waarden voor de depositie naar het Nederlandse oppervlaktewater werden in het jaar 2000 gevonden voor *DNOC* (2,4 ton per jaar voor Nederland), *dichlobenil* (0,7 ton) en *chloorprofam* (0,6 ton per jaar), *propachloor* (0,3 ton per jaar) en *triallaat* (0,2 ton per jaar). Verder werd een

hoge depositie gevonden voor *chloorthalonil*, (bijna 0,1 ton per jaar) en *vinclozolin* (0,08 ton per jaar).

Voor een aantal pesticiden is de Nederlands gemiddelde depositie in 2001 sterk gedaald ten opzichte van 2000: de depositie van *metolachloor* is in 2001 éénvijfde van het niveau in 2000, de depositie van *triallaat* en *dimethoaat* is in 2001 bijna éénderde van het niveau in 2000, *chloorprofam*, *DNOC*, *lindaan* en *procymidon* zijn bijna gehalveerd in depositie, *propachloor* en *dichlobenil* zijn een kwart tot een derde gedaald in depositie. De depositie van *2,4-D*, *bentazon*, *fluazinam*, *methiocarb*, en *mevinfos*, is gestegen met een factor 2 tot 4 in 2001.

Uit deze analyse blijkt dat deposities en concentraties van pesticiden van jaar tot jaar wel een factor twee kunnen verschillen. Deze verschillen hangen waarschijnlijk samen met verschillen in het gebruik van jaar tot jaar. Zo werd in plaats van *metolachloor* werd in 2001 vaak *S-metolachloor* gebruikt. Het verschil tussen de concentratie van de meeste PAK in de twee meetjaren is veel kleiner.

Voor *carbendazim* en *glyfosaat* werd de depositie alleen geschat aan de hand van modelberekeningen. De onzekerheid in deze schattingen is daardoor groot.

### *Regionale verschillen*

Er is een sterk verloop van de depositie over het land. Dit hangt samen met het verbruik van de deze stoffen in de verschillende regio. Het verschil in depositie tussen de verschillende regio's kan daardoor wel tot een factor tien oplopen. Opvallende patronen werden aangetroffen voor stoffen als *fluazinam*, *dimethoaat* en *chloorthalonil*, gebruikt in de teelt van aardappelen, en stoffen zoals *procymidon*, *tolcofos-methyl*, *vinclozolin* en *chloorprofam*, gebruikt in de bollen-teelt en in aardappelopslag. Niet voor alle stoffen was de relatie met teelten goed te leggen. De verdeling van de depositie van *atrazin* en *trifluralin* over het land geeft aan dat deze stoffen waarschijnlijk vanuit het buitenland naar Nederland worden getransporteerd. Ook het waargenomen patroon van de depositie van *terbutylazin* suggereert een aanzienlijke bijdrage uit het buitenland.

### *Reëmissie*

Onderzocht werd in hoeverre droge depositie wordt beïnvloed door de aanwezigheid van stoffen in het milieucompartiment waarop de depositie plaatsvindt. Dit kan gebeuren wanneer een slecht oplosbare stof in hoge concentraties in water aanwezig is. De aanwezigheid van de stof kan worden veroorzaakt door lozingen, drift of andere processen zoals natte depositie. Bij hoge concentraties van de stof in het water en lage concentraties in de lucht zal de droge depositie van de stof worden geremd. In het uiterste geval de richting van de flux zelfs volledig omkeren. Er vindt dan geen droge depositie plaats maar emissie vanuit het water naar de lucht. Om een indruk te krijgen van het belang van dit proces werden in december van het jaar 2000 monsters oppervlaktewater (IJsselmeer, Oosterschelde en Noordzee) grond en gras genomen en geanalyseerd op het standaard analysepakket. Deze meetgegevens en modelberekeningen met een eenvoudig depositiemodel wijzen er op dat voor een aantal stoffen de droge depositie geremd wordt, dan wel in het geheel niet plaatsvindt. Hoewel de hoeveelheid meetgegevens slechts beperkt was zijn er toch concrete aanwijzingen dat *atrazine*, *hexachloorbenzeen* en *triallaat* eerder vanuit het oppervlaktewater te verdampen dan door droge depositie in het oppervlaktewater worden opgenomen. De depositie van *dichlobenil* en *mecoprop* worden geremd door de stoffen aanwezig in het oppervlaktewater. Voor deze stoffen is de droge depositieflux mogelijk een overschatting. Een goed inzicht in het werkelijke belang van dit reëmissie-proces vereist meer uitgebreid onderzoek.

## S.5 Discussie

### S.5.1 *Vergelijking met eerdere studies*

De gemeten belasting door atmosferische depositie met pesticiden is, met ongeveer 0,1% van de hoeveelheid gebruikte werkzame stof, ongeveer een factor tien hoger dan de in de MJG-G gegeven schatting. De MJG-G schatting is echter gemaakt voor alle in Nederland gebruikte pesticiden en daardoor mogelijk niet representatief voor de hier besproken groep.

In de schattingen uit de rapportages van de Hoofdinspectie Milieuhygiëne is ook voor enkele stoffen een schatting gemaakt van de belasting van het oppervlaktewater door atmosferische depositie. De atmosferische depositie van de verschillende PAK lijkt in deze rapportages te worden overschat met een factor drie tot vier.

### S.5.2 *Trends*

De uit de metingen afgeleide depositie is doorgaans lager dan de voor het jaar 1990 met verspreidingsmodellen berekende atmosferische depositie op Nederland. Voor PAK en PCB's is de huidige depositie respectievelijk een factor vier en een factor twee lager dan voor het jaar 1990 werd geschat. De deposities van *endosulfan*, *lindaan* en *trifluralin* verschillen echter een factor 10 tot 50. Opvallend zijn verder lage waarden voor de depositie van *parathion-ethyl*, *mevinfos*, *pentachloorfenol*, *simazine*, *bentazon* en *atrazin*. De verschillen worden waarschijnlijk veroorzaakt worden door een sterke daling van het gebruik van deze stoffen in de afgelopen vijf jaar. Juist de stoffen die toen in de belangstelling stonden zijn inmiddels vervangen door andere stoffen. Afgezien van deze trend worden nog regelmatig *niet toegelaten* stoffen aangetroffen. Het betreft hier stoffen zoals *atrazin*, *endosulfan*, *propachloor*, *trifluralin* en *mevinfos*. Deze stoffen werden alle in 2001 in neerslag aangetroffen. Voor *atrazine*, dat vanaf het jaar 2000 niet is toegelaten in Nederland, *trifluralin* en *lindaan* lijken ook bronnen in het buitenland een belangrijke bijdrage te leveren.

### S.5.3 *Atmosferische depositie vergeleken met andere bronnen*

Het oppervlaktewater wordt behalve vanuit de atmosfeer via verschillende bronnen belast met stoffen. De belasting door atmosferische depositie is vergeleken met de belasting langs andere routes. Er zijn echter weinig gegevens.

Voor de PAK en enkele andere stoffen kon op basis van de Milieumonitor (van de Hoofdinspectie Milieuhygiëne) een vergelijking worden gemaakt met de belasting via andere bronnen. Voor alle stoffen is de gemeten belasting door atmosferische depositie van dezelfde orde van grootte als de directe belasting en de belasting via effluenten. Voor *HCB*, *PCB's* en *pentachloorfenol* is de atmosferische route veruit de belangrijkste.

In het kader van de MJG-G evaluatie zijn schattingen gemaakt van de belasting van de verschillende milieucompartimenten met gewasbeschermingsmiddelen door onder andere drift en laterale uitspoeling. Deze schatting kan voor een beperkt aantal stoffen worden vergeleken met de uit de metingen afgeleide directe atmosferische depositie op het oppervlaktewater in Nederland. De bijdrage van atmosferische depositie aan de belasting van het oppervlaktewater ligt voor de deze groep stoffen tussen de 10 en 140% van de belasting door drift. Opvallend is dat voor *fluazinam* de belasting door atmosferische depositie veel groter is. Gemiddeld over alle onderzochte stoffen komt bijna 0,1% van de gebruikte hoeveelheid actieve stof via directe atmosferische depositie in het Nederlandse oppervlaktewater terecht.

Uit het MJG-G onderzoek blijkt verder dat de belasting met pesticiden via drift en laterale uitspoeling gemiddeld 0,22% van de gebruikte hoeveelheid werkzame stof bedraagt. De belasting

door atmosferische depositie is zeker van dezelfde orde van grootte, zeker als rekening wordt gehouden met de indirecte belasting. Voor enkele stoffen zoals *propachloor* en *vinclozolin* is depositie naar water, met ongeveer één procent, van de gebruikte hoeveelheid werkzame stof zelfs hoog te noemen. Een belangrijk onderscheid is wel dat de belasting via drift op een klein gedeelte van het oppervlaktewater terecht komt terwijl de atmosferische depositie terecht komt op het totale Nederlands oppervlaktewater. Drift zal dus in een beperkt aantal kleine wateren leiden tot hoge concentraties terwijl atmosferische depositie in alle wateren leidt tot lagere concentraties van pesticiden.

Een gedeelte van de depositie op bodem zal ook via uitspoeling of afspoeling in het oppervlaktewater terecht kunnen komen. Schattingen van de bijdrage van deze indirecte depositie via uit- en afspoeling van bodem zijn echter relatief onzeker. In de hier gepresenteerde schattingen is de bijdrage van deze indirecte belasting niet meegenomen. De bijdrage van de indirecte depositie is volgens een eerste schatting (voor het beheersgebied van ZHEW) van dezelfde orde van grootte als de directe atmosferische depositie.

#### S.5.4 Modelberekeningen

Voor twintig stoffen, die regelmatig werden aangetroffen, zijn ook modelberekeningen uitgevoerd. De berekeningen werden uitgevoerd met het OPS model, op basis van de door Alterra opgestelde emissies voor pesticiden door de landbouw en de gegevens van de emissieregistratie voor *fluoranteen* en *benzo[a]pyreen*. Daarnaast werden, speciaal voor deze studie, schattingen gemaakt van de emissie van stoffen in het buitenland. Alle berekeningen werden uitgevoerd voor het jaar 2000.

De overeenkomst tussen de gemeten en berekende natte depositie verschilde sterk tussen de verschillende pesticiden. Voor *bentazon*, *dimethoat*, *tolclofosmethyl*, *DNOC* en *pirimifos-methyl* is de kwaliteit van de vergelijking slecht. Voor de eerste drie stoffen is de oorzaak is hier waarschijnlijk de kwaliteit van de meetresultaten waarbij slechts weinig concentraties boven de detectiegrens werden aangetroffen. Voor *pirimifos-methyl* en *DNOC* is de oorzaak minder duidelijk. Voor *chloorprofam*, *chloorthalonil*, *ethofumesaat*, *dichloorvos*, *procymidon*, *propachloor*, *terbutylazine* en *vinclozolin* was de overeenkomst goed te noemen. Het verschil tussen de berekende en de gemeten depositie was voor deze stoffen gemiddeld minder dan een factor twee. Dit suggereert dat de schattingen die gemaakt zijn van de grootte van de emissie en de verdeling over het land en de berekeningen van de verspreiding door de atmosfeer redelijk goed zijn. Grotere verschillen tot een factor tien werden gevonden voor *fluazinam*, *dichlobenil*, *dimethoat* en *triallaat*. Opvallend zijn de resultaten van de vergelijking tussen de berekende en gemeten depositie van *fluazinam*. De berekende niveaus van deze stof zijn een factor tien hoger dan de gemeten niveaus, terwijl de correlatie tussen de concentraties op de verschillende locaties redelijk is. Uitgebreid onderzoek naar een verklaring voor de gevonden verschillen werd niet verricht.

Op basis van de gevonden verschillen die werden gevonden voor *atrazine*, *dichlobenil*, *DNOC* en *triallaat* werd geconcludeerd dat de geschatte emissies voor deze stoffen geen goed beeld geven van de werkelijkheid of dat de gebruikte parameters voor omzetting of depositie onjuist zijn.

De berekende depositie van *fluoranteen* (een gasvormige PAK) en voor *benzo[a]pyreen* verschilde ook aanzienlijk van de gemeten depositie. Het model onderschat de gemeten depositie van *benzo[a]pyreen* met een factor drie. De natte depositie van *fluoranteen* wordt door het model met een factor twee overschat.

### S.5.5 Bijdrage van de verschillende brongebieden in Nederland en het buitenland

De mogelijkheden om met het model de bijdrage van verschillende Nederlandse brongebieden aan de depositie te schatten zijn geïllustreerd aan de hand van enkele voorbeelden. Van *benzo[a]pyreen*, *procymidon*, *fluazinam*, *dichloorvos* en *chloorthalonil* is de depositie als gevolg van emissies in de verschillende provincies voor alle waterkwaliteitsgebieden berekend. De bijdrage van de verschillende brongebieden hangt sterk samen met de ligging ten opzichte het betrokken waterkwaliteitsgebied. Zo wordt de depositie van een groot aantal pesticiden in het beheersgebied van Zuiveringsschap Hollandse Eilanden en Waarden voor 25 tot 30% bepaald door emissies in het gebied. Voor PAK is deze bijdrage circa 90%.

Aan de hand van modelberekeningen kan ook worden onderzocht wat de bijdrage van het buitenland is aan de depositie. Goede schattingen van de emissie in het buitenland ontbreken echter. In het kader van de huidige studie zijn schattingen gemaakt op basis van het gebruik in Nederland in de verschillende teelten en informatie over het landgebruik in het buitenland. Interessant is het resultaat voor *atrazin*. Bij de berekeningen werd er van uitgegaan dat de stof niet in Nederland wordt gebruikt. De goede overeenkomst tussen de berekende en gemeten concentratie van *atrazin* is opnieuw een sterke aanwijzing dat de depositie van deze, in Nederland niet toegelaten, stof veroorzaakt wordt door emissies in het buitenland. Ook voor *trifluralin* en mogelijk *lindaan* geldt, dat het buitenland waarschijnlijk een belangrijke bijdrage levert aan de depositie.

## S.6 Conclusies

Het bovenstaande verslag richt zich vooral op de wetenschappelijke conclusies die uit het onderzoek kunnen worden getrokken. Hierna worden de conclusies die uit het onderzoek kunnen worden getrokken nog eens samengevat, gericht op beleidsontwikkeling. Daarnaast wordt ingegaan op de mogelijkheden de ontwikkelingen in de deposities de komende jaren te monitoren.

Op basis van het hier beschreven meetprogramma kunnen de volgende conclusies worden getrokken:

- Samenhangend met het gebruik in bepaalde perioden en gebieden vertoont de depositie van pesticiden een sterk verloop door het jaar en door het land. De jaarlijkse depositie kan daarnaast, door verschillen in gebruik, ook van jaar tot jaar verschillen tot een factor twee vertonen.
- Niet langer toegelaten stoffen worden in het jaar 2001 nog steeds in neerslag en lucht in Nederland aangetroffen. De bronnen hiervan moeten deels in Nederland worden gezocht. Voor stoffen als *atrazin* en *trifluralin* lijken bronnen in het buitenland een belangrijke bijdrage te leveren aan de belasting. Dit geldt waarschijnlijk ook voor enkele reeds lang verboden, persistente stoffen zoals *endrin* en *o,p.DDE* (een omzettingsproduct van DDT). Voor de meeste andere stoffen is de buitenlandse bijdrage minder belangrijk.
- De concentratie van achttien verschillende pesticiden en vier PAK in neerslag overschrijdt regelmatig het MTR niveau voor oppervlaktewater. De concentratie van tweeëntwintig pesticiden en enkele PAK overschrijden bovendien de drinkwaternorm. De gemiddelde concentratie van Borneff PAK overschrijdt de norm voor drinkwater in het jaar 2000.
- Atmosferische depositie vormt voor sommige pesticiden en PAK een belangrijke belasting voor het binnenlands oppervlaktewater:

1. De gemeten belasting van het oppervlaktewater (uitgedrukt als jaarvracht) in Nederland door atmosferische depositie met pesticiden is van dezelfde orde van grootte als die door drift of die door laterale uitspoeling.
  2. De gemeten belasting door atmosferische depositie van PAK (jaarvracht) is vrijwel even groot als de andere vormen van belasting.
  3. Voor HCB, PCB's en *pentachloorfenol* is de atmosferische route veel belangrijker dan andere routes.
- Berekeningen voor enkele stoffen met een eenvoudig model van het oppervlaktewater laten zien, dat de jaargemiddelde belasting door atmosferische depositie alleen waarschijnlijk niet leidt tot overschrijding van het MTR in het oppervlaktewater. Atmosferische depositie kan wel bijdragen aan de belasting door andere bronnen waardoor overschrijding eerder op kan treden. Voor sommige pesticiden kan de hoge belasting door atmosferische depositie in bepaalde periodes van het jaar en in specifieke regio waarschijnlijk wel leiden tot overschrijding van het MTR in die periode.
  - De modelberekeningen geven voor enkele stoffen aan dat het VR (Verwaarloosbaar Risico) niveau in oppervlaktewater *wel* door atmosferische depositie alleen kan worden overschreden.
  - Ook de belasting naar de bodem in Nederland (jaarvracht) is geschat. Door het ontbreken van kennis en betrouwbare gegevens zijn schattingen van de depositie naar bodem echter relatief onzeker. Vergelijking met de belasting door andere bronnen is vaak lastig door het ontbreken van goede gegevens. Voor natuurgebieden is de belasting vanuit de atmosfeer echter vaak de enige bron.
  - In het algemeen blijkt het OPS model goed bruikbaar om de depositie van pesticiden te berekenen. Het verschil tussen gemeten en berekende deposities was minder dan een factor twee, voor ruim de helft van de stoffen. Voor de rest van de stoffen werden grotere verschillen gevonden. Deze verschillen worden waarschijnlijk veroorzaakt door onjuistheden in de gebruikte schattingen van de emissie. De verschillen tussen de berekende en gemeten depositie van twee verschillende PAK bedroegen een factor twee tot drie.

Bovenstaande conclusies zijn afgeleid uit het huidige onderzoek. Ondanks de brede aanpak zijn er uiteraard enkele beperkingen die samenhangen met de gekozen opzet:

- Er is gekozen voor een representatief middelenpakket. Een belangrijke groep pesticiden zoals de bis-dithio-carbamaten (*maneb cs*) en enkele belangrijke stoffen zoals *glyfosaat*, *diuron* en *carbendazim*, zijn echter niet, dan wel in beperkte mate, in het onderzoek betrokken.
- De locatie van de meetstations was gericht op het verkrijgen van een landelijk beeld met specifieke aandacht voor verschillen tussen de regio's. De meetlocaties zijn daarom zodanig gesitueerd dat beïnvloeding door lokale bronnen minimaal is. In de directe omgeving van bronnen, bijvoorbeeld binnen een straal van een kilometer rond belangrijke bronnen zou de depositie aanzienlijk hoger kunnen zijn en gemakkelijk aanleiding kunnen geven tot overschrijding van MTR niveaus.
- Naast de directe belasting is er ook de indirecte belasting. Dit is de depositie op het land die door afspoeling in het oppervlaktewater terechtkomt. De bovenstaande conclusies zijn gebaseerd op de gemeten depositie exclusief deze indirecte depositie. De grootte van deze indirecte belasting is echter erg onzeker. Eerste schattingen laten zien dat deze route even groot zou kunnen zijn als de directe depositie, waardoor de totale atmosferische belasting nog eens tweemaal zo hoog kan worden.
- Vergelijking met normconcentraties zoals het MTR is alleen mogelijk voor individuele stoffen. Het effect van de depositie door een combinatie van een groot aantal stoffen is niet onderzocht.

## S.7 Aanbevelingen

### S.7.1 Onderzoek

De hier gepresenteerde waarden voor de depositie zijn afgeleid uit metingen op achttien stations verspreid over het land. Daardoor ontstaat een representatief beeld van de depositie op Nederland. Door het gebruik van metingen is de kwaliteit van de schatting van belasting relatief hoog in vergelijking tot de, in het verleden gemaakte, schattingen op basis van modelberekeningen. De onzekerheid in de berekende belasting van het oppervlaktewater werd geschat op een factor 5-10. In dit onderzoek is de depositie voor het eerst ook op basis van metingen vastgesteld. Uit een vergelijking tussen metingen en modelberekeningen blijkt dat het model in staat is de natte depositie vaak binnen een factor twee te schatten. De conclusie lijkt daarmee gerechtvaardigd dat de depositie met de huidige methoden goed kan worden vastgesteld. Daarbij is belangrijk dat de huidige schattingen van emissies van pesticiden volgens een nieuwe, gedetailleerde berekeningswijze zijn gegenereerd. Verbetering van de kwaliteit kan, voor wat betreft de kwaliteit van de metingen, nog worden bereikt door:

- 1) Verbetering van de gevoeligheid van de chemische analyse  
Een verbetering van de nauwkeurigheid kan voor een aantal stoffen nog wel worden bereikt door verhoging van de gevoeligheid van de chemische analyse voor enkele stoffen. Voor de meeste stoffen is de nauwkeurigheid echter voldoende. Voor de polaire pesticiden is de gevoeligheid in het algemeen te laag.
- 2) Vergroting van de kennis over de droge depositie  
Een onzekere grootheid is de waarde van de droge depositiesnelheid naar bodem, vegetatie en oppervlaktewater. De droge depositie wordt nu afgeleid uit metingen van concentratie in lucht en een schatting van de depositiesnelheid. De onzekerheid in deze depositiesnelheid is vrij groot en er is behoefte aan validatie van de schattingen. De aandacht voor de belasting van terrestrische ecosystemen vanuit de atmosfeer is, behalve voor verzurende stoffen, zeer beperkt. Mede daardoor is er weinig onderzoek uitgevoerd naar de onderliggende processen en is de kennis zeer beperkt. Ook het proces van reemissie vereist meer kennis.
- 3) Vergroting van de kennis over de indirecte depositie  
In deze studie is het belang van de indirecte depositie (afspoeling enzovoort) niet meegenomen. De onzekerheid in de omvang van deze route is erg groot terwijl de bijdrage mogelijk groot is.
- 4) Verbetering van de schatting van de depositie op de Noordzee  
De schatting van de depositie op de Noordzee is nu geschat aan de hand van metingen dichtbij de Nederlands kust. Daardoor is geen rekening gehouden met het verloop van de concentratie van de kust naar meer open zee. Verbetering van deze schattingen is mogelijk door metingen ter plaatse uit te voeren. Daarnaast zou een uitgebreide modelstudie het inzicht kunnen vergroten.

De kwaliteit van de modelberekeningen van de depositie van pesticiden kan los daarvan verbeterd te worden door verbetering in:

- 1) Gegevens van de emissie van pesticiden in het buitenland. De hier gebruikte schattingen zijn voornamelijk gebaseerd op gegevens over de Nederlandse landbouw. Goede gegevens over het gebruik in het buitenland ontbraken.
- 2) De kwaliteit van fysisch chemische parameters zoals de Henry-constante en de dampspanning. Vooral voor laag vluchtige verbindingen is de onzekerheid over de dampspanning groot. De kennis over de omzettingssnelheid van stoffen in de atmosfeer is erg beperkt. Dit

leidt tot grote onzekerheden over de bijdrage van de belasting met stoffen vanuit bronnen in het buitenland.

- 3) Zoals hierboven al genoemd is er behoefte aan kennis over het proces van de droge depositie en de indirecte depositie.

In het hier gepresenteerde onderzoek zijn bijzonder veel gegevens verzameld. De analyse van de gegevens is zeer tijdrovend en heeft zich gericht op hoofdzaken. Er is zeker ruimte voor een meer gedetailleerde, wetenschappelijke analyse van de meetgegevens. Bij een uitgebreide analyse zouden uiteraard modelberekeningen een rol kunnen spelen. Startpunt van deze activiteit zou kunnen zijn een nadere analyse van de oorzaak van de verschillen tussen de gemeten en berekende deposities zoals die voor enkele stoffen wordt aangetroffen.

#### *S.7.2 Informatievoorziening m.b.t. atmosferische depositie*

Het huidige onderzoek geeft ook aanknopingspunten voor het beleid t.a.v. atmosferische depositie in de toekomst. Hieronder wordt een aantal aspecten nog eens besproken.

#### *Monitoren van atmosferische depositie in de toekomst*

De, in deze studie vastgestelde, omvang van atmosferische depositie als diffuse bron voor het oppervlaktewater lijkt zodanig groot dat verwacht mag worden dat er behoefte blijft bestaan aan gegevens over het belang van dit proces. Op basis van de vergelijking tussen de resultaten van modelberekeningen en metingen lijkt de conclusie bovendien gerechtvaardigd dat geschikte modellen beschikbaar zijn. Het blijkt daarnaast technisch goed mogelijk door middel van metingen de depositie op landelijke schaal te bepalen. De kosten van het meetprogramma zijn redelijk te overzien.

Voor het ontwikkelen van een strategie gericht op het monitoren van depositie in de komende jaren staan dus zowel metingen als modelberekeningen ter beschikking. Voor het ontwikkelen van een dergelijke strategie, zijn vooral het concrete doel en de mogelijke kosten in relatie tot beschikbare budgetten van belang. Een combinatie van modelberekeningen en metingen ligt voor de hand. Een meetprogramma zou dan gericht kunnen zijn op het in kaart brengen van de verdeling van de depositie over het land en het volgen van ontwikkelingen in het pakket aan bestrijdingsmiddelen. Modelberekeningen zouden gebruikt kunnen worden om regionaal de depositie in relatie tot emissies en de ontwikkelingen daarin in kaart te kunnen brengen.

In een recent uitgevoerde onderzoek ten behoeve van het RIZA is door TNO een strategie uitgewerkt gericht op de informatiebehoefte van waterkwaliteitsbeheerders (Duyzer *et al.*, 2002). Hierbij aansluitend kunnen drie sporen worden onderscheiden.

- 1) Modelberekeningen voor heel Nederland

Voorgesteld wordt berekeningen met een verspreidingsmodel in een formeel traject uit te voeren op basis van gegevens over de emissie naar lucht. Deze gegevens kunnen worden verkregen op basis van de Emissieregistratie. Schattingen van de emissies van pesticiden zouden daarin kunnen worden opgenomen. Ook de uitkomsten van de berekeningen kunnen worden opgenomen in de Emissieregistratie. Het voordeel van deze formele aanpak is dat de kwaliteit van de gegevens vastligt en gehandhaafd blijft. Een resolutie van de gegevens op 5 bij 5 km schaal maakt het mogelijk voor elke waterkwaliteitsbeheerder gegevens te verzamelen.

- 2) Meting van de depositie op landelijke schaal

Dit spoor is vooral belangrijk voor pesticiden. Doordat het middelpakket voortdurend veranderd zijn metingen noodzakelijk om ontwikkelingen vast te stellen en te volgen. Daarnaast kunnen metingen een belangrijke rol spelen om de effecten van beleid en in het gebruik in binnen- en buitenland te volgen. Ook zou (grootschalig) illegaal gebruik kunnen worden op-



gespoord. Voor het verkrijgen van een landelijk beeld zou de inspanning beperkt kunnen blijven tot enkele meetstations. De grote verschillen in de depositie over Nederland zouden waarschijnlijk goed in beeld gebracht kunnen worden door een verdeling van vijf stations volgens een dobbelsteen-configuratie. Daarmee zouden grote verschillen tussen Noord, Zuid, Oost en West in kaart kunnen worden gebracht. Het is wel belangrijk op deze stations een uitgebreid pakket stoffen met hoge gevoeligheid te monitoren en het pakket regelmatig aan te passen aan de ontwikkelingen. De belasting van specifieke regio's zou geschat kunnen worden op basis van modelberekeningen uitgaande van gedetailleerde schattingen van de emissie. Aan de hand van modelberekeningen kan in ieder geval een redelijke schatting worden gemaakt.

### 3) Meting van de depositie op regionale schaal

Bij behoefte aan gegevens op regionale schaal kunnen enkelvoudige meetstations worden ingericht. Hierbij kan het middelenpakket specifiek worden vastgesteld. Aansluiting met de landelijke meetactiviteiten maakt vergelijking van resultaten mogelijk.

#### *S.7.3 Atmosferische depositie in het toelatingsbeleid*

De belasting van het Nederlands oppervlaktewater via atmosferische depositie blijkt van dezelfde orde van grootte te zijn als de belasting via drift en laterale uitspoeling. De bijdrage van de indirecte depositie kan de belasting nog aanzienlijk verhogen.

Een belangrijk verschil is wel dat alle belasting door drift plaatsvindt op een relatief klein wateroppervlak terwijl de atmosferische depositie in heel Nederland plaatsvindt. Belasting door drift zal daardoor sneller leiden tot hoge concentraties en normoverschrijding. Atmosferische depositie zorgt voor een relatief lage belasting van grote gebieden. Het gemiddelde niveau zal daardoor niet snel leiden tot normoverschrijdingen in die gebieden. Tegelijkertijd laten de metingen echter zien dat in concentratiegebieden, in perioden waarin de stoffen gebruikt worden, de depositie wel een factor tien hoger kan zijn. Hoewel hiernaar in de huidige studie geen onderzoek is gedaan is het duidelijk dat nog dichterbij de bron, binnen enkele kilometers van bronnen of brongebieden, de concentratie en depositie nog veel hoger zou kunnen zijn. Atmosferische depositie lijkt dus een belangrijke diffuse bron voor het oppervlaktewater. Hoge belastingen in bepaalde perioden in brongebieden leiden waarschijnlijk tot overschrijding van MTR niveaus. Gezien deze situatie lijkt het zinvol te onderzoeken hoe atmosferische depositie bij het toelatingsbeleid kan worden betrokken.

De vraag is, in hoeverre de depositie van gewasbeschermingsmiddelen beperkt zou kunnen worden. Een uitvoerige bespreking van de mogelijkheden valt buiten het bestek van deze studie. Daarom wordt op deze plaats volstaan met enkele opmerkingen van algemene aard. In een recentelijk uitgevoerde studie van het CLM wordt hier meer uitgebreid op ingegaan. Een belangrijk gegeven is allereerst dat de depositie vrijwel recht evenredig is met de emissie naar lucht. Daarnaast laten de modelberekeningen zien dat de depositie in de verschillende waterkwaliteitsgebieden vaak gerelateerd kan worden aan emissies in de omgeving (binnen de provincie). Beperkingen in het gebruik en de emissie in Nederland leiden daardoor rechtstreeks tot vermindering van de depositie. Keuze voor stoffen met een kortere verblijftijd in lucht, bijvoorbeeld veroorzaakt door een hogere omzettingssnelheid, leidt ook tot vermindering van de depositie. Bij de toelating van pesticiden zou daarom rekening gehouden kunnen worden met de verblijftijd in lucht. Dit is echter een complexe materie waarbij veel basisgegevens ontbreken. In de directe omgeving van de bron, op een schaal van tientallen kilometers waar de depositie het hoogst is, zal bovendien het effect van een hoge omzettingssnelheid (ofwel een lage verblijftijd in lucht) relatief beperkt zijn. Het voordeel van stoffen met een hoge omzettingssnelheid komt vooral op grotere afstanden van de bron tot uitdrukking.

Voor een aantal, in Nederland niet langer toegelaten, stoffen spelen bronnen in het buitenland een belangrijke rol. Het in Nederland uitgevoerde beleid heeft geen invloed op de bijdrage van deze bronnen. Hier zou het internationaal toelatingsbeleid een rol moeten spelen.

#### *Pilotstudy*

Een pilotstudy naar de mogelijkheden om atmosferische depositie in het toelatingsbeleid op te nemen lijkt zinvol. Onderzocht zou kunnen worden in hoeverre fysisch chemische parameters in de praktijk het transport over middellange afstanden beïnvloeden en welke aspecten hier verder van belang zijn. Het onderzoek zou zich kunnen richten op de middenlange afstand van de min of meer directe omgeving van de bron tot honderden kilometers. Depositie in de directe omgeving van de bron is in de huidige studie niet nader onderzocht. De depositie is hier waarschijnlijk veel hoger dan op de huidige meetstations. De kans dat in de directe omgeving van bronnen, binnen enkele kilometers overschrijdingen van normconcentraties optreden en effecten optreden is veel groter dan op landelijke schaal. Het lijkt verder nuttig een aantal realistische situaties uitgebreid door te rekenen.

#### *S.7.4 Andere stoffen*

Het thans afgeronde onderzoek was vooral gericht op organische verbindingen met de nadruk op persistente verbindingen en pesticiden. Uit eerder uitgevoerd onderzoek kwam al naar voren dat ook voor andere stoffen de belasting uit de atmosfeer belangrijk kan zijn. Er zijn bovendien recente aanwijzingen dat de atmosferische depositie van metalen, zoals zink, hoger is dan eerder werd verondersteld. Recentelijk werd ook aangetoond dat neerslag oestrogene potentie kan hebben. Deze potentie bleek gerelateerd te kunnen worden aan de aanwezigheid van *organochloor* bestrijdingsmiddelen. De betekenis van deze onderzoekresultaten is nog onderwerp van nadere studie.

In recentelijk gerapporteerd onderzoek wordt gesuggereerd dat de belasting van estuaria en kustwater met nutriënten vanuit de atmosfeer een belangrijk effect kan hebben. Er wordt een invloed gesuggereerd op bekende effecten zoals algenbloei en zelfs uiteindelijk een verlies aan biodiversiteit. In hoeverre de resultaten van dit Noordamerikaans onderzoek ook in Noord-Europa van belang zijn is vooralsnog onduidelijk. Het lijkt zinvol in de nabije toekomst een inventariserende studie uit te voeren naar het belang van de depositie van metalen, oestrogeen actieve verbindingen en nutriënten voor de kwaliteit van het oppervlaktewater.



## **De STOWA in het kort**

De Stichting Toegepast Onderzoek Waterbeheer, kortweg STOWA, is het onderzoeksplatform van Nederlandse waterbeheerders. Deelnemers zijn alle beheerders van grondwater en oppervlaktewater in landelijk en stedelijk gebied, beheerders van installaties voor de zuivering van huishoudelijk afvalwater en beheerders van waterkeringen. In 2002 waren dat alle waterschappen, hoogheemraadschappen en zuiveringsschappen, de provincies en het Rijk (i.c. het Rijksinstituut voor Zoetwaterbeheer en de Dienst Weg- en Waterbouw).

De waterbeheerders gebruiken de STOWA voor het realiseren van toegepast technisch, natuurwetenschappelijk, bestuurlijk juridisch en sociaal-wetenschappelijk onderzoek dat voor hen van gemeenschappelijk belang is. Onderzoeksprogramma's komen tot stand op basis van behoefteinventarisaties bij de deelnemers. Onderzoekssuggesties van derden, zoals kennisinstituten en adviesbureaus, zijn van harte welkom. Deze suggesties toetst de STOWA aan de behoeften van de deelnemers.

De STOWA verricht zelf geen onderzoek, maar laat dit uitvoeren door gespecialiseerde instanties. De onderzoeken worden begeleid door begeleidingscommissies. Deze zijn samengesteld uit medewerkers van de deelnemers, zonodig aangevuld met andere deskundigen.

Het geld voor onderzoek, ontwikkeling, informatie en diensten brengen de deelnemers samen bijeen. Momenteel bedraagt het jaarlijkse budget zo'n vijf miljoen euro.

U kunt de STOWA bereiken op telefoonnummer: +31 (0)30-2321199.

Ons adres luidt: STOWA, Postbus 8090, 3503 RB Utrecht.

Email: [stowa@stowa.nl](mailto:stowa@stowa.nl).

*Website:* [www.stowa.nl](http://www.stowa.nl).



## SUMMARY

Estimates have shown that atmospheric deposition may be an important source of pesticides for Dutch coastal and inland waters. However, the uncertainty in these estimates, made using atmospheric dispersion model, is large. A project was defined in 1999 with the aim to improve these estimates on the basis of measurements. To this purpose a monitoring network was operated for a period of two years (1999-2001) Air and precipitation samples were taken on a weekly and monthly basis at eighteen stations, located across the whole country. From these samples the concentrations of pesticides, *PCB's* and *PAH's* were determined. In order to obtain a national scale overview all stations were carefully selected outside areas with high emissions. The concentrations and deposition near and inside source regions are expected to be higher than those observed at the stations used in this study.

The interpretation of the measurements was supported by calculations made using an atmospheric dispersion model. Input to the model included detailed estimates of the emission of pesticides in the Netherlands based on sales, information on land use and emission factors. The emissions from other European countries were estimated using statistics on land use and Dutch emission factors. The later estimates are therefore rather uncertain.

The following observations were made:

### *Concentrations*

Up to 50 different pesticides were observed in precipitation and air. Strong temporal and spatial variations were observed that could be explained from knowledge of land use and agricultural usage. The annual deposition may vary by a factor two because of annual differences in usage. Several compounds, whose use is not allowed in the Netherlands were also observed. Emissions from other countries appear to contribute considerably to concentrations of recently forbidden compounds such as *atrazin* and *trifluralin*, as may also be the case for older compounds such as *endrin* and *o,p DDE* (a conversion product of DDT)

In the absence of quality standards for precipitation or air the concentration of these compounds in precipitation were compared to standards for surface water and drinking water.

The concentration of eighteen of these in precipitation exceeded the maximum permissible level for surface water. The concentration of twenty-two exceeded the standard for drinking water of 100 ng/l.

### *Deposition*

The input from the atmosphere to Dutch inland waters appeared to be as large as the input of pesticides by other sources such as spray drift. The deposition to soils in the Netherlands was also calculated. These estimates are however more uncertain and there are no estimates of the input by other sources. For nature reserves the atmosphere is usually the only source.

Calculations with a simple box model indicated that the input from the atmosphere by itself will, in general, not lead to exceedances of the maximum permissible level in surface waters. However in some regions high emissions in certain periods of the year may lead to temporary exceedances. This is especially the more true close to sources. For some compounds the concentration in surface water caused by atmospheric deposition exceeded the *negligible effect level*.

### *Model calculations*

Model calculations were carried out to identify the sources of these compounds. The results of model calculations of the wet deposition were compared with the observed levels. For some compounds the agreement was quite good and the observed and calculated depositions were within a factor of two. For other compounds the differences could be as large as a factor of ten. At this stage no good explanation is available for these large differences.

Estimates of the deposition of pesticides to different Dutch watersheds were made and the source areas were indicated. This enables people responsible for surface water quality to develop measures to reduce the input and improve water-quality. The occurrence of *atrazin* could be related to emissions outside the Netherlands.

#### *Discussion*

The study was set up to assess the magnitude of atmospheric deposition of pesticides. Although the chosen approach was rather broad there are some weaknesses and it should be noted that: An attempt was made to study a representative package of pesticides. Nevertheless important pesticides such as *maneb* were not studied.

Sites were selected outside source regions. In these areas the concentration and deposition are expected to be much higher.

The indirect load by atmospheric deposition (run off of deposited material from paved or unpaved soils) was not accounted for. This route could be as important as direct deposition.

Little is known of the combined effect of the deposition of several toxic compounds together.

Based on the results of this study a recommendation was made to monitor developments in pesticide concentrations and deposition in future. The goal of such an activity would be to improve models by further testing and to monitor concentrations in view of changes in pesticide usage. A further recommendation was to study the possibility of including atmospheric deposition in the registration process.

## **STOWA in brief**

The Institute of Applied Water Research (in short, STOWA) is a research platform for Dutch water controllers. STOWA participants are ground and surface water managers in rural and urban areas, managers of domestic wastewater purification installations and dam inspectors. In 2002 that includes all the country's water boards, polder and dike districts and water treatment plants, the provinces and the State

These water controllers avail themselves of STOWA's facilities for the realisation of all kinds of applied technological, scientific, administrative-legal and social-scientific research activities that may be of communal importance. Research programmes are developed on the basis of requirement reports generated by the institute's participants. Research suggestions proposed by third parties such as centres of learning and consultancy bureaux, are more than welcome.

After having received such suggestions STOWA then consults its participants in order to verify the need for such proposed research.

STOWA does not conduct any research itself, instead it commissions specialised bodies to do the required research. All the studies are supervised by supervisory boards composed of staff from the various participating organisations and, where necessary, experts are brought in.

All the money required for research, development, information and other services is raised by the various participating parties. At the moment, this amounts to an annual budget of some five million euro.

For telephone contact STOWA's number is: (31 (0)30-2321199.

The postal address is: STOWA, P.O. Box 8090, 3503 RB, Utrecht.

E-mail: [stowa@stowa.nl](mailto:stowa@stowa.nl).

Website: [www.stowa.nl](http://www.stowa.nl).





# Inhoudsopgave

Ten geleide  
Korte samenvatting  
Uitgebreide samenvatting  
STOWA in het kort  
Summary  
STOWA in brief

<b>1.</b>	<b>Inleiding.....</b>	<b>3</b>
1.1	Het programma .....	3
1.2	De processen .....	4
1.3	Meetprogramma.....	4
1.3.1	<i>Meetlocaties</i> .....	5
1.3.2	<i>Monsterneming</i> .....	7
1.3.3	<i>Monstermethode</i> .....	7
1.3.4	<i>Chemische analyse</i> .....	8
1.4	Modelberekeningen .....	8
<b>2.</b>	<b>Methoden.....</b>	<b>11</b>
2.1	Inleiding.....	11
2.1.1	<i>Bewerking van de gegevens</i> .....	11
2.1	Berekening van de atmosferische depositie uit de meetresultaten.....	12
2.3	Berekening van de atmosferische depositie met behulp van een verspreidings- en depositiemodel .....	12
2.3.1	<i>Inleiding</i> .....	12
2.3.2	<i>Emissies naar lucht</i> .....	13
2.3.3	<i>Het transport- en depositiemodel</i> .....	14
<b>3.</b>	<b>Resultaten.....</b>	<b>17</b>
3.1	Inleiding.....	17
3.2	Concentraties in neerslag en lucht .....	17
3.2.1	<i>Kwaliteitsborging</i> .....	17
3.2.2	<i>Verdeling over de fasen</i> .....	18
3.2.3	<i>Concentratie verloop gedurende de meetperiode</i> .....	19
3.2.4	<i>Gemiddelde concentraties in lucht</i> .....	25
3.2.5	<i>Gemiddelde concentraties in neerslag</i> .....	27
3.3	De belasting van de bodem en het oppervlaktewater met atmosferische depositie .....	33
3.4	Berekening van de atmosferische depositie met behulp van een verspreidingsmodel .....	37
3.4.1	<i>Vergelijking van modelresultaten met gemeten natte depositie in Nederland</i> .....	37
3.4.2	<i>Bijdrages van emissies van de verschillende provincies op deposities in waterschappen</i> .....	48
3.4.3	<i>Het effect van atmosferische depositie van pesticiden op de concentraties in oppervlaktewater; vergelijking met normwaarden</i> .....	51

<b>4.</b>	<b>Discussie en conclusies .....</b>	<b>55</b>
4.1	Inleiding .....	55
4.2	De resultaten van de metingen.....	55
4.3	Vergelijking met modelberekeningen.....	58
4.4	Aanbevelingen voor het vervolg.....	59
4.4.1	<i>Aanbevelingen voor het verder onderzoek.....</i>	<i>59</i>
4.4.2	<i>Monitoren van atmosferische depositie van organische verbindingen in de toekomst .....</i>	<i>60</i>
4.4.3	<i>Atmosferische depositie in het toelatingsbeleid.....</i>	<i>62</i>
<b>5.</b>	<b>Referenties.....</b>	<b>65</b>
<b>6.</b>	<b>Verantwoording.....</b>	<b>69</b>

*Bijlagen*

I	Depositiesnelheid
II	Concentraties in neerslag en in lucht
III	De nauwkeurigheid van de geschatte atmosferische belasting
IV	Gebruikte verwerkingsmethoden
V	Atmosferische depositie in de omgeving van de bron
VI	Concentraties en deposities in Noord-Holland
VII	Bijdrage van de verschillende provincies en het buitenland aan de deposities op de meetlocaties
VIII	De concentratie van enkele polaire pesticiden in neerslag
IX	De atmosferische depositie van pesticiden vergeleken met het gebruik van de werkzame stof in Nederland

## 1. Inleiding

Stoffen komen langs verschillende routes in het oppervlaktewater terecht. Directe lozingen, afspoeling en drift zijn daarbij belangrijk. Ook vanuit de atmosfeer kunnen stoffen naar het aardoppervlak worden getransporteerd, gebonden aan neerslag en door directe opname uit de lucht. Recentelijk uitgevoerde modelberekeningen laten zien dat voor veel oppervlaktewateren de belasting via de atmosfeer een belangrijk aandeel vormt van de totale belasting met persistente organische verbindingen (Baart et al., 1995 en Warmenhoven et al., 1989a). Dit geldt vooral voor de pesticiden. Zo vormt de atmosfeer voor de Noordzee de belangrijkste bron van veel pesticiden. De bijdrage van de onderzochte stoffen lag veelal boven de 90% (Baart et al., 1995). Ook voor het zoete oppervlaktewater levert de atmosfeer vaak een belangrijke bijdrage aan de belasting (Warmenhoven et al., 1989b).

De onzekerheid in de gemaakte schattingen is echter groot (Baart et al., 1995). Dit hangt, onder andere, samen met het gebrek aan goede gegevens over de emissie van de verschillende stoffen. Bovendien ontbreken metingen die het mogelijk maken de gemaakte schattingen te valideren. In 1998 verscheen een rapport en een advies van de Gezondheidsraad waarin het belang van de atmosferische route voor pesticiden werd aangegeven (Van Dijk et al., 1998).

### 1.1 Het programma

De Interdepartementale Werkgroep Atmosferische Depositie (IWAD) is al enige jaren bezig met het initiëren van onderzoek gericht op het verkleinen van de onzekerheid in schattingen van de depositie van persistente verbindingen. Na een eerste studie, waarin modelberekeningen werden uitgevoerd (Warmenhoven 1989a, 1989b) werd een lijn uitgezet gericht op het verkleinen van de onzekerheid door middel van metingen. Vervolgens werd een eerste strategie voor een meetprogramma ontwikkeld. Daarna werden in een pilotstudy meetmethoden ontwikkeld, getoetst en op beperkte schaal ingezet (Baas en Duyzer, 1997). Deze studie gaf aan dat het goed mogelijk is metingen van de depositie uit te voeren. Uiteindelijk werd een enquête uitgevoerd onder alle bij de problematiek van de atmosferische depositie betrokken instanties, zoals waterkwaliteitsbeheerders, Rijkswaterstaat en Ministeries (Duyzer et al. 1998). In de enquête werd de behoefte aan informatie bij de betrokkenen geïnventariseerd. Op basis van de resultaten van die enquête werd een uitgebreid programma opgesteld.

In het voorjaar van 1999 werd gestart met het programma. Het doel van het onderzoek was als volgt geformuleerd:

*Het bepalen van de belasting van de kustwateren en de Noordzee (met nadruk op het Nederlands Continentaal Plat) en het Nederlands grondgebied (water en bodem) met persistente organische verbindingen (POP). Vanuit de atmosfeer en het aangeven van de bronnen van deze belasting. Als resultaat van dit onderzoek wordt zowel op nationale als op regionale schaal overzicht van het belang van atmosferische depositie verkregen. In de toekomst zal een strategie moeten worden ontwikkeld, gericht op het monitoren van ontwikkelingen in de depositie.*

Het programma wordt gefinancierd uit bijdragen van het ministerie van VROM, het ministerie van Verkeer en Waterstaat (via het RIKZ, RIZA en de TNO doelsubsidie), het ministerie van LNV (via de TNO doelsubsidie) en de STOWA. Later in 1999 werd het programma uitgebreid door bijdragen van de Provincie Noord-Holland en Rijkswaterstaat directie IJsselmeergebied. De financiering van het meetprogramma stopte in het najaar van 2001. Een aanvullende bijdrage

van het RIVM maakte het echter mogelijk gedurende het hele jaar 2001 metingen uit te voeren. In totaal zijn daarmee ruim twee en een half meetjaren beschikbaar.

Na tussenrapportages over de voorbereidingsfase waarin monsternemingsmethoden werden ontwikkeld, geëvalueerd en getest, werd in het najaar van 1999 gestart met monsterneming. Over de resultaten van de voorbereidingsfase werd uitvoerig gerapporteerd (Duyzer et al., 1999). Na het eerste halfjaar en het eerste jaar waarin metingen werden uitgevoerd werden tussenrapportages opgesteld (Duyzer, 2000a, 2000b). In 2001 verscheen een uitgebreide rapportage over de metingen in het kalenderjaar 2000 (Duyzer en Vonk, 2001).

In het thans voorliggende rapport worden de resultaten van het complete programma gepresenteerd.

## **1.2 De processen**

De hier bestudeerde stoffen komen op verschillende manier in de lucht terecht. PAK komen vrij bij verbrandingsprocessen, PCB's verdampen uit, in het verleden gebruikte, transformatoren en condensatoren en pesticiden verdampen tijdens en na de toepassing. In de lucht gekomen worden ze getransporteerd door de wind en daarbij verdund. Tijdens het transport door de lucht staan ze aan allerlei processen bloot. De belangrijkste zijn opname aan in lucht zwevende deeltjes, omzetting door ozon of radicalen, fotolyse, en depositie. Veel van de hier bestudeerde stoffen hebben een lage dampspanning en zullen snel aan in de lucht zwevend stof worden opgenomen. Depositie is het proces waarbij stoffen worden opgenomen op het aardoppervlak. Daarbij is natte depositie het proces waarbij stoffen worden opgenomen in neerslag. Droge depositie is het proces waarbij stoffen door turbulentie in contact komen met het aardoppervlak en daar worden opgenomen. Zo kunnen goed oplosbare stoffen gewoon in oppervlaktewater op worden genomen.

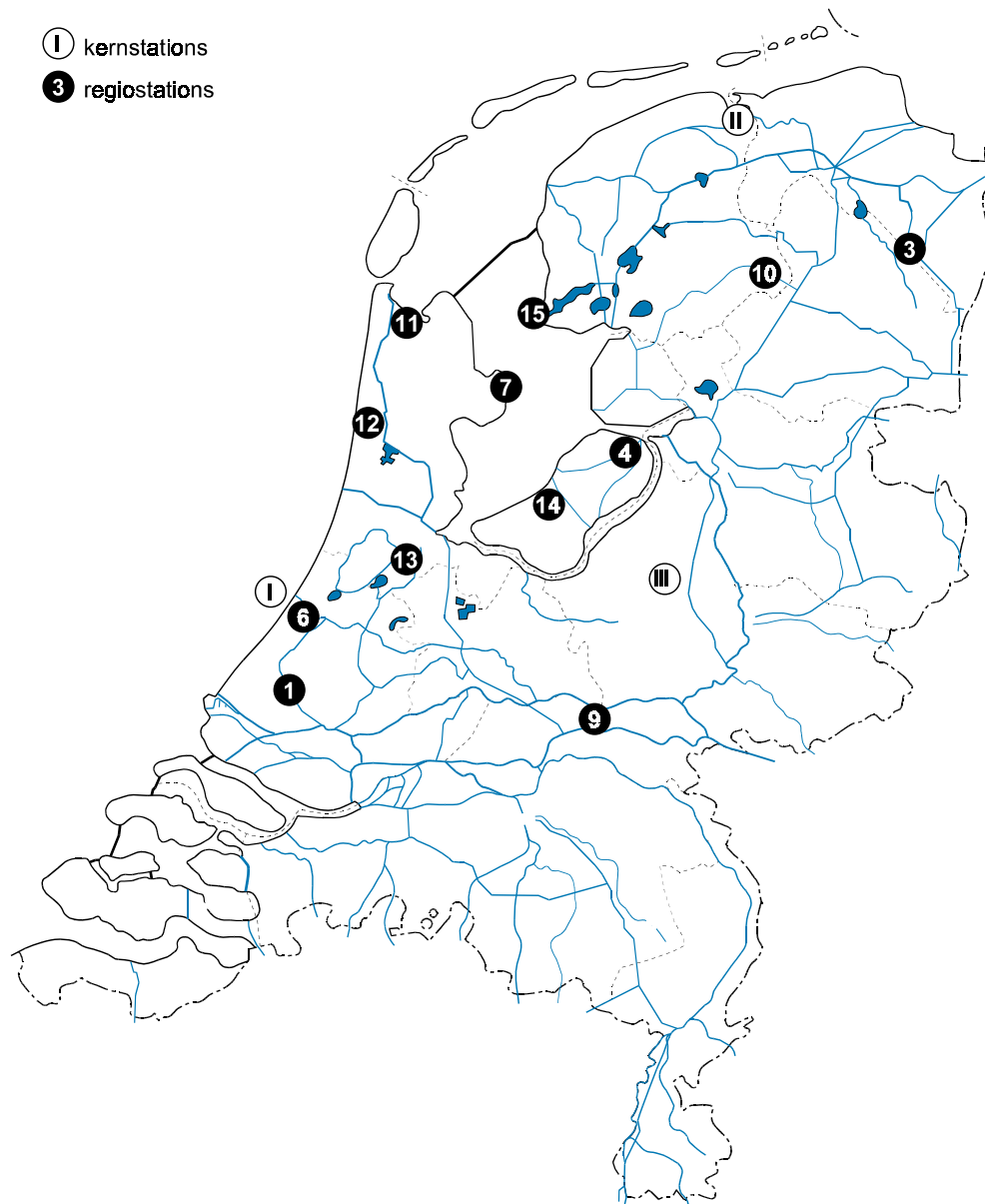
Het meten van natte depositie is relatief eenvoudig. De concentratie van een stof in neerslag wordt bepaald. De natte depositie is dan de gemiddelde concentratie vermenigvuldigd met de hoeveelheid neerslag. Het meten van droge depositie is erg lastig. In dit onderzoek wordt volstaan met een meting van de concentratie in lucht. Uit deze concentratie wordt met behulp van de zogenaamde droge depositiesnelheid de depositieflux berekend. Deze depositiesnelheid is afhankelijk van de stoffeigenschappen en van de eigenschappen van het oppervlak waarop de depositie plaatsvindt.

## **1.3 Meetprogramma**

Gedurende een periode van ruim twee jaar zijn monsters van neerslag en lucht genomen op achttien locaties. De locaties waarop de monsters zijn genomen zijn zodanig over Nederland verdeeld, dat een redelijke ruimtelijke dekking over Nederland wordt bereikt. Bovendien zijn locaties in gebieden met specifieke agrarische activiteiten en daaraan gerelateerde bestrijdingsmiddelen geselecteerd. Door deze werkwijze wordt zowel een goed ruimtelijk overzicht verkregen, als inzicht in de situatie in de verschillende regio's, met verschillende agrarische activiteiten. De locaties van de meetstations werden zorgvuldig geselecteerd waarbij specifiek aandacht werd besteed aan hun ligging ten opzichte van bronnen en de beïnvloeding door obstakels zoals gebouwen. De metingen op deze locaties geven een goed beeld van de atmosferische depositie in de betrokken gebieden en geven ook goed aan hoe deze over Nederland varieert.

### 1.3.1 Meetlocaties

Tabel 1 geeft de ligging van de verschillende locaties en de analyses die, op de daar genomen monsters, zijn uitgevoerd. De locatie Lelystad-Oostvaardersplassen is in de loop van het jaar 2000 ontmanteld in verband met vandalisme en een nieuwe locatie, Lelystad-Houtribsluizen, werd in plaats daarvan in gebruik genomen. De ligging van de meetlocaties is aangegeven in Figuur 1.



Figuur 1 De ligging van de meetstations in Nederland.

Tabel 3 Ligging van locaties waar metingen worden verricht. Aangegeven zijn de coördinaten en de beheerder. Verder is de voor het station gehanteerde twee letter code aangegeven en welke metingen worden uitgevoerd op de verschillende locaties.

Volg-nummer	Naam locatie	Code	Ligging	Type station	Coördinaten	Beheerder	Start monster-neming	Extra metingen <sup>1)</sup>
7	Andijk	(AN)	Noord-Holland (Oost)	R+	145.500-528.700	PWZN	16-9-1999	
13	Aalsmeer	(AL)	Noord-Holland (Zuid)	R+	119.500-478.300	Waterschap AGV	2-11-1999	
11	Anna Paulowna	(AP)	Noord-Holland (Noord)	R+	120.250-544.500	Waterschap de Hollandse Kroon	4-11-1999	OT, AL
9	Betuwe	(BE)	Betuwe	R	147.650-440.150	HHR Rivierenland	13-8-1999	
1	Delft	(DE)	Randstad	R	086.100-446.100	TNO	15-9-1999	AL
12	Egmond	(EG)	Noord-Holland (kuststrook)	R+	108.600-517.300	Waterschap het Lange Rond	5-11-1999	
10	Fochteloerveen	(FO)	Zuid Oost Friesland	R	220.250-558.300	Natuurmonumenten	15-9-1999	
8	Groote Peel	(GP)	Noord-Limburg - Oost Brabant	R	184.200-370.800	Staatsbosbeheer	15-9-1999	AL
4	Ketelhaven	(KE)	Flevopolder	R	180.100-510.250	Fleverwaard	15-9-1999	
II	Lauwersmeer	(LA)	Waddenzee	K	211.460-600.200	Staatsbosbeheer	15-9-1999	
14 <sup>*)</sup>	Lelystad	(LE)	Flevoland (Oostvaardersplassen)	R+	156.500-496.500	Staatsbosbeheer (regio Flevoland)	Ontmanteld 16-8-1999	OT
14	Lelystad	(LE)	Houtribsluizen	R		Rijkswaterstaat	15-9-2000	
I	Meetpost Noordwijk	(NO)	Noordzee	K		RWS Dir. Noordzee	8-9-1999	
III	Speulderveld	(SP)	Veluwe	K	177.700-476.000	RIVM	15-9-1999	
15	Stavoren	(ST)	Friesland	R+	153.500-533.500	Wetterskip Fryslan	8-12-1999	
3	Veendam	(VE)	Oost Groningen	R	256.450-5691.50	Zuiveringsbeheer Provincie Groningen	17-9-1999	OT, AL
5	Wijnandsrade	(WY)	Zuid Limburg	R	189.800-323.700	RIVM	15-9-1999	
2	Yerseke	(YE)	Zeeland	R	061.320-390.650	Waterschap Zeeuwse Eilanden	15-9-1999	OT
6	De Zilk	(ZI)	Zuid Holland kust	R	95.350-479.050	RIVM	15-9-1999	

R geeft aan een *regio station* waar elke vier weken een luchtmonster en een neerslagmonster wordt genomen. In beide monsters wordt de hoeveelheid pesticiden bepaald.

R+ geeft aan een *regio station* waar elke vier weken een luchtmonster en een neerslagmonster wordt genomen. In beide monsters wordt de hoeveelheid pesticiden, PAK en PCB's bepaald.

K geeft aan een *kerfstation* waar elke vier weken een neerslag monster wordt genomen waarin de hoeveelheid pesticiden, PCB's en PAK wordt bepaald. Er wordt elke week een luchtmonster genomen waarin dezelfde stoffen worden bepaald.

\*) *ontmanteld*

1) AL = aanvullende lijst stoffen in neerslag en luchtmonsters in 2000

OT = organotinverbindingen in neerslag

PU = phenylureum verbindingen in neerslag

### 1.3.2 *Monsterneming*

Op de meeste stations werden steeds, gedurende perioden van vier weken, een luchtmonster en een neerslagmonster genomen (R, Tabel 3). In beide monsters werd de hoeveelheid pesticiden bepaald. Op tien locaties werden naast de hoeveelheid pesticiden ook PCB's en PAK bepaald (de zogenaamde regio plus stations, R+) Op drie kernstations (K) verspreid over het land werden wekelijks luchtmonsters verzameld en maandelijks neerslagmonsters. Deze monsters werden geanalyseerd op pesticiden, PCB en PAK. Op kernstation Speulderveld werden de fracties bepaald, waarin de stoffen in lucht in de deeltjesfase en in de gasfase voorkwamen.

### 1.3.3 *Monstermethode*

De luchtmonsters werden verzameld door met behulp van hoog volume pompen een bekende hoeveelheid lucht door een monsternemer te zuigen. Deze monsternemer bestaat uit een glasvezel deeltjesfilter, gevolgd door een polyurethaan-foam (PUF) in serie met een styreen/divenylbenzeen polymeer adsorbent (XAD). Het deeltjesfilter en de absorbentia worden in het laboratorium geanalyseerd voor het bepalen van de concentraties van pesticiden, PCB en PAK in de deeltjesfase en gasfase. In Duyzer et al. 1999) wordt de methode uitgebreid behandeld. Neerslagmonsters werden verzameld met een wet-only sampler. Deze samplers staan alleen dan open wanneer het regent, waarbij de neerslag wordt opgevangen in een gekoelde (4°C) glazen 10 liter fles. Door allerlei oorzaken kan de hoeveelheid neerslag, die met behulp van een wet-only sampler wordt gevangen, afwijken van de hoeveelheid neerslag die wordt opgevangen met behulp van een standaard regenvanger. Daarom wordt de neerslaghoeveelheid, die nodig is voor de bepaling van de natte depositie, met een standaard regenvanger van het type Hellman bepaald, volgens NEN 6585.



Figuur 2 Neerslagvanger en apparatuur voor het nemen van luchtmonsters op de locatie Speulderveld.



### 1.3.4 Chemische analyse

De lucht- en neerslagmonsters zijn geanalyseerd op een groot aantal verbindingen met behulp van gaschromatografie gekoppeld met massaspectometrie (GC/MS). Voor de analyse van een aantal polaire pesticiden is gebruik gemaakt van de LC-MS methode.

De verbindingen waarnaar onderzoek werd gedaan werden geselecteerd aan de hand van verschillende criteria die uitgebreid zijn besproken in het onderzoeksvoorstel. De monsters zijn geanalyseerd op hun gehalte aan PCB's, PAK en pesticiden. Daarin zijn de zeven *indicator-PCB's* en de *zestien PAK van EPA*. Ook is onderzocht in hoeverre PAK in de gasfase dan wel gebonden aan deeltjes voorkomen. De concentratie van pesticiden werd in alle monsters bepaald, die van PAK en PCB's in de monsters van negen stations.

De keuze van de te analyseren pesticiden is lastiger. Er wordt in Nederland en de rest van Europa een zeer grote groep van gewasbeschermingsmiddelen gebruikt. Alleen al in Nederland zijn driehonderd pesticiden toegelaten voor gebruik in de landbouw. Een grote groep wordt aangetroffen in oppervlaktewater en in neerslag. De volgende aspecten hebben bij de selectie een rol gespeeld:

- het voorkomen van stoffen in oppervlaktewater en in neerslag
- voorkeuren van opdrachtgevers
- een representatieve keuze, gelet op toepassing (herbiciden, insecticiden, enz.), teelten en toelatingsstatus (al dan niet toegelaten stoffen).

Het is gezien de kosten onmogelijk alle gebruikte stoffen volgens één monsternemingsmethode en analysemethode in lage concentraties te bepalen. Teneinde de kosten te beperken is een keuze gemaakt uit de voorkomende stoffen. Er is vervolgens een specifieke methode ontwikkeld waarmee een grote groep belangrijke stoffen kan worden bepaald. In Duyzer et al. (1999) en Duyzer en Vonk (2001) wordt nader ingegaan op de keuze van de te analyseren componenten. In Bijlage II is de complete lijst van geanalyseerde pesticiden, PCB's en PAK weergegeven. Gedurende het eerste jaar zijn de monsters van vier locaties op een aanvullende groep stoffen onderzocht. Op basis van deze analyses is het middelenpakket in het tweede jaar aangepast. In het jaar 2000 werd nog een aantal monsters onderzocht op een aantal meer polaire verbindingen. De resultaten van deze analyses staan opgenomen in Bijlage VIII.

## 1.4 Modelberekeningen

Met een verspreidingsmodel wordt berekend hoe stoffen door de atmosfeer worden verspreid. Daarbij wordt rekening gehouden met de processen waardoor stoffen uit de atmosfeer worden verwijderd zoals droge depositie (opname aan het aardoppervlak zonder tussenkomst van neerslag), natte depositie (opname in neerslag gevolgd door opname aan het aardoppervlak) en afbraak.

Op basis van gegevens over de ruimtelijke verdeling van emissies van stoffen, hun fysisch-chemische eigenschappen en meteorologische omstandigheden kan met een model de depositie over een gebied berekend worden.

Het aantrekkelijke van modelberekeningen is, dat inzicht ontstaat in de relatie tussen emissies, (en veranderingen daarin), en de depositie. Bovendien kunnen voor elke plaats berekeningen worden gemaakt en kunnen deposities voor een specifieke regio (bijvoorbeeld waterstroomgebieden) worden afgeleid.

Deze eigenschappen maken modellen uitermate geschikt voor onderzoek naar de mogelijke effecten van beleidsmaatregelen op de depositie. De onzekerheid in het resultaat van modelberekeningen is echter vaak zo groot, dat geschiktheid voor het gebruik voor beleidsontwikkeling

aanvechtbaar is. In het hier beschreven onderzoek wordt, op basis van de vergelijking van de gemeten en berekende concentraties en deposities, een eerste uitspraak gedaan over de kwaliteit van modelberekeningen voor een groot aantal stoffen.

Een bijkomend voordeel van modelberekeningen is de mogelijkheid voor zogenaamde *herkomstanalyse*. Aangezien met de modellen een relatie gelegd kan worden tussen emissie op een bepaalde locatie en depositie elders, kan nagegaan worden, in hoeverre bepaalde bronnen verantwoordelijk zijn voor de depositie in een gebied.

In het hier beschreven onderzoek zijn berekeningen uitgevoerd op basis van gegevens over de emissie uit de Emissieregistratie (voor PAK) en een emissie-inventarisatie voor pesticiden uitgevoerd door ALTERRA, in het kader van de MJP-G evaluatie.



## 2. Methoden

### 2.1 Inleiding

In dit hoofdstuk wordt de manier waarop de meetresultaten worden verwerkt besproken. De verwerking van de meetresultaten is niet eenvoudig. In de afgelopen periode zijn op 18 locaties de concentraties van 16 PAK's, 10 PCB's en zo'n 70 pesticiden vastgesteld. Daarnaast worden nog aanvullende meetgegevens zoals de neerslaghoeveelheid, de luchttemperatuur en de monster volumina apart verzameld. Dit levert bijna 5000 meetgegevens per maand op. Per jaar loopt dit op tot ruim 50000 meetgegevens.

Alle gegevens zijn ondergebracht in een database waaruit op relatief eenvoudige wijze overzichten en doorsneden kunnen worden opgesteld. Hieronder wordt ingegaan op mogelijkheden om de kwaliteit van de meetgegevens te bewaken en representatieve meetgegevens uit de gegevens af te leiden.

#### 2.1.1 *Bewerking van de gegevens*

Het bepalen van representatieve grootheden uit de beschikbare meetgegevens is vaak niet eenvoudig. Dat komt omdat de concentratie van sommige stoffen niet vaak en slechts weinig boven de detectiegrens wordt aangetroffen. Bij het bepalen van de concentratie van stoffen in de genomen monsters is hier aandacht aan besteed. Bij elke serie monsters wordt een schatting van de detectiegrens voor elke individuele stof gemaakt. Alle positieve identificaties van een stof worden echter gerapporteerd. Slechts in die gevallen dat de stof niet kan worden geïdentificeerd wordt een waarde nul gegeven. In een gevoeligheidsanalyse is onderzocht wat het effect van deze werkwijze is. In bijlage III wordt uitvoeriger ingegaan op de gevolgde werkwijze. Het al dan niet voorkomen van stoffen beneden de detectiegrens geeft vooral problemen bij stoffen zoals pesticiden, die mogelijk gedurende perioden van het jaar in het geheel niet voorkomen.

De stof kan gedurende drie maanden MTR waarden overschrijden en de overige maanden niet worden aangetroffen. Het berekende jaargemiddelde komt daardoor erg laag uit en geeft dan niet een goed beeld van het voorkomen van de stof.

Het is niet op voorhand duidelijk hoe in dit geval de gegevens het best kunnen worden gepresenteerd. Om deze problematiek te omzeilen wordt in deze rapportage naast gemiddelde waarden ook het aantal malen dat de stof wordt aangetroffen, en eventueel normen overschrijdt, gepresenteerd.

#### *Berekening van gemiddelde grootheden*

In het volgende hoofdstuk worden de gemiddelde concentraties in lucht en neerslag gegeven. De gemiddelde concentratie is berekend als het rekenkundig gemiddelde van alle monsters. Ook de monsters waarin de stof niet kon worden aangetoond zijn dus in de berekening meegenomen. Deze berekeningswijze is ook gehanteerd voor de gemiddelde concentratie in de neerslag monsters. Ook zijn gemiddelde concentraties van alleen die monsters, waarin een stof werd aangetroffen, berekend (Zie ook bijlage III).

## 2.2 Berekening van de atmosferische depositie uit de meetresultaten

Het belangrijkste doel van het onderzoek is het vaststellen van de belasting van Nederland met persistente organische verbindingen vanuit de atmosfeer. In dit hoofdstuk wordt aangegeven hoe uit de meetgegevens de depositie wordt afgeleid. Daarbij wordt onderscheid gemaakt tussen droge en natte depositie. Deze worden nu achtereenvolgens behandeld.

### *Natte depositie*

Natte depositie wordt berekend uit de gemeten concentratie van stoffen in de neerslag ( $C_{n,periode}$ ) en de hoeveelheid neerslag uit de vierwekelijkse periode ( $V_{periode}$ )

De jaargemiddelde natte depositie flux  $F_{nat,jaar}$  (g/ha/jaar) wordt dan berekend uit de gegevens van elke vierwekelijkse periode:

$$F_{nat,jaar} = \sum_{periode=1}^{13} C_{n,periode} \cdot V_{periode}$$

### *Droge depositie*

Bij droge depositie worden stoffen (gassen of deeltjes) aan het aardoppervlak opgenomen zonder tussenkomst van neerslag. In de lucht voorkomende stoffen komen door turbulente luchtbewegingen in contact met aardoppervlak en worden daar opgenomen. Zo zullen goed oplosbare stoffen snel in oppervlaktewater oplossen. Directe metingen van de atmosferische depositie zijn in principe mogelijk, maar worden nauwelijks op continue basis toegepast. In dit onderzoek is gebruik gemaakt van een hybride methode, waarbij de depositie wordt geschat op basis van metingen van de luchtconcentratie en een schatting van de depositiesnelheid.

De droge depositieflux ( $F_{droog,jaar}$ ) wordt berekend uit de gemeten jaargemiddelde concentratie van stoffen in lucht ( $C_{lucht,jaar}$ ) en een schatting van de depositiesnelheid ( $V_d$ ):

$$F_{droog,jaar} = C_{lucht,jaar} \cdot v_d$$

De droge depositiesnelheid van stoffen is sterk afhankelijk van meteorologische condities en de ondergrond waarop de depositie plaatsvindt. In deze studie is voor de verschillende stoffen de depositiesnelheid naar water en bodem berekend. De depositiesnelheid naar water is berekend volgens de methode van Liss and Slater (1974) en de depositiesnelheid naar bodem is berekend met behulp van het *SimpleBox* model (Van der Meent, 1993) Hierop wordt uitgebreider ingegaan in Bijlage I.

## 2.3 Berekening van de atmosferische depositie met behulp van een verspreidings- en depositiemodel

### 2.3.1 Inleiding

Voor het berekenen van verspreiding en depositie van stoffen door de lucht is allereerst inzicht nodig in de mate waarin verontreinigende stoffen naar de atmosfeer uitgestoten (geëmitteerd) worden door de verschillende bronnen. In Paragraaf 2.3.2 wordt de manier waarop deze informatie verkregen is nader toegelicht.

Nadat stoffen geëmitteerd zijn zullen de stoffen, afhankelijk van de meteorologische omstandigheden en hun fysisch-chemische eigenschappen, verspreiden via de atmosfeer en uiteindelijk

deponeren op het aardoppervlak. Deze processen kunnen met behulp van een transport- en depositiemodel worden beschreven (zie paragraaf 2.3.3).

De totale belasting van het oppervlaktewater ten gevolge van atmosferische depositie vindt naast de directe weg (atmosferische depositie) ook via een indirecte weg plaats. Deze indirecte belasting zorgt voor een verhoging van de belasting van oppervlaktewater boven de directe atmosferische depositie. Hierbij gaat het om de routes die gevolgd worden nadat een verontreiniging gedeponerd is op een ander oppervlak dan water, zoals afspoeling van de, al dan niet verharde, bodem, belasting via rioolstelsel (gezuiverd/ongezuiverd), enzovoort. In Bleeker en Duyzer (2002) wordt een methode gepresenteerd om naast de directe depositie de indirecte depositie af te leiden. In de hier beschreven studie is de indirecte depositie niet berekend.

### 2.3.2 Emissies naar lucht

Een belangrijke invoer voor een transport en depositiemodel is de emissie van een stof naar de lucht. De emissie van bestrijdingsmiddelen wordt, in het algemeen, afgeleid uit de hoeveelheid die in een bepaald gebied wordt gebruikt en de zogenaamde emissiefactor. Deze emissiefactor, of wel de fractie van een stof die bij en na de toepassing verdampt, hangt sterk samen met de dampdruk van een stof. Daarnaast spelen allerlei factoren zoals de gewassoort, gebruikswijze enzovoort nog een rol. De onzekerheid in de emissiefactor is doorgaans groot.

De hoeveelheid van middelen die in een bepaald gebied worden gebruikt is doorgaans ook onzeker. Daarbij speelt de betrouwbaarheid van informatie bovendien een rol. Meestal kan echter op basis van verkoopcijfers een redelijke schatting van het totale gebruik in Nederland gemaakt worden. De verdeling naar bepaalde gebieden vindt plaats op basis van gegevens over teelten. De schattingen van de emissie van bestrijdingsmiddelen zijn dus relatief onzeker terwijl een consistente bron van informatie zoals de Emissie Registratie ontbreekt. Daardoor moest voor de stoffen in de huidige studie gebruik worden gemaakt van verschillende informatiebronnen. Deze worden hierna kort besproken.

De emissie van *fluorantheen* en *benzo[a]pyreen* werden ontleend aan de Emissieregistratie (Bleeker en Duyzer, 2002).

#### *Emissies uit de landbouw*

De emissies (inclusief de ruimtelijke verdeling) van de Nederlandse agrarische bronnen zijn berekend voor het jaar 1998 en zijn in het kader van dit programma ter beschikking gesteld door het RIVM. De gegevens zijn door het onderzoeksbureau ALTERRA opgesteld in het kader van de evaluatie van het Meerjarenplan Gewasbescherming 2000 (MJP-G- 2000). Aangezien het gebruik van stoffen per jaar varieert, zijn de emissiegegevens, die voor het jaar 1998 gelden, gecorrigeerd op basis van gegevens over de verkoop in de jaren 2000 en 2001.

#### *Emissies uit het buitenland*

De emissie van *fluorantheen* en *benzo[a]pyreen* werden ontleend aan inventarisaties uitgevoerd door TNO (zie ook Bleeker en Duyzer, 2002). Informatie over de emissie van bestrijdingsmiddelen is niet op een uniforme manier voorhanden voor de landen waarvan verwacht wordt dat die een significante bijdrage leveren aan de belasting in Nederland. Hierbij gaat het in eerste instantie om de landen: België, Duitsland, Engeland, Frankrijk en Spanje. Om echter toch een, zij het vrij grove, schatting te kunnen maken van de emissie in deze landen is gebruik gemaakt van verbruiksfactoren voor 1998, die zijn afgeleid uit Nederlandse gegevens. Deze zijn vervolgens gecombineerd met informatie over de ruimtelijke verdeling van verschillende typen van landgebruik, zoals grasland, granen, boomgaarden etc. De emissiefactoren voor de verschillende

bestrijdingsmiddelen zijn afgeleid uit informatie over de totale Nederlandse emissie van de stof en het gebruik van die stof volgens het CBS.

Het gebruik van een stof per land is vervolgens 'geschaald' op basis van informatie over areaal waarop de stof (mogelijk) toegepast wordt (EU, 2000) Voor een aantal stoffen ontbrak dergelijke informatie en was het niet mogelijk op deze wijze schattingen van emissies uit buitenlandse bronnen te maken.

Het zal duidelijk zijn dat deze werkwijze niet optimaal is en niet leidt de hoogst mogelijke nauwkeurigheid. De benodigde gegevens zijn op dit moment echter niet (vrij) beschikbaar.

### 2.3.3 *Het transport- en depositiemodel*

Voor het berekenen van de verspreiding en atmosferische depositie van de verschillende verontreinigende stoffen is gebruik gemaakt van het door het RIVM ontwikkelde verspreidings- en depositiemodel OPS (Operationeel model Prioritaire Stoffen)

#### *Het OPS model*

Het OPS berekent de concentratie van een stof in lucht en neerslag op een bepaalde plaats als gevolg van een emissie op een andere plaats. Voor de huidige studie is versie 3 van het OPS-model gebruikt (Van Jaarsveld, 1989, 1995). De bijdragen aan de concentratie en depositie op een bepaalde plaats waarvoor de berekening uitgevoerd wordt (receptor), worden voor alle bronnen afzonderlijk berekend met behulp van zogenaamde terugwaartse trajectorieën. Deze trajectorieën beschrijven de weg die de lucht (met daarin de geïmiteerde stof) afgelegd heeft vanaf bron tot aan de receptor. De verspreiding wordt berekend met een wiskundige beschrijving van een pluim, de zogenaamde *Gaussische* pluim formulering. Het ruimtelijk oplossend vermogen van het model wordt grotendeels bepaald door de resolutie van de gebruikte emissiebestanden. Rondom een individuele puntbron kan het oplossend vermogen in de orde van 100x100 m zijn, op landelijke schaal is 5x5 km een praktische ondergrens.

De benodigde invoergegevens worden besproken:

#### *Meteorologische gegevens*

Bij bovengenoemde berekeningen spelen meteorologische parameters zoals de windrichting en windsnelheid uiteraard een belangrijke rol. De hier gerapporteerde berekeningen zijn uitgevoerd op basis van de meteorologische gegevens voor het jaar 2000.

#### *Stofspecifieke gegevens*

Tijdens het transport door de atmosfeer kunnen stoffen worden afgebroken door reacties met ozon of hydroxylradicalen. Daarnaast treden verliezen op en daalt de concentratie door droge en natte depositie. Met de invloed van deze verliesprocessen wordt in het OPS rekening gehouden. Het OPS bevat stof-specifieke parameters voor een aantal stoffen. Zo zijn bijvoorbeeld de stof-specifieke depositie-snelheden gebruikt, zoals ze ook zijn gebruikt voor het berekenen van de droge depositie uit de metingen, afgeleid m.b.v. het model *SimpleBox* (Van der Meent, 1993) en het twee film model voor de depositie naar water (Liss and Slater, 1974) (paragraaf 2.2.1 en Bijlage I). Daarnaast wordt de natte depositie berekend met behulp van de zogenaamde washout coëfficiënt.

De afbraaksnelheid in lucht is voor de bestrijdingsmiddelen afgeleid m.b.v. het programma AOPWIN 1.88. (Atkinson, 1991) Dit programma berekent de omzettingssnelheid door hydroxyl (OH) radicalen op basis van structuurkenmerken van de stof.

### *De atmosferische depositie*

Met behulp van het verspreidingsmodel wordt uiteindelijk de concentratie boven de receptor en de depositie berekend. Daarbij wordt de bijdrage van alle bronnen gesommeerd. In bijlage II staan de parameters die in het kader van deze studie gehanteerd zijn voor het berekenen van de depositie van pesticiden.

Het model levert voor elk kaartvierkant van 5x5 kilometer de atmosferische depositie op. Verder kan met het model de relatie gelegd worden tussen bronnen en de depositie. Er kan een schatting worden gemaakt van de belasting van zo'n kaartvierkant, en de bijdrage van brongebieden (bijvoorbeeld andere provincies, stroomgebieden, buitenland) aan de depositie op dat kaartvierkant.





## 3. Resultaten

### 3.1 Inleiding

In dit hoofdstuk wordt achtereenvolgens besproken:

- de concentratie in lucht en in neerslag
- de belasting van oppervlaktewater
- de vergelijking van gemodelleerde depositie met gemeten depositie
- de bijdrage van verschillende brongebieden aan de belasting van waterbeheersgebieden
- de modellering van het effect van atmosferische belasting op concentraties in enkele typische watersystemen.

### 3.2 Concentraties in neerslag en lucht

#### 3.2.1 Kwaliteitsborging

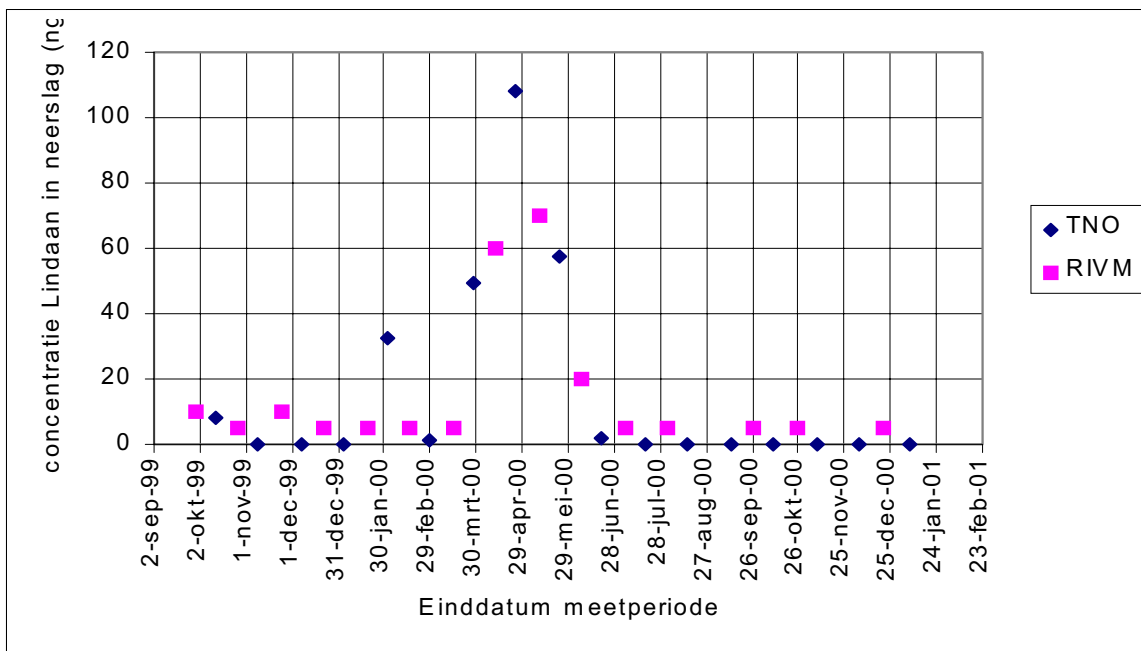
Hoe de kwaliteit van de monsterneming en de chemische analyse gedurende het programma wordt bewaakt is beschreven in Duyzer et al. (1999). Bij het vullen van de database met de analyse resultaten wordt daarom uitgegaan van een goede kwaliteit van de chemische analyse. Door specifieke problemen of artefacten tijdens de monsterneming kunnen echter nog fouten ontstaan. Na vulling van de database zijn overzichten gemaakt van het voorkomen van elke stof in lucht en in neerslag over de gehele database (zie hierna enkele voorbeelden). Deze overzichten zijn alle handmatig beoordeeld. Door het toepassen van deze procedure komen uitbijters en trendbreuken in gegevens snel aan het licht. Daarbij wordt rekening gehouden met het verwachte patroon van voorkomen van stoffen enzovoort.

In de voorbereidingsfase van het onderzoek is uitgebreid onderzoek uitgevoerd naar de kwaliteit van de analyse. De analyse van de monsters vond plaats met de GC-MS methode (zie Duyzer et al. 1999). Ondanks de identificatie op grond van specifieke massa's is er toch soms onzekerheid over de juistheid van de identificatie. Voor *azinphos-methyl*, *coumafos* en *metabenzthiazuron* bleek, dat de identificatie op basis van twee pieken in het massaspectrum niet voldoende uitsluitsel gaf, na controle van de identificatie bij een compleet massaspectrum. De analyseresultaten van deze stoffen zijn daarom niet in deze rapportage opgenomen.

Vergelijking met andere metingen zou nog aanvullende informatie over de kwaliteit van de meetresultaten kunnen geven. Het kan daarbij gaan om in de literatuur beschreven meetresultaten, of tegelijkertijd door anderen uitgevoerde metingen. In Nederland zijn echter de laatste jaren nauwelijks metingen van de nu gemeten stoffen uitgevoerd. De in dit onderzoek uitgevoerde metingen van de concentratie van PAK zijn in Duyzer (2000b) al vergeleken met door RIVM uitgevoerde metingen. Daaruit bleek, dat de in het huidige onderzoek aangetroffen verhouding tussen de concentraties van de verschillende PAK goed overeenkwam met de door RIVM eerder gevonden verdeling. In Duyzer en Vonk (2001) is een nog een aantal vergelijkingen uitgevoerd met metingen die zijn uitgevoerd in het jaar 1998 in de provincie Zuid-Holland (Van Zalinge, 2001) en metingen uit een eerdere TNO studie in 1996 op meetlocaties de Zilk en Noordwijk.

Verder wordt door het RIVM nog een beperkt aantal metingen uitgevoerd van stoffen (waaronder *lindaan*) op de meetlocatie de Zilk van het landelijk Meetnet Luchtkwaliteit. Figuur 4 toont de vergelijking van de meetresultaten van het RIVM en TNO. Ondanks de verschillende midde-

lingperiodes komen het verloop in de tijd en de maximum waarden komen redelijk overeen. De overeenkomst is redelijk goed te noemen. Belangrijk onderscheid tussen de beide resultaten is de behandeling van de monsters waarin lindaan niet wordt aangetroffen. Bij de RIVM monsters worden concentraties beneden de detectiegrens gerapporteerd met een waarde. Bij de TNO monsters worden alle positieve identificaties gerapporteerd. Deze verschillen in de werkwijze leiden tot het schijnbaar systematische verschil in de resultaten in de winterperiode.



Figuur 4 Vergelijking van gemeten concentraties van Lindaan in neerslagmonsters van het RIVM- meetstation de Zilk.

### 3.2.2 Verdeling over de fasen

Zoals hiervoor vermeld zullen stoffen in lucht zich verdelen over de gasfase en de deeltjesfase (zwevend stof of aërosol) afhankelijk van hun dampspanning en de concentratie van deeltjes. Deze verdeling bepaald hoe de stof zich in de atmosfeer gedraagt. Voor de modellering van de verspreiding door de lucht en de depositie is het daarom belangrijk hoe een stof is verdeeld over deze twee fasen. De verdeling van de PAK en PCB's tussen de gasfase en de aërosolfase en het voorkomen van stoffen in de lucht dan wel in de neerslag kan goed worden verklaard op basis van theoretische overwegingen. Voor de pesticiden is de overeenkomst tussen de theoretische en waargenomen verdelingen slecht te noemen. Naar een verklaring voor deze afwijking is geen uitgebreid onderzoek gedaan. Waarschijnlijk spelen de kwaliteit van de, in de vergelijking gebruikte, parameters, zoals de dampspanning en de Henry-coëfficiënt, de kennis over de snelheid waarmee het evenwicht tussen gasfase en deeltjesfase zich instelt in relatie tot de transportafstand door de atmosfeer evenals meetartefacten die samenhangen met de detectiegrens hierbij een rol.

De fractie van een stof die in neerslag wordt opgenomen hangt ook af van allerlei fysische parameters zoals de dampspanning en de oplosbaarheid in de neerslag. Voor PAK en PCB's was de overeenkomst tussen de verwachte verhouding tussen de concentratie in neerslag en die in lucht, enerzijds en de waargenomen verhouding anderzijds, goed. Voor de groep pesticiden kwamen deze verhoudingen totaal niet overeen.

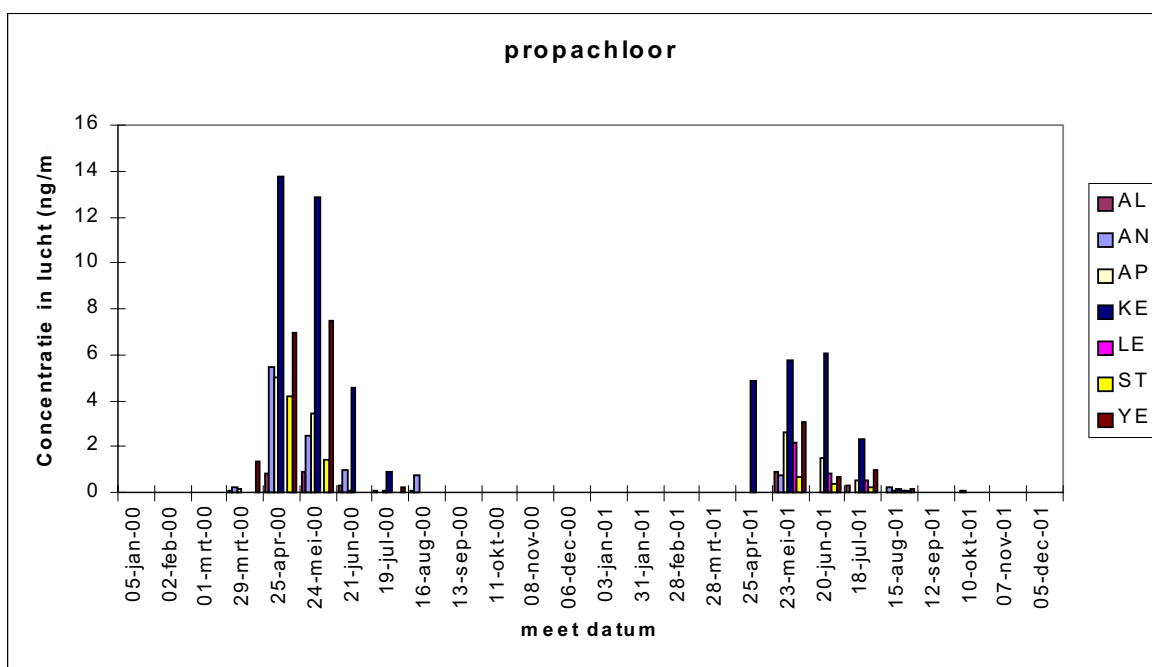
In Duyzer en Vonk (2001) is uitgebreid ingegaan op de verdeling van stoffen over de gas en aërosolfase en de verhouding tussen de concentratie in lucht en die in neerslag.

### 3.2.3 Concentratie verloop gedurende de meetperiode

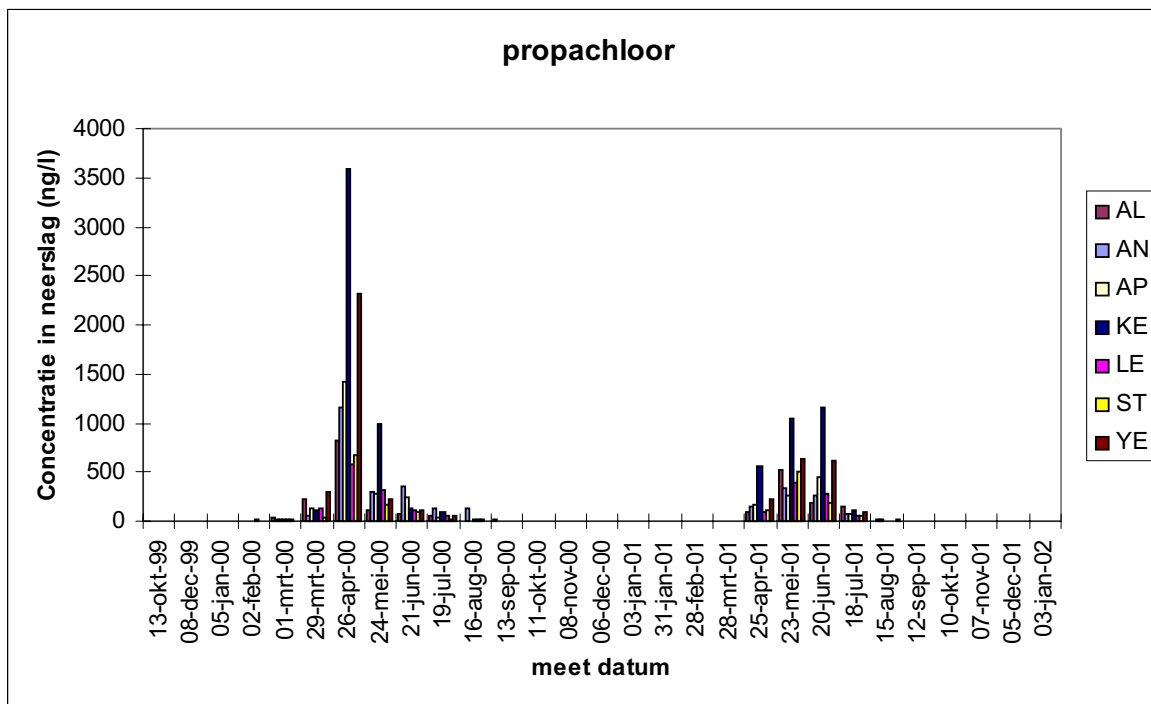
Figuur 5 tot en met Figuur 12 laten voor een aantal pesticiden, waarop regelgeving van toepassing is, het concentratieverloop over de jaren 2000 en 2001 zien. De figuren illustreren verschillen in periodes van toepassing van de pesticiden: een aantal wordt slechts in een aantal maanden gebruikt in het voorjaar. Voorbeelden hiervan zijn *propachloor* en *metolachloor*. Er zijn ook pesticiden, zoals *trifluralin*, die juist in het najaar en in de winter worden gebruikt. Een aantal pesticiden zoals *DNOC* en *dichlobenil* wordt het hele jaar door gebruikt en dientengevolge ook in lucht- en neerslagmonsters aangetoond.

#### Toepassing in het voorjaar

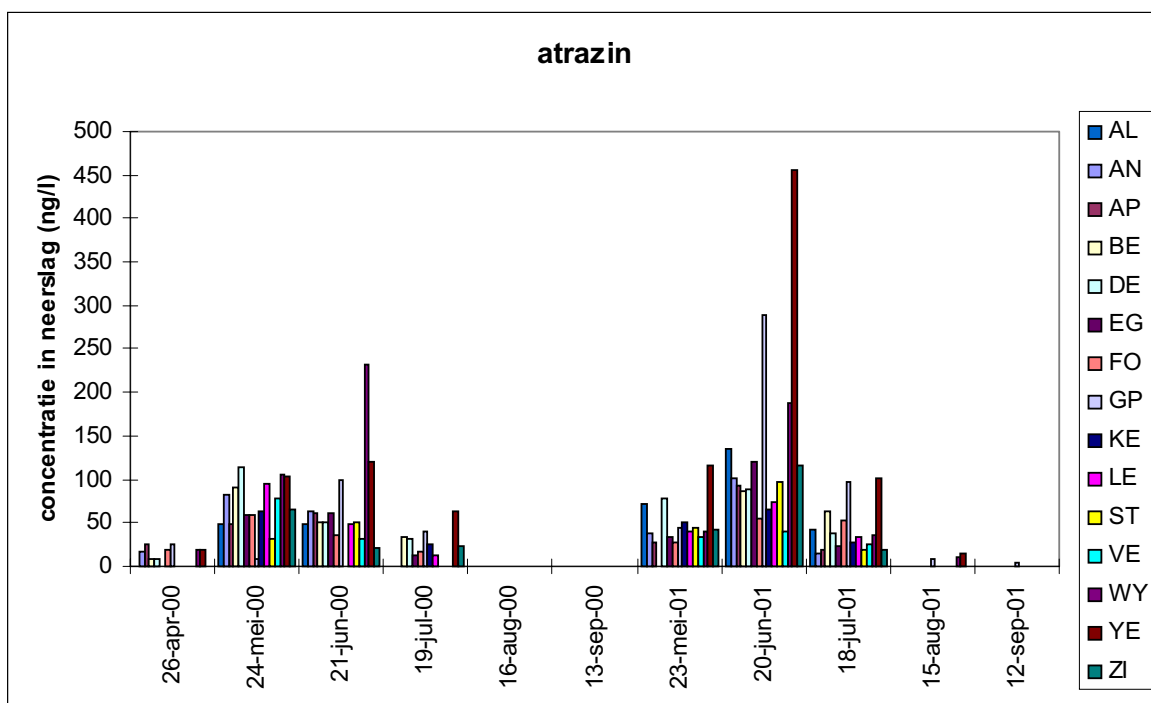
*Propachloor* is een herbicide waarvan de toelating sinds augustus 2001 is vervallen. Het is zeer persistent in water en is giftig voor vissen. Het werd nog slechts voor een aantal toepassingen toegelaten als landbouwkundig onmisbare stof, voornamelijk in de uienteelt. Figuur 5 en Figuur 5 laten de concentraties in lucht en neerslag zien voor een aantal stations waar *propachloor* het meeste werd aangetroffen. De concentraties zijn in het jaar 2001 al duidelijk afgenomen. Piekkoncentraties zijn gedaald. *Propachloor* kwam zowel in 2000 als 2001 in ongeveer 20% van de neerslagmonsters voor, in concentraties boven de drinkwaternorm van 100 ng/l.



Figuur 5 Het verloop van de concentratie van propachloor in lucht voor de verschillende stations in 2000 en 2001.



Figuur 6 Het verloop van de concentratie van propachloor in neerslag voor de verschillende stations in 2000 en 2001.



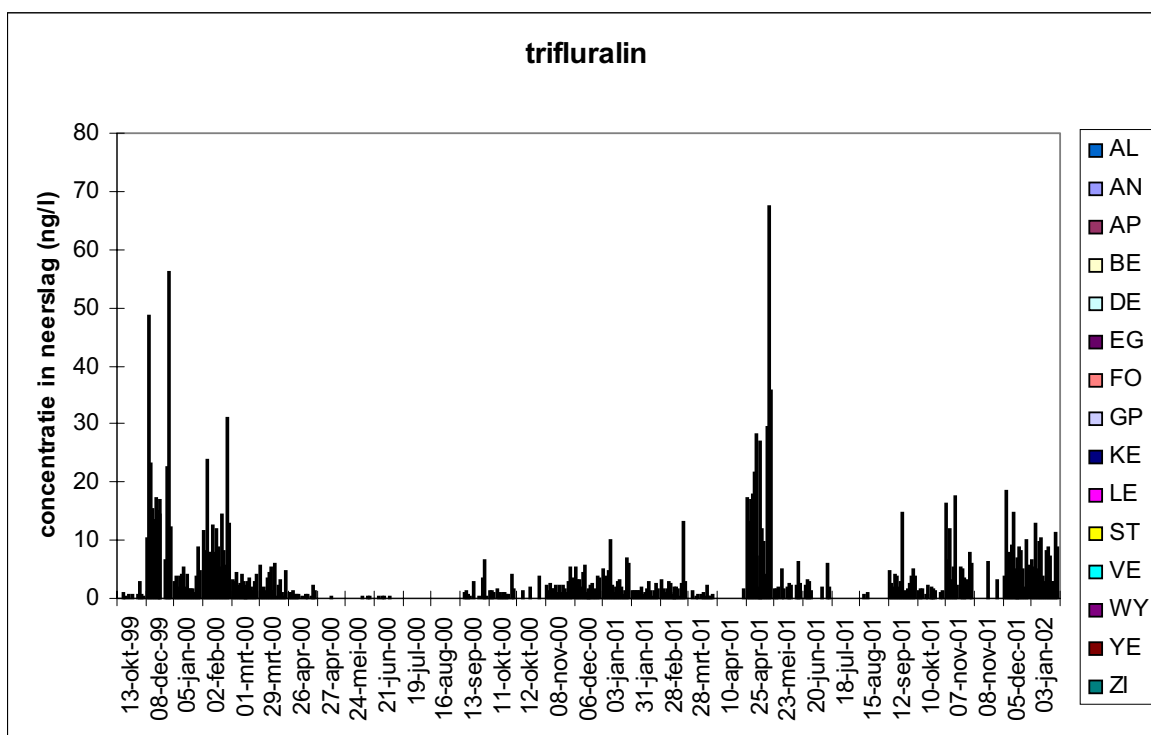
Figuur 7 Het verloop van de concentratie van atrazin in neerslag voor de verschillende stations in 2000 en 2001.

*Atrazin* (Figuur 7) is een herbicide waarvan de toelating in 1999 is vervallen, vanwege de persistentie en uitspoelingsgevoeligheid van de stof. Het komt nog steeds veel voor in neerslagmonsters, in de periode van april tot en met september. De hoogste concentraties worden in 2001 wederom in het Zuiden van het land gevonden: Wynandsrade, Yerseke en de Groote Peel. Het lijkt dus afkomstig te zijn uit België en Frankrijk, waar het middel niet verboden is. België heeft veel zandgrond, waarop maïs wordt geteeld. In die teelt wordt veel

veel zandgrond, waarop maïs wordt geteeld. In die teelt wordt veel *atrazin* gebruikt. De stof is, net als in het jaar 2000, zeer weinig in lucht aangetroffen.

*Toepassing in het najaar*

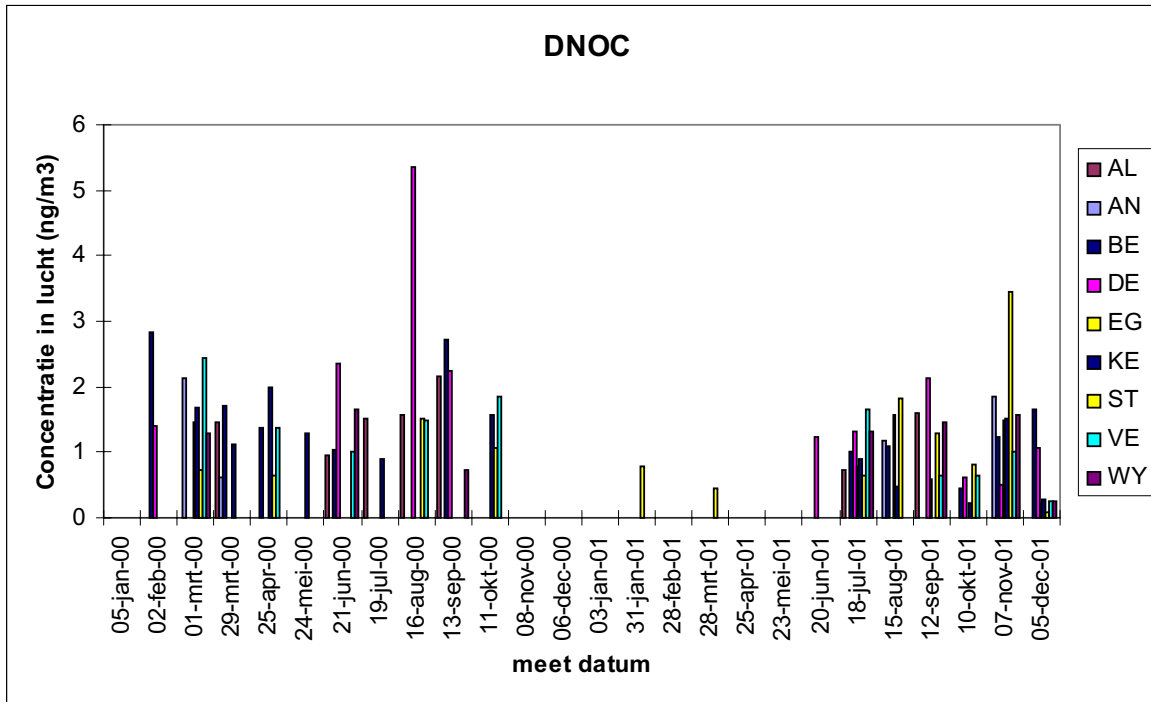
*Trifluralin* (Figuur 7) wordt toegepast als herbicide in wintergranen. In Nederland is het sinds 1999 niet meer toegelaten. *Trifluralin* is vrij persistent in de bodem. Het concentratieverloop voor *trifluralin* is in overeenstemming met het gebruik van de stof van september tot december: hoge concentraties worden in de winter gevonden. Er is echter ook een gebruikspiek te zien van april tot en met juni in 2001, waarin een gradiënt van Zuid naar Noord Nederland zichtbaar is (hoog in Yerseke, Wynandsrade, Groote Peel, Egmond, en de Zilk, laag in de noordelijke provincies, waar toch veel wintergranen worden verbouwd). De aanwezigheid van *trifluralin* in neerslagmonsters wordt waarschijnlijk veroorzaakt door emissies in het buitenland, die naar Nederland zijn getransporteerd via de lucht.



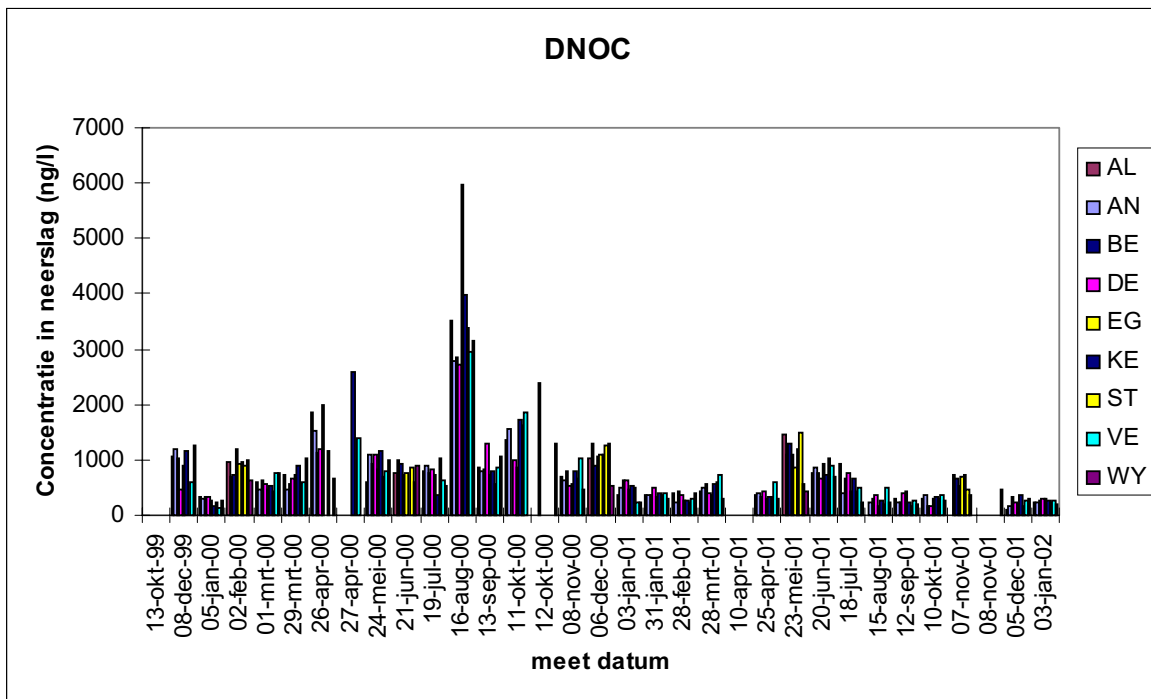
Figuur 8 Het concentratieverloop van trifluralin in neerslag voor alle stations van eind 1999 tot en met 2001.

*Stoffen die gedurende het hele jaar worden toegepast*

*DNOC* is een stof waarvan de toelating in de loop van het jaar 2000 is vervallen. Het werd toegepast als loofdoder en herbicide, gedurende het hele jaar.

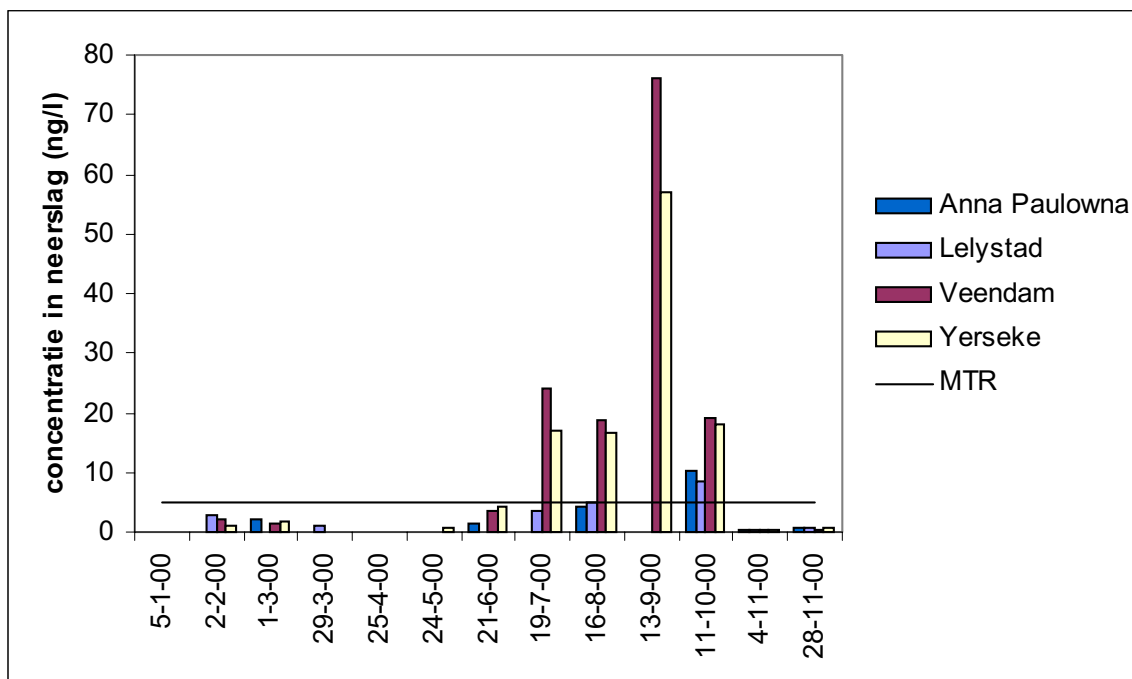


Figuur 9 Het verloop van de concentratie van DNOC in lucht voor de verschillende stations in 2000 en 2001.



Figuur 10 Het verloop van de concentratie van DNOC in neerslag voor de verschillende stations in 2000 en 2001.

*DNOC* is verboden vanwege de gevoeligheid voor uitspoeling naar het grondwater. Figuur 9 laat een dalende verloop zien in de concentraties in neerslag. Dit verloop is niet goed zichtbaar in de concentraties in luchtmonsters (Figuur 8). *DNOC* werd op alle stations nog wel zeer regelmatig aangetroffen. Gemiddeld over het jaar en over alle stations zijn de concentraties in neerslag ongeveer gehalveerd in de periode van 2000 tot 2001. Het concentratieniveau ligt echter nog steeds boven de drinkwaternorm van 100 ng/l.

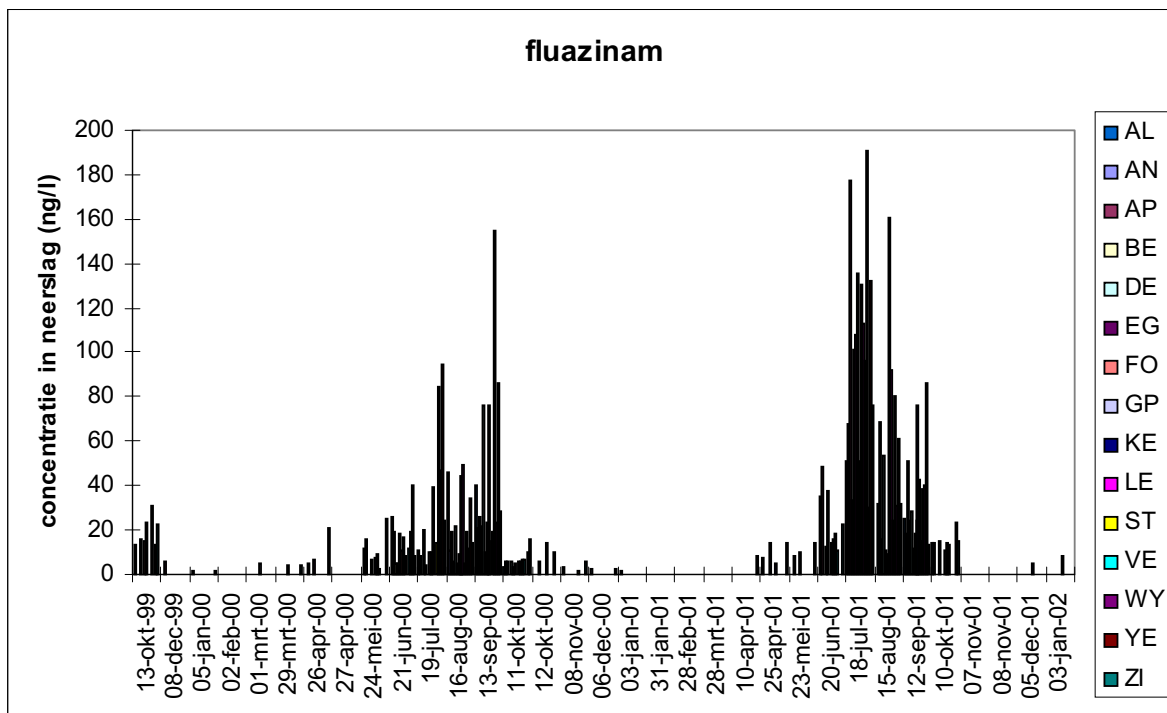


Figuur 11 Het verloop van de concentratie van trifenylytin in neerslag voor de vier stations in 2000, en het MTR voor oppervlaktewater (ng/l).

Van de tinverbindingen werd *trifenylytin* in het jaar 2000 regelmatig in neerslag aangetroffen (Figuur 11). Op alle locaties werd het MTR voor oppervlaktewater overschreden. *Trifenylytin* werd gebruikt als fungicide in de aardappelteelt. De hoogste waarden werden aangetroffen in Yerseke en Veendam, waar deze teelt belangrijk is.

Naast stoffen waarvoor regelgeving geldig is, zijn er nog andere interessante stoffen die hier worden behandeld. Een stof die steeds populairder wordt door het wegvallen van andere middelen is *fluazinam*. *Fluazinam* (Figuur 12) is matig afbreekbaar, tot persistent in de grond, maar afbreekbaar in water. Het is een fungicide dat wordt gebruikt voor het behandelen van plantgoed (dompelen), in de aardappelteelt en in het veld in de bollenteelt. Deze stof kwam in het jaar 2000 al voor in neerslag boven de drinkwaternorm; in 2001 is het aantal monsters boven de drinkwaternorm gestegen naar ruim 4%. Het werd in hoge concentraties aangetroffen in lucht en neerslagmonsters op de meetlocaties Veendam, Ketelhaven, Anna Paulowna, Yerseke en Wynandsrade.





Figuur 12 Het concentratieverloop van fluazinam in neerslag voor de verschillende stations in de jaren 2000 en 2001.

Stoffen die wat concentratieverloop in neerslag betreft lijken op *fluazinam* zijn *ethofumesaat* en *terbutylazine*.

*Ethofumesaat* is een herbicide dat wordt gebruikt tegen eenjarige onkruiden in vollegrondsgroente (bieten) en in grasland. De stof werd in het jaar 2000 op vier locaties bepaald en in 2001 op alle 18 locaties. Vergeleken met het jaar 2000 is de concentratie op de vier locaties in 2001 toegenomen. *Ethofumesaat* werd in concentraties boven de drinkwaternorm in neerslag aangetroffen in Yerseke, Wynandsrade en Ketelhaven.

In suiker- en voederbieten wordt *ethofumesaat* toegepast van maart tot mei, voor raaigras in het voor- of najaar, voor grasland in het najaar. In de metingen in het jaar 2000 zijn alleen pieken te zien in april tot juni. In 2001 wordt op meetstations Aalsmeer in november een maximum concentratie van ruim boven de drinkwaterlimiet gevonden.

*Terbutylazin* is een stof die als herbicide in de teelt van aardappelen en erwten wordt gebruikt. De stof is persistent in de bodem, en zeer persistent in natuurlijk water. *Terbutylazin* staat op de saneringslijst van het MJP-G. Tenminste één omzettingsproducten kan uitspoelen naar het grondwater. De concentratie in neerslag is in 2001 gestegen. Ook het aantal keren dat de norm voor drinkwater wordt overschreden is gestegen.

#### *Polaire pesticiden*

In het voorjaar van het jaar 2000 werden enkele neerslagmonsters aangeboden aan Omegan voor onderzoek naar de concentratie van polaire pesticiden. Daarbij was de beperkte hoeveelheid monster soms een probleem. Alleen *isoproturon* werd regelmatig aangetroffen. De concentratie van *isoproturon* overschreed daarbij in Wijnandsrade enkele malen de norm voor drinkwater. Ook *diuron*, *pencycuron*, *metoxuron* en *metabromuron* werden enkele malen aangetroffen. *Carbendazim* kon niet worden aangetoond. Bijlage VIII geeft een overzicht van de analysesresultaten.

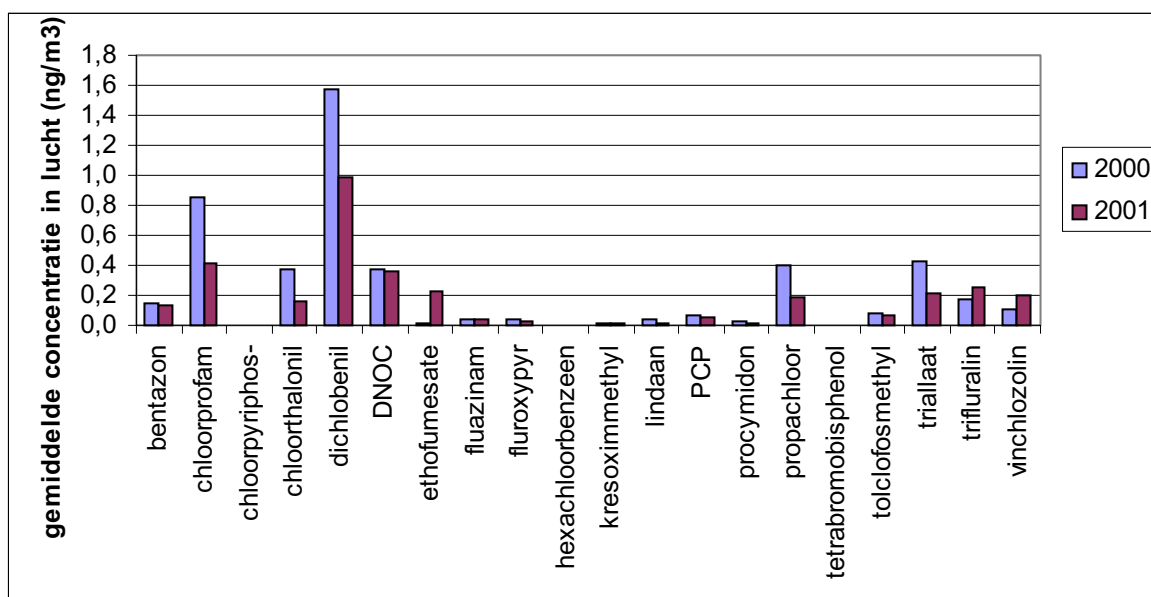
### 3.2.4 Gemiddelde concentraties in lucht

Ongeveer 50 verschillende pesticiden, 18 PAK en zeven PCB's konden worden aangetoond in lucht. De landelijk gemiddelde concentraties, percentages waarin de stoffen werden aangetoond en de gemiddelde concentraties van de monsters, waarin de stoffen werden aangetroffen in de jaren 2000 en 2001 in lucht, worden gegeven in Bijlage II.

*Aldrin, 2,4-D, diazinon, deltametrin, dicofol, disulfoton, fenitrothion, fenthion, fosfamidon, heptenefos, metamitron, methomyl, parathion-methyl, en triadimenol* konden niet in lucht worden aangetoond.

In het jaar 2001 werden *bentazon, captan, ethofumesaat* en *pentachloorbenzeen* vaker in lucht aangetroffen dan in het jaar 2000. Stoffen die in 2001 aanzienlijk minder zijn aangetroffen in lucht, ten opzichte van 2000 zijn: *hexachloorbenzeen, lindaan* en *procymidon*.

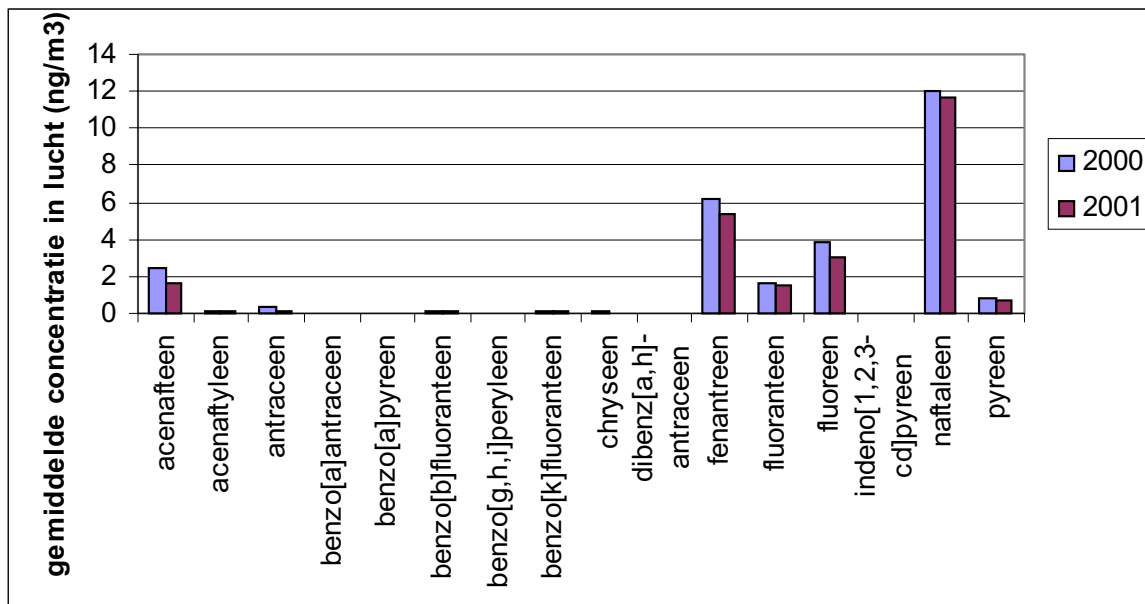
Figuur 13 laat de gemiddelde concentraties zien van pesticiden die regelmatig in luchtmonsters zijn aangetroffen.



Figuur 13 Jaargemiddelde concentratie van pesticiden in luchtmonsters, van stoffen die regelmatig werden aangetroffen.

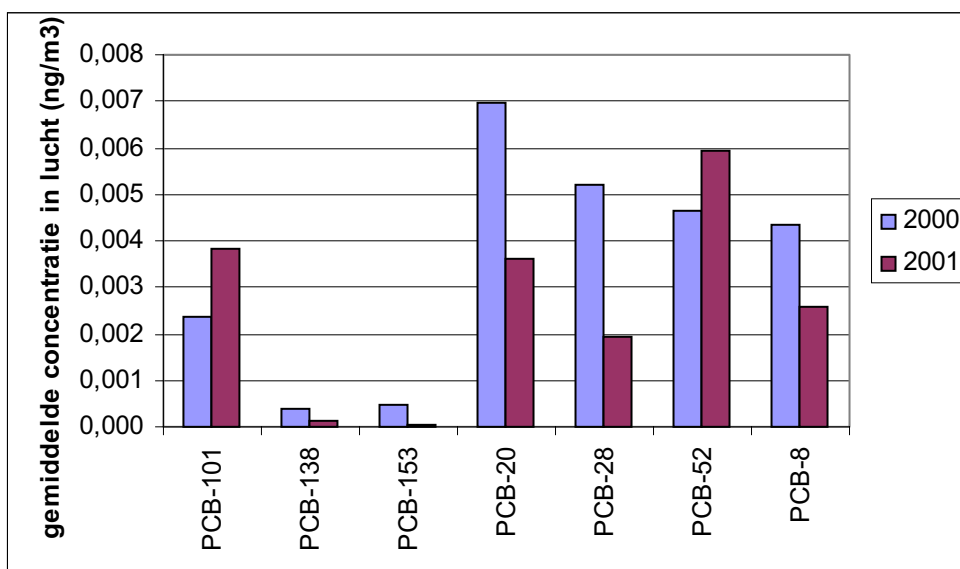
De figuur laat voor de meeste herbiciden een daling in concentratie zien in 2001, waarbij *chloorprofam, dichlobenil* en *propachloor* de grootste daling vertonen. De concentratie van het herbicide *ethofumesaat* is sterk gestegen in 2001. De concentraties van de fungiciden *chloorthalonil* en *procymidon* zijn gedaald in 2001, de concentratie van *vinchlozolin* is gestegen in 2001; *chloorthalonil* en *vinchlozolin* zijn in 2001 op alle achttien locaties bepaald, zodat de gemiddelde concentraties niet rechtstreeks te vergelijken zijn tussen beide jaren. Verder valt het op dat slechts één insecticide, *lindaan*, regelmatig in lucht is aangetroffen. De verklaring voor dit verschijnsel is waarschijnlijk dat insecticiden in kleinere hoeveelheden worden toegepast dan herbiciden en fungiciden.

Het percentage van monsters waarin de PAK in lucht zijn aangetoond is voor beide jaren globaal hetzelfde. Slechts *benzo[a]-antraceen, chryseen* en *dibenz[a,h]-antraceen* zijn in 2001 minder vaak aangetroffen. De concentraties in lucht zijn voor de PAK voor beide jaren vergelijkbaar (Figuur 14).



Figuur 14 Jaargemiddelde concentratie van PAK in luchtmonsters in de jaren 2000 en 2001.

Het percentage van PCB's dat is aangetroffen in luchtmonsters is in 2001 gedaald ten opzichte van het jaar 2000 (Figuur 15) Het gaat vooral om de PCB's 138, 153, 28 en 8. PCB-180 is niet meer aangetoond. Deze verschillen worden waarschijnlijk mede veroorzaakt door een noodzakelijke wijziging in de analytische werkwijze waardoor de detectiegrens wijzigde. De concentraties in de luchtmonsters in 2001 zijn verder vergelijkbaar met de concentraties in het jaar 2000.



Figuur 15 Jaargemiddelde concentratie van PCB's in luchtmonsters in de jaren 2000 en 2001.

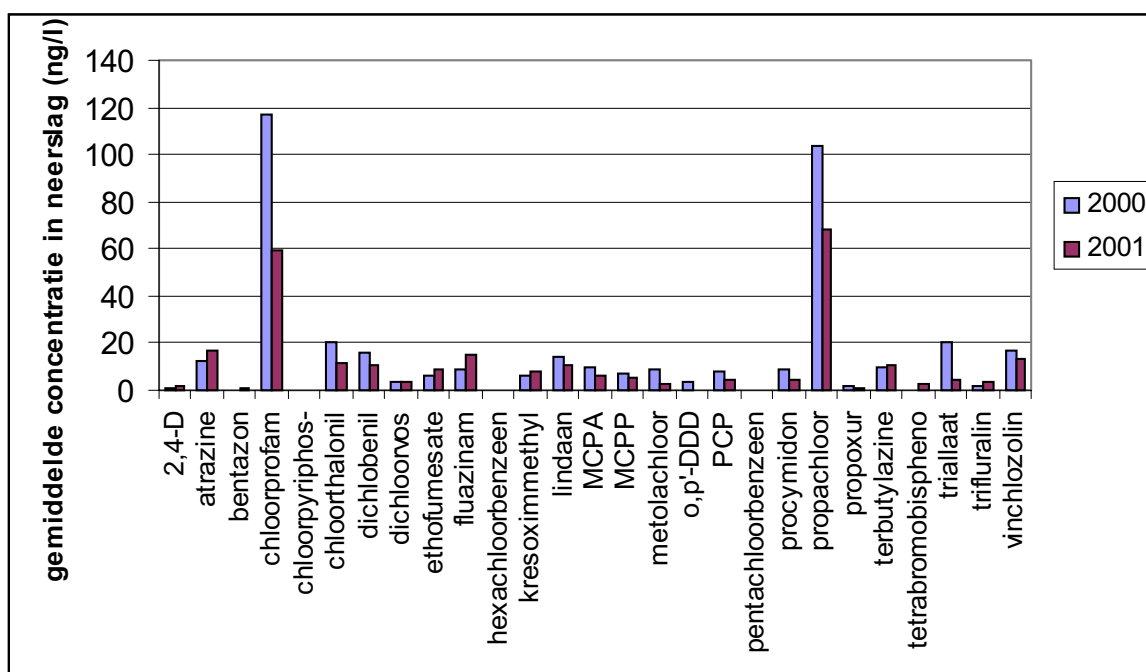
Het blijkt dat de concentraties van de pesticiden meer variëren tussen beide jaren dan de concentraties van de PCB en PAK. Dit wordt wellicht veroorzaakt door verschillen in gebruik, en dus emissie, van de pesticiden in de beide jaren, terwijl de emissie van PAK en PCB niet veel is veranderd.

### 3.2.5 Gemiddelde concentraties in neerslag

#### Pesticiden

De concentraties van pesticiden in neerslag zijn weergegeven in Bijlage II. Ongeveer 50 pesticiden konden in neerslag worden aangetoond. Aldrin, biteranol, deltametrin, dicofol, disulfoton, endrin, fosfamidon, heptachloor, heptachloor-epoxide, heptenefos, methomyl o,p-DDE, telodrin, triadimenol en triazofos konden niet in neerslag worden aangetoond.

Figuur 16 laat de jaargemiddelde concentraties van die pesticiden zien, die in meer dan tien procent van de neerslagmonsters zijn aangetroffen.



Figuur 16 Jaargemiddelde concentratie van pesticiden in neerslag, over alle meetstations.

Opvallend is weer het grote aantal herbiciden en fungiciden in deze figuur. De concentraties van de meeste herbiciden en fungiciden zijn in 2001 gedaald met ongeveer een factor twee, bijvoorbeeld DNOC, chloorprofam en propachloor. Uitzonderingen zijn ethofumesaat (H), terbutylazine (H) en fluazinam (F), waarvan de concentratie is gestegen in 2001. Ook herbicides die in Nederland niet meer zijn toegelaten, atrazine en trifluralin, stegen in concentratie in 2001.

#### Vergelijking met normconcentraties

Voor de meeste stoffen in het onderzoek bestaat geen kwaliteitsnorm voor concentraties in lucht of neerslag. Alleen voor benzo[a]pyreen is een kwaliteitsnorm voor buitenlucht afgeleid. Deze waarde van 1 ng/m<sup>3</sup> werd niet overschreden. Teneinde enig inzicht in de hoogte van de gevonden concentratie, zijn de concentraties van pesticiden in neerslag vergeleken met het Maximaal Toelaatbaar Risico niveau (MTR) voor oppervlaktewater (Tabel 4) Deze waarde heeft formeel geen betekenis voor neerslag, maar geeft een eerste indruk van de mogelijke toxiciteit van de waargenomen concentratie. In watersystemen die alleen door neerslag worden gevoed zou de concentratie kunnen oplopen tot die in neerslag. Verliesprocessen in het oppervlaktewater en verdunning zullen er doorgaans toe leiden dat de concentratie in het oppervlaktewater nooit het niveau bereikt. Aan de andere kant kan de invoer via neerslag niet snel tot MTR overschrijding leiden wanneer de concentratie in de neerslag onder het MTR niveau ligt.

Een andere waterkwaliteitsnorm is die voor de bereiding van drinkwater. Deze heeft ook geen formele betekenis voor neerslag maar geeft opnieuw een indicatie. In Tabel 5 staan de pesticiden die de drinkwaternorm hebben overschreden.

Ook stoffen die niet meer zijn toegelaten, bijvoorbeeld wegens hoge persistentie, of toxiciteit, kunnen nog in neerslag (en lucht) worden aangetroffen (Tabel 6).

De concentratie in neerslag van achttien verschillende pesticiden overschreed één of meerdere keren het MTR-niveau voor oppervlaktewater. Het betrof zeven insecticiden, vier herbiciden, vier fungiciden en twee stoffen die als insecticide/acaricide gebruikt worden (Tabel 4) Daarnaast werd *methiocarb*, een stof met een brede toepassing, boven het MTR aangetroffen. Ook *trifenylytin* een stof die slechts op vier locaties werd bepaald overschreed regelmatig het MTR niveau. *Dichloorvos* werd zowel in 2000 als in 2001 uitsluitend boven het MTR aangetroffen. Het aantal monsters waarin de stof werd aangetroffen is in 2001 gestegen. Stoffen die alleen in 2001 boven het MTR kwamen zijn *methiocarb*, *pirimifos-methyl*, *terbutylazin* en *trifluralin*. *Pirimifos-methyl* werd alleen in 2001 bepaald.

Tabel 4 MTR overschrijdende stoffen in neerslag, met het percentage maand-monsters dat het MTR overschrijdt, de maximale MTR overschrijding en de toepassing.

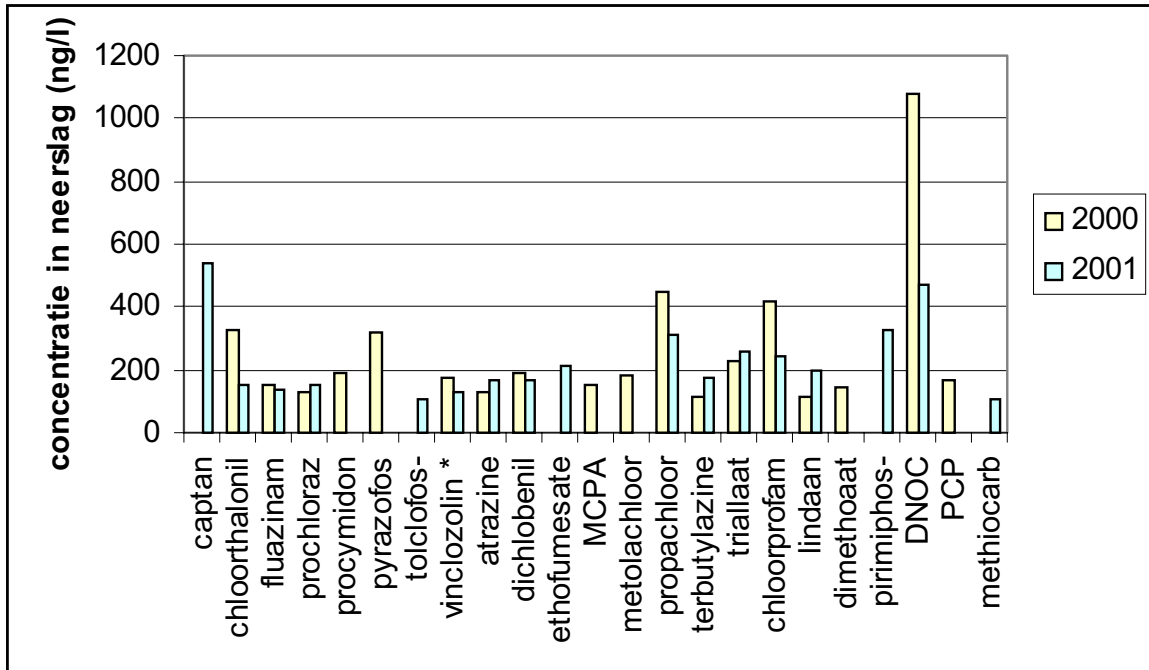
Stof	Toepassing	MTR	%>MTR	% > MTR	Maximum MTR overschrijding (x MTR) 2000	Maximum MTR overschrijding (x MTR) 2001
		ng/l	2000	2001		
captan	F	110	0	1	0	9
chloorfenvinfos	I	2	1	1	11	18
chloorpyriphos-methyl	I	3	2	0	2	0
chloorthalonil *	F	10	51	24	32	26
diazinon	I	37	0,4	0	1	0
dichloorvos	I	0,7	21	29	88	69
endosulfan I	I/A	20	0,4	0,4	1	2
parathion-ethyl	I	2	1	0	12	0
methiocarb	Breed	16	-	7	-	6
metolachloor	H	200	0,4	0	1	0
mevinfos	I	2	2	3	7	5
propachloor	H	1300	1	0	3	0
pirimifos-methyl	I/A	2	-	4	-	498
propoxur	I	10	3	2	7	2
pyrazofos	F	40	0,4	0	8	0
terbutylazin*	H	190	0	0,4	0	2
trifluralin	H	38	0	0,4	0	2

\* aantal locaties in 2001 verhoogd van 4 naar 18

I: insecticide A: acaricide H: herbicide F: fungicide

In de jaren 2000 en 2001 overschreden tweeëntwintig pesticiden de drinkwaternorm, waaronder acht fungiciden, tien herbiciden twee insecticiden en twee stoffen die als insecticide en acaricide worden gebruikt (Figuur 17, Tabel 5) Bij de fungiciden kwam *procymidon*, die in 2000 nog opviel vanwege de hoogte van de overschrijding, in 2001 nog uitsluitend onder de drinkwaternorm voor in neerslag. Zeven herbiciden overschreden de drinkwaternorm; *MCPA* en *metolachloor* kwamen in 2001 niet meer boven de drinkwaternorm voor. De overschrijding van *chloorprofam*, die in het jaar 2000 opviel, is nu sterk gereduceerd in het aantal keren dat de stof werd aangetroffen en het concentratieniveau. Van de insecticiden kwam *dimethoaat* niet meer boven de norm, terwijl *pirimifos-methyl* in 2001 wel boven de norm voorkwam. Breed inzetbare

stoffen als *DNOC* en *methiocarb* kwamen ook in 2001 boven de norm, waarbij het concentratieniveau van het verboden *DNOC* was gehalveerd. *DNOC* overschreed ook in 2001 in bijna alle neerslagmonsters de drinkwaternorm!



Figuur 17 Gemiddelde concentraties van pesticiden die de drinkwaternorm van 100 ng/l hebben overschreden. Het gemiddelde is bepaald uit de monsters die de norm overschreden.

Tabel 5 Stoffen die de drinkwaternorm in neerslag overschrijden (100 ng/l), met het percentage monsters dat de norm overschrijdt, en de gemiddelde concentratie in die monsters.

Stof	% monsters > drinkwater norm 2000	% monsters > drinkwater norm 2001	Gemiddeld > drinkwater norm (ng/l) 2000	Gemiddeld > drinkwater norm (ng/l) 2001
<b>Fungiciden</b>				
captan	0	1,3	0	537
chloorthalonil *	2,6	1,8	325	149
fluazinam	0,4	4,4	155	136
prochloraz	0,4	0,4	126	152
procymidon	0,9	0	193	0
pyrazofos	0,4	0	320	0
tolclofos-methyl	0	0,4	0	105
vinchlozolin *	2,6	1,3	174	131
<b>Herbiciden</b>				
atrazin	2,6	4,8	130	166
dichlobenil	1,3	0,4	191	167
ethofumesaat	0	1,8	0	215
MCPA	0,4	0	155	0
metolachloor	1,8	0	183	0
propachloor	21,1	19,3	446	312
terbutylazine *	5,3	2,6	115	173
triallaat	2,2	0,4	226	260
chloorprofam	22,8	14,5	419	245
<b>Insecticiden</b>				
lindaan	3,9	1,3	117	196
dimethoaat	1,8	-	144	-
pirimifos-methyl	-	3,1	-	328
<b>Overig</b>				
DNOC	99,6	98,2	1075	471
PCP	0,4	0	165	0
methiocarb	0	0,9	0	103

\* aantal locaties in 2001 verhoogd van 4 naar 18

- niet bepaald

*Atrazin, DNOC, propachloor, trifluralin* en *mevinfos* werden, ondanks het vervallen van de toelating in Nederland in 2000, aangetroffen in neerslag. Tabel 6 geeft een overzicht van de concentratie en de frequentie van voorkomen van deze stoffen.

Tabel 6 Stoffen die in 2001 niet meer zijn toegelaten. De tabel laat zien wat de toepassing van de stof is, welk percentage van de neerslagmonsters de detectie-limiet overschrijdt en de gemiddelde concentratie in het jaar 2000 en 2001.

Stof	toelating	gebruik	% > DL	% > DL	Concentrat	Concentrat
In neerslag	vervaller		2000	2001	2000	2001
	in het jaa				(ng/l)	(ng/l)
atrazin	1999	H	21	24	12	16
DNOC	2000	B	98	98	1061	463
endosulfan II		I/A	0	0	1,5	0,05
propachloor	2000	H	41	35	104	68
trifluralin	1999	H	27	44	2,2	3,7
mevinfos	2000	I	0	1	0,2	0,1

I: insecticide A: acaricide H: herbicide F: fungicide

De concentratie van *atrazin* (Figuur 7) en *trifluralin* (Figuur 8) nam in 2001 zelfs licht toe. Het voorkomen van beide herbiciden in lucht en neerslag in Nederland suggereert een bijdrage vanuit het buitenland.

Van een aantal pesticiden, die een tijdelijke toelating hadden vanwege hun landbouwkundige onmisbaarheid, is de toelating in de loop van 2001 vervallen. Het betreft de stoffen *carbaryl*, *carbofuran*, *chloorpyrifos*, *chloridazon*, *dichloorvos*, *fenbutatinoxide*, *parathion-ethyl*, *penconazool*, *pirimifos-methyl* en *simazin*.

Tabel 7 Stoffen die in de loop van 2001 niet meer zijn toegelaten. De tabel laat zien wat de toepassing van de stof is, welk percentage van de neerslagmonsters de detectie-limiet overschrijdt en wat de gemiddelde concentraties de jaren 2000 en 2001 waren.

Stof In neerslag	toelating vervallen in het jaar	gebruik	% > DL 2000	% > DL 2001	Concentratie 2000 (ng/l)	Concentratie 2001 (ng/l)
chloorthalonil <sup>1</sup>	2001	F	54	36	20	11
chloorpyrifos <sup>2</sup>	2001	I	2	0	0,4	0,2
diazinon	2001	I	0,4	0	1	0,3
dichloorvos <sup>2,3</sup>	2001	I	0,4	10	4	3
lindaan <sup>4</sup>	2001	I	14	6	14	11
mecoprop	2001	H	2	5	7	6
pirimifos-methyl <sup>2</sup>	2001	I/A	-	4	-	10,3
pyrazofos	2001	F	0,4	-	2	0
simazin <sup>2</sup>	2001	H	1	1	1	1
triallaat	2001	H	68	10	21	4,4

- niet bepaald

I: insecticide A: acaricide H: herbicide F: fungicide

<sup>1</sup> afwisselend wel/niet verboden.

<sup>2</sup> stoffen die de status 'landbouwkundig onmisbaar' hadden

<sup>3</sup> wel toegelaten voor veterinair gebruik als insecticide

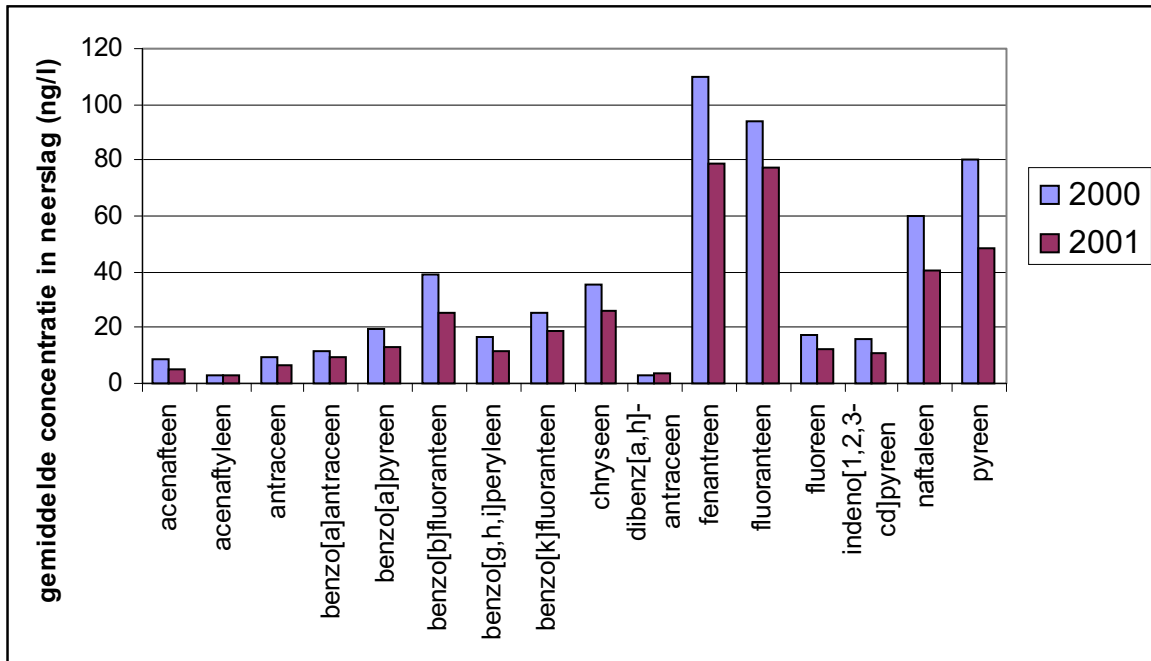
<sup>4</sup> stof is sinds 1990 alleen nog toegestaan als zaadbehandelingsmiddel.

### PAK

De concentraties van PAK in 2001 zijn iets lager dan in het jaar 2000. Concentraties van *benzo[a]pyreen*, *benzo[b]fluoranteen*, *chryseen* en *pyreen* zijn aanzienlijk gedaald. De stoffen *acenaftyleen* en *dibenz[a,h]-antraceen*, zijn in 2001 vaker aangetroffen in neerslag (Bijlage II). Figuur 18 toont de jaargemiddelde concentraties van PAK in neerslag, voor 2000 en 2001. De concentratie van vijf PAK overschreed enkele keren het MTR voor oppervlaktewater.

Opvallend hoge concentraties werden aangetroffen voor *fenantreen*, *fluoranteen* en *pyreen*. In het jaar 2000 was de som van de concentraties van de Borneff-PAK in neerslag gemiddeld hoger dan de norm van 200 ng/l voor drinkwater (210 ng/l). In 2001 was de concentratie zo'n 25% lager dan deze waarde. *Benzo[a]pyreen*, *benzo[b]fluoranteen*, *benzo[k]fluoranteen*, *indeno[1,2,3-cd]pyreen* en *fluoranteen* overschreden in 2000 afzonderlijk deze waarde in neerslagmonsters. In 2001 overschreed alleen *fluoranteen* afzonderlijk de norm.

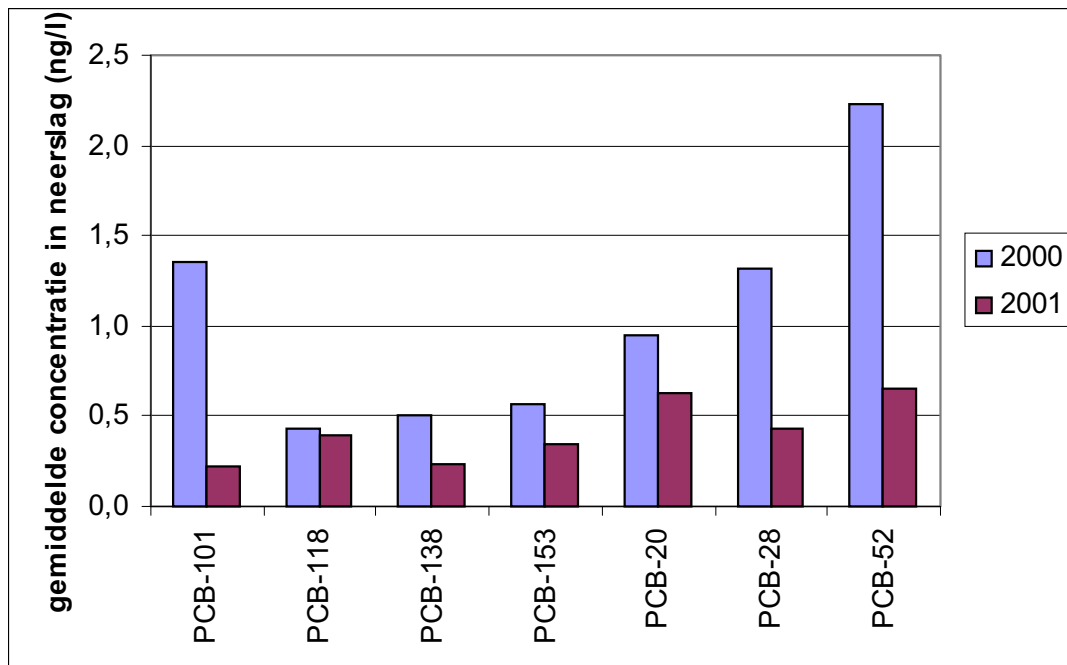




Figuur 18 Jaargemiddelde concentraties van PAK in neerslag (ng/l) in 2000 en 2001.

### PCB's

Het percentage van PCB's aangetroffen in neerslagmonsters is, net als het percentage in luchtmonsters, in 2001 gedaald ten opzichte van het jaar 2000. Het gaat vooral om de PCB's 101, 118, 138 en 180. De gemiddelde concentraties over alle monsters zijn ook gedaald.



Figuur 19 Jaargemiddelde concentraties van PCB's in neerslag (ng/l) in 2000 en 2001.

### 3.3 De belasting van de bodem en het oppervlaktewater met atmosferische depositie

In deze rapportage is voor die stoffen, die regelmatig in neerslag- en luchtmonsters zijn aangetroffen, een schatting gemaakt van de droge depositiesnelheid naar bodem en oppervlaktewater, volgens de methode die al eerder in deze rapportage is besproken. Zo is een schatting gemaakt van de totale depositie naar het Nederlandse oppervlaktewater en naar Nederlandse bodem. Voor het IJsselmeer, Noord-Holland en de Waddenzee is met behulp van metingen op de representatief geachte meetstations de atmosferische belasting berekend. De depositie naar het IJsselmeer is berekend op basis van de gegevens van de omliggende stations Stavoren, Ketelhaven, Andijk en Lelystad. De depositie naar de provincie Noord-Holland is berekend op basis van alle Noord Hollandse stations: Anna Paulowna, Andijk, Egmond en Aalsmeer. De depositie naar de Noordzee is berekend met behulp van metingen van de meetlocaties Noordwijk en Lauwersmeer. Deze depositie is waarschijnlijk een overschatting van de werkelijke depositie op de Noordzee, aangezien concentraties van de pesticiden, die in Nederland gebruikt worden, af zullen nemen met de afstand tot de kust; hiermee is geen rekening gehouden. Uit de gemiddelde natte depositie en droge depositie van alle meetstations is de gemiddelde atmosferische belasting naar de rest van het Nederlandse oppervlaktewater en naar Nederlandse bodem berekend.

Tabel 8 De totale atmosferische depositie van pesticiden naar het Nederlands oppervlaktewater (2.793 km<sup>2</sup>), het oppervlaktewater in Noord-Holland (800 km<sup>2</sup>), de Noordzee (508126 km<sup>2</sup> in ton/jr), de Waddenzee (2.600 km<sup>2</sup>), het IJsselmeer (1.928 km<sup>2</sup>)<sup>1)</sup> en Nederlandse bodem (36.783 km<sup>2</sup>) in (kg/jr). De betrouwbaarheid van de **vet gedrukte** stoffen is goed. Van de andere is de betrouwbaarheid laag (zie ook tekst). De schief gedrukte "0" betekent dat de stof niet is aangetroffen.

Atmosferische depositie	Oppervlakte water NL 2000	Oppervlakte water NL 2001	Oppervlakte water Noord-Holland 2001	Noord-zee <sup>1)</sup> 2001	Wadden-zee 2000	Wadden-zee 2001	IJsselmeer <sup>2)</sup> 2000	IJsselmeer <sup>2)</sup> 2001	Bodem 2000	Bodem 2001
	kg/jr	kg/jr	kg/jr	ton/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr
<b>2,4-D</b>	1	4	1,2	1	0,8	4,8	0,9	2,3	15	49
aldrin	0	-	-	-	0	-	-	-	0	-
<b>atrazine</b>	24	25	6	3	15	17	14	13	313	333
<b>bentazon</b>	2	7	1	0,04	0	1	1	6	19	65
bitertanol	39	-	-	-	0	-	-	-	0	-
<b>captan</b>	17	85	29	4	12	30	15	53	104	432
chloorfeninfos	1	1	1	0	0	1	1	0	5	4
<b>chloorprofam</b>	557	290	142	15	1333	382	362	218	3765	2100
<b>chloorpyriphos-methyl</b>	1	1	0,2	0,02	3	1	1	1	10	5
<b>chloorthalonil</b>	80	38,2	15	3	84	61	-	30	280	298
chloridazon (pyrazon)	2	-	-	-	1	-	1	-	8	-
deltametrin	0	-	-	-	0	-	-	-	0	-
demetone-S-methyl	6	-	-	-	20	-	-	-	2	-
<b>diazinon</b>	1	1	1	0,1	2	2	0	1	14	11
<b>dichlobenil</b>	685	443,7	140	42	809	352	413	356	499	362
<b>dichloorvos</b>	18	19,3	4	0,2	4	5	3	8	129	132
dicofol	0	-	-	-	0	-	-	-	0	-
<b>dimethoaat</b>	6	3	0,2	0,1	0,1	0,4	6	1	81	25
disulfoton	0	-	-	-	0	-	-	-	0	-
<b>DNOC</b>	2391	1207	324	181	2201	1207	1709	879	29248	14057
endosulfan I	1	2	0	0	0	0	0,4	0	3	10
endosulfan II	4	0,8	0,1	0	2	1	1	0	38	2
endrin	2	-	-	-	8	-	-	-	0	-
<b>epoxiconazol</b>	6	-	-	-	0	-	-	-	39	-
<b>ethofumesaat</b>	11	34	7	5	10	23	-	19	104	267
parathion-ethyl	0,3	0,2	0	0,2	0,1	0	0,4	0	3	0,05
fenitrothion	0,1	-	-	-	0,3	-	0	-	1	-

Atmosferische depositie	Oppervlakte	Oppervlakte	Oppervlakte	Noord-	Wadden-	Wadden-	IJssel-	IJssel-	Bodem	Bodem
	vlakte	vlakte	vlakte	zee <sup>1)</sup>	zee	zee	meer <sup>2)</sup>	meer <sup>2)</sup>		
	water	water	water							
NL	NL	Noord-								
2000	2001	Holland								
		2001	2001							
	kg/jr	kg/jr	kg/jr	ton/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr
fenthion	0,1	-	-	-	0	-	-	-	1	-
<b>fluazinam</b>	31	53	11	4	14	48	16	56	261	556
<b>fluroxypyr</b>	20	9	4	0	26	10	-	3	80	13
fosfamidon	0	-	-	-	0	-	0	-	0	-
heptachloor	0	0,7	0	0	0	0	0	0	0	9
<b>heptachloor epoxide</b>	2	-	-	-	1	-	-	-	0	-
heptenofos	0	-	-	-	0	-	-	-	0	-
hexachloor-1,3-butadieen	1	-	-	-	3	-	-	-	0,1	-
<b>hexachloorbenzeen</b>	2	2	1	0,1	3	2	2	1	11	8
isoxaflutole	5	-	-	-	0	-	-	-	7	-
<b>kresoxim-methyl</b>	12	16	4	2	24	19	-	10	81	172
<b>lindaan</b>	39	23	8	2	30	15	26	11	313	248
malathion	0,1	-	-	-	0	-	0	-	1	-
<b>MCPA</b>	16	13	5	3	15	16	9	6	206	165
<b>mecoprop</b>	12	12	4	1	7	13	7	6	155	153
metamitron	1	-	-	-	2	-	-	-	9	-
<b>methiocarb</b>	0,1	7	3	0,2	0	11	0	3	0,5	83
methomyl	0	-	-	-	0	-	-	-	0	-
parathion-methyl	0,1	-	-	-	0	-	0	-	1	-
<b>metolachloor</b>	24	6	2	1	10	3	8	1	256	72
<b>mevinfos</b>	2	3	1	0,4	3	4	0	2	5	31
<b>o,p'-DDD</b>	7	1,1	0,02	0,5	5	1	-	1	48	14
o,p'-DDE	1	-	-	-	2	-	-	-	0	-
p,p'-DDT	-	0,4	0,1	0	-	0	-	1	-	4
<b>PCP</b>	38	28	11	3	31	20	26	23	185	137
<b>pentachloorbenzeen</b>	0,5	0,6	0,3	0,1	2	1	-	1	3	6
pirimicarb	0,5	1,1	0,3	0	0,3	0,1	0,5	1	5	13
<b>pirimifos-methyl</b>	4	352	88	50	11	312	6	397	3	456
prochloraz	2	3	2	0,9	0	0	1	4	27	35
<b>procymidon</b>	24	13	6	0,5	30	14	15	6	170	109
<b>propachloor</b>	312	193	50	15	314	188	442	279	2205	1685
<b>propoxur</b>	2	1	0,5	0,2	1	1	3	2	29	19
pyrazofos	5	0,3	0	0,07	1	0	3	0	28	0,2
simazine	4	3,5	3	0	2	10	3	2	27	22
telodrin	0,4	-	-	-	1	-	-	-	0	-
<b>terbutylazine</b>	15	29	6	3	6	16	-	12	148	264
<b>tetrabromobisfenol A</b>	0,03	8	3	0,3	0,02	2	-	5	0,2	92
<b>tolclofos-methyl</b>	15	12	13	0,1	49	43	2	11	101	74
triadimenol	0	-	14	-	0	-	-	-	0	-
<b>triallaat</b>	201	80	-	10	174	69	171	47	725	115
triazofos	1	-	-	-	0	-	-	-	0	-
<b>trifluralin</b>	59	85	32	11	50	88	44	54	74	124
<b>vinclozolin</b>	78	106	31	3	185	117	-	126	446	687

1) De schattingen van de depositie van de Noordzee zijn onzeker (Zie tekst).

2) Met het IJsselmeer wordt bedoeld de Rijkswateren in het IJsselmeergebied.

De in **vet** afgedrukte stoffen van tabel 8 hebben een redelijke betrouwbaarheid (zie ook Bijlage III). De andere stoffen zijn zo weinig boven de detectiegrens aangetroffen dat de betrouwbaarheid van de geschatte depositie gering is. Dit geldt voor *aldrin*, *bitertanol*, *demetone-S-methyl*, *diazinon*, *endrin*, *fenthion*, *heptachloorepoxide*, *heptenofos*, *hexachloorbutadieen*, *malathion*, *o,p'-DDE*, *p,p'-DDT*, *prochloraz*, *telodrin*, *triademol*, *triazofos*. In Bijlage III wordt nader ingegaan op de berekeningen die zijn uitgevoerd om de invloed van de detectiegrens te onderzoeken. Wanneer de onzekerheid in de geschatte depositie al gevolg van de detectiegrens groter is dan een factor twee en de stof in een lage frequentie (< 5%) wordt aangetroffen in neerslag en lucht, dan wordt de betrouwbaarheid als gering beschouwd.

In Bijlage III wordt ook ingegaan op de verhouding tussen de bijdrage van de natte en de droge depositie.

Hoge waarden voor de depositie naar het Nederlandse oppervlaktewater werden in het jaar 2000 gevonden voor *DNOC* (2,4 ton per jaar voor Nederland), *dichlobenil* (0,7 ton) en *chloorprofam* (0,6 ton per jaar), *propachloor* (0,3 ton per jaar) en *triallaat* (0,2 ton per jaar). Verder werd een hoge depositie gevonden voor *chloorthalonil*, (bijna 0,1 ton per jaar) en *vinclozolin* (0,08 ton per jaar).

Voor een aantal pesticiden is de Nederlands gemiddelde depositie in 2001 sterk gedaald ten opzichte van 2000: de depositie van *metolachloor* is in 2001 éénvijfde van het niveau in 2000, de depositie van *triallaat* en *dimethoaat* is in 2001 bijna éénderde van het niveau in 2000, *chloorprofam*, *DNOC*, *lindaan* en *procymidon* zijn bijna gehalveerd in depositie, *propachloor* en *dichlobenil* zijn een kwart tot een derde gedaald in depositie. De depositie van *2,4-D*, *bentazon*, *fluazinam*, *methiocarb*, en *mevinfos*, is gestegen met een factor 2 tot 4 in 2001. Van de stoffen die in 2001 op 18 locaties zijn gemeten in plaats van vier steeg de depositie van *ethofumesaat*, *kresoxim-methyl*, *terbutylazine*, *tetraboromobisphenol* en *vinclozolin* ook met een factor 2 tot 4.

In Bijlage VI wordt nog nader ingegaan op de metingen in de provincie Noord-Holland. In opdracht van de provincie werden hier drie extra meetlocaties geplaatst. De landelijk hoogste depositie van een aantal pesticiden wordt op de meetlocaties Anna Paulowna en Andijk gevonden (zie Bijlage III). Dit heeft te maken met de specifieke ligging van de meetstations ten opzichte van brongebieden. De genoemde meetstations blijken relatief zwaar belast met stoffen die worden gebruikt in de bollenteelt en de aardappelteelt zoals *chloorprofam*, *tolclofosmethyl*, *pyrazofos*, *procymidon*, *chloorpyriphos methyl* en *chloorthalonil*.

Tabel 9 De atmosferische depositie van PAK en PCB naar het Nederlands oppervlaktewater (2.793 km<sup>2</sup>) de Waddenzee (2.600 km<sup>2</sup>), de Noordzee (508126 km<sup>2</sup> in **ton/jr**), het IJsselmeer (1.928 km<sup>2</sup>) en Nederlandse bodem (36.783 km<sup>2</sup>) in (kg/jr). De betrouwbaarheid van de in **bold** gedrukte stoffen is goed. Van de andere is de betrouwbaarheid laag (zie ook tekst).

Atmosferische depositie	Oppervlakte water NL	Oppervlakte water NL	Oppervlakte water Noord-Holland 2001	Noord-zee <sup>1)</sup>	Wadden-zee	Wadden-zee	IJsselmeer <sup>2)</sup>	IJsselmeer <sup>2)</sup>	Bodem	Bodem
	2000	2001		2001	2000	2001	2000	2001	2000	2001
	kg/jr	kg/jr	kg/jr	ton/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr	kg/jr
<b>PAK</b>										
acenaftteen	700	454	139	92	712	461	463	268	800	498
acenaftyleen	52	44	13	2	19	22	29	23	128	98
antraceen	178	46	13	3	60	35	176	23	361	162
benzo[a]antraceen	36	19	6	3	23	17	22	12	336	207
benzo[a]pyreen	60	30	10	6	36	31	48	18	425	170
benzo[b]fluoranteen	138	82	29	14	72	78	113	48	1131	520
benzo[g,h,i]peryleen	53	33	12	6	33	34	41	20	810	553
benzo[k]fluoranteen	89	59	21	11	46	61	80	35	1099	734
chryseen	132	56	17	8	71	46	88	35	545	426
dibenz[a,h]antraceen	8	7	3	1	4	10	6	5	79	74
fenantreen	2416	1974	645	160	1863	1442	1481	1085	4735	3176
fluoranteen	861	710	262	68	553	590	560	419	4744	3646
fluoreen	1254	950	265	127	1142	711	793	551	1378	953
indeno[1,2,3-cd]pyreen	49	32	11	7	29	34	38	18	487	263
naftaleen	1965	1786	567	102	1188	1017	1489	1215	1630	931
pyreen	484	382	121	32	274	296	269	215	2128	1304
<b>PCB</b>										
PCB-101	2,5	0,6	0,1	0,3	3,6	0,8	1,4	0,5	29,4	4,8
PCB-118	0,8	0,5	0,01	0,0	0,8	0,1	0,5	0,7	10,9	6,5
PCB-138	0,9	0,5	0,1	0,0	0,7	0,2	0,5	0,5	10,8	6,3
PCB-153	1,1	0,7	0,1	0,1	0,8	0,4	0,7	0,6	13,0	9,0
PCB-180	0,4	0,2	0,1	0,0	0,1	0,0	0,6	0,3	6,7	2,8
PCB-20	2,1	1,3	0,4	0,5	2,1	1,7	0,9	0,7	19,6	14,2
PCB-28	2,6	1,0	0,2	0,5	3,2	1,4	1,1	0,5	27,2	11,9
PCB-35	0,2	0,2	0,1	0,0	0,3	0,2	0,0	0,2	1,5	1,9
PCB-52	4,2	1,5	0,3	0,6	8,4	2,1	2,0	1,3	45,2	15,0
PCB-8	0,9	0,4	0,1	0,1	0,4	0,2	0,4	0,2	6,8	2,5

1) De schattingen van de depositie van de Noordzee zijn onzeker (Zie tekst).

2) Met het IJsselmeer wordt bedoeld de Rijkswateren in het IJsselmeergebied.

De depositie van alle PAK en PCB's blijkt goed meetbaar met de gekozen methode. Zoals ook al aan de concentraties in neerslag te zien was, is de depositie van de meeste PAK in 2001 afgenomen ten opzichte van het jaar 2000, met gemiddeld 40 procent. Alleen de depositie van *dibenz[a,h]-antraceen* nam iets toe. De depositie van PCB's is voor het jaar 2001 met 30 procent afgenomen ten opzichte van het jaar 2000. Veel van de maxima in de depositie van PCB's en PAK worden gevonden aan de kust en in Noord-Holland: Egmond, Aalsmeer, en Noordwijk (Bijlage III).

### 3.4 Berekening van de atmosferische depositie met behulp van een verspreidingsmodel

De uit meetresultaten berekende atmosferische depositie over Nederland maakt het mogelijk om de kwaliteit van modellen, die de verspreiding en depositie van pesticiden berekenen, te beoordelen en zo mogelijk te verbeteren. Deze modellen kunnen vervolgens gebruikt worden in beleidsstudies omdat daarmee de relatie tussen de emissie en de depositie kwantitatief kan worden gelegd. Dat maakt het mogelijk het effect van beleidsscenario's door te rekenen.

Met behulp van emissies vanuit de landbouw in Nederland en ruwe schattingen van emissies in het buitenland zijn modelberekeningen gedaan van de verspreiding en depositie voor een aantal pesticiden en PAK, die in de metingen veel zijn aangetroffen. Modelberekeningen uitgevoerd met emissies in Nederland leveren de bijdrages uit Nederland aan de depositie in Nederland, berekeningen met emissies in het buitenland leveren de buitenlandse bijdrage aan de depositie in Nederland. De som van beide bijdrages levert de totale depositie in Nederland op.

Voor *carbendazim* en *glyfosaat* zijn geen metingen uitgevoerd. De depositie is daarom afgeleid van modelberekeningen uitgevoerd voor die stoffen. De volgende tabel laat de berekende belasting zien. Omdat meetgegevens ontbreken is de onzekerheid in het resultaat onbekend.

De depositie van *carbendazim* en *glyfosaat* naar het Nederlandse oppervlaktewater, het IJsselmeer, het oppervlaktewater in Noord-Holland en de Nederlandse bodem uitgedrukt in kg/jaar afgeleid uit modelberekeningen.

	Oppervlakte- water	IJsselmeer	Oppervlaktewater Noord-Holland	Nederlandse bodem
carbendazim	16	6	6	278
glyfosaat	68	40	35	1613

#### 3.4.1 Vergelijking van modelresultaten met gemeten natte depositie in Nederland

De modelberekeningen, waarin emissies en meteorologische gegevens van het jaar 2000 zijn gebruikt, zijn vergeleken met gemeten natte depositie van het jaar 2000 (Figuur 27) Voor deze vergelijking zijn alleen stoffen gekozen die in meer dan tien procent van de monsters werden aangetroffen en waarvoor voldoende gegevens beschikbaar waren. Vergelijking van de droge depositie is minder goed mogelijk omdat stoffen minder vaak werden aangetroffen. Bovendien zijn zowel de schattingen met behulp van het model als de schatting aan de hand van de meting gebaseerd op dezelfde depositiesnelheid.

In sommige gevallen zijn de voor het jaar 2000 berekende deposities vergeleken met de meetresultaten in het jaar 2001. De emissiecijfers werden dan wel gecorrigeerd voor veranderingen in het verbruik van stoffen in 2001. Dit geldt voor *chloorthalonil*, *ethofumesaat*, *terbutylazine*, *tolclofos-methyl* en *vinclozolin* die in 2001 op alle 18 locaties bepaald werden en in 2000 slechts op vier locaties werden bepaald. Gezien de sterke correlatie tussen gemeten deposities in het jaar 2000 en 2001 kan deze vergelijking van metingen uit het jaar 2001 toch een beeld geven van de kwaliteit van de modellering.

Tabel 10 toont de verhouding tussen de gemeten en de gemodelleerde depositie en de correlatiecoëfficiënt van de regressie tussen beide.

De overeenkomst tussen modellen en metingen was voor een aantal stoffen redelijk goed. De verhouding tussen gemeten en gemodelleerde depositie lag tussen een half (model overschat een

factor twee) en twee (model onderschat een factor twee). Dit geldt voor *atrazin*, *chloorprofam* (2000) *ethofumesaat* (Figuur 37), *procymidon* (Figuur 31), *propachloor* en *terbutylazine* (Figuur 25). Voor deze stoffen was ook de correlatie tussen metingen en modelberekeningen goed. Dat wijst erop dat het model de ruimtelijke verdeling van die stoffen goed heeft berekend en dat de ruimtelijke verdeling van de emissies goed was. Figuur 30 en Figuur 31 laten het verloop van de natte depositie van *atrazin* en *procymidon* over Nederland zien. *Procymidon* is daarbij een voorbeeld van een stof die lokaal (in de bollenteelt) veel wordt gebruikt. Dit beeld komt zowel in de berekende als de gemeten concentratie naar voren. Heel anders is het beeld bij *atrazin*. Het gebruik van deze stof is al sinds 1999 niet meer toegestaan. Toch wordt deze stof in meetbare concentraties in de neerslag aangetroffen. De overeenkomst tussen het gemeten verloop van de depositie over het land en de depositie berekend op basis van alleen emissies in het buitenland ondersteunt het beeld dat de aangetroffen *atrazin* waarschijnlijk afkomstig is uit het buitenland.

Voor *chloorthalonil* (Figuur 35), *DNOC* (2001), en *vinclozolin* (Figuur 39) was de orde van grootte van de gemodelleerde depositie goed (factor ½ tot twee), maar de correlatie tussen model- en meetresultaten slecht.

De verhouding tussen gemeten en gemodelleerde depositie was groter dan tien (model onderschat met meer dan een factor tien), of kleiner dan één tiende (model overschat meer dan een factor 10) voor *dichloorvos* (Figuur 34) en *fluazinam*. De correlatie tussen de berekende en gemeten concentratie was redelijk voor die stoffen. Dit zou kunnen betekenen dat de toewijzing van de emissies in Nederland nog redelijk goed is, maar de bronsterkte minder goed werd geschat.

Voor *bentazon*, *dichlobenil*, *dimethoaat*, *pirimifos-methyl*, *tolcofos-methyl*, en *triallaat* (2000) was de vergelijking tussen de gemeten en berekende natte depositie slecht zowel wat correlatie betreft, als de orde van grootte van de depositie. De correlatie was goed voor *triallaat* in 2001 (Figuur 38).

Tabel 10 De over de meetlocaties gemiddelde verhouding tussen de gemeten en gemodelleerde natte depositie, voor de jaren 2000 en 2001, als ook de correlatiecoëfficiënt  $r^2$  afkomstig van de lineaire regressie. De modellering is gedaan met Nederlandse + buitenlandse emissies.

Stof	Opmerking <sup>2)</sup>
atrazin	Emissies onderschat
bentazon	Kwaliteit metingen mogelijk onvoldoende
chloorprofam	Binnen factor 2
chloorthalonil <sup>1)</sup>	Binnen factor 2
dichlobenil	Emissies onderschat
dichloorvos	Binnen factor 2
dimethoaat	Kwaliteit metingen mogelijk onvoldoende
DNOC	Emissies onderschat
ethofumesaat <sup>1)</sup>	Binnen factor 2
fluazinam	Emissies overschat
procymidon	Binnen factor 2
propachloor	Binnen factor 2
terbutylazine <sup>1)</sup>	Binnen factor 2
tolclofosmethyl <sup>1)</sup>	Kwaliteit metingen mogelijk onvoldoende
triallaat	Emissies onderschat
vinclozolin <sup>1)</sup>	Binnen factor 2

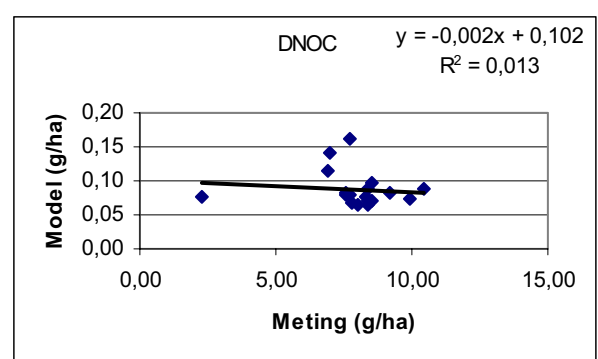
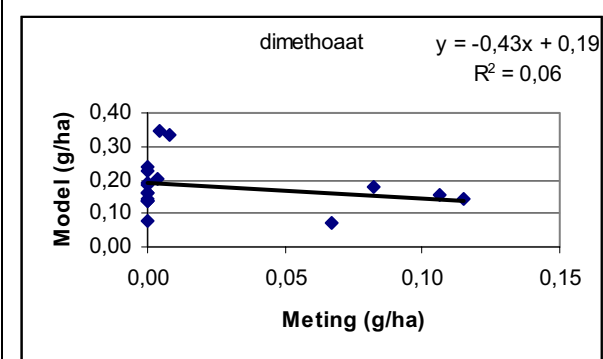
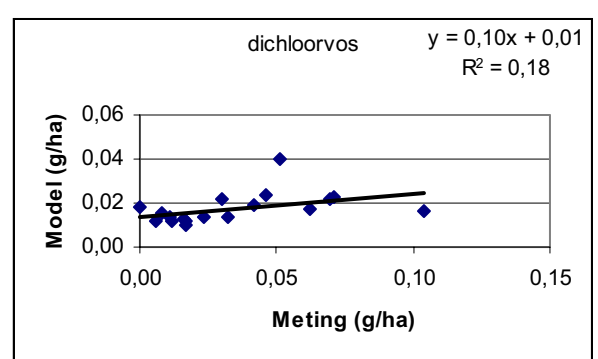
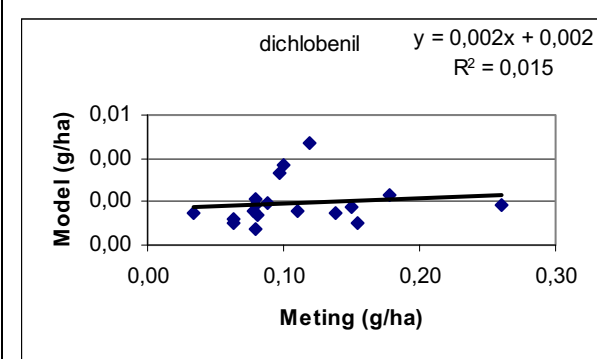
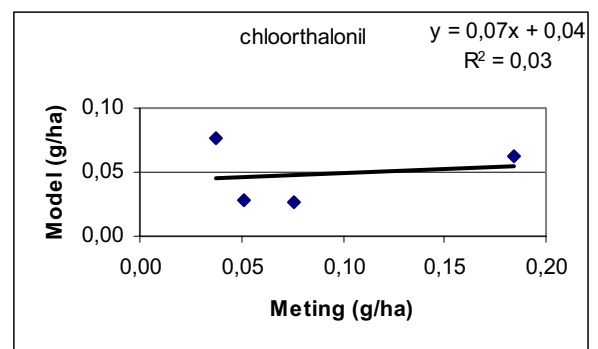
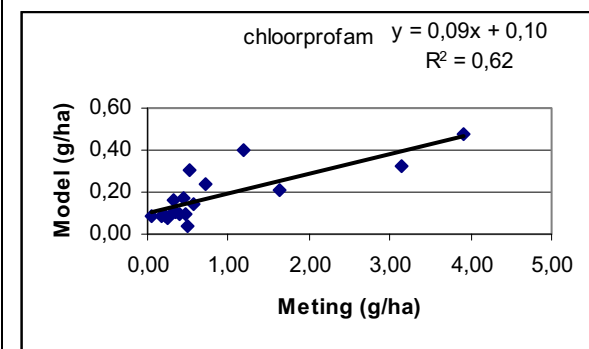
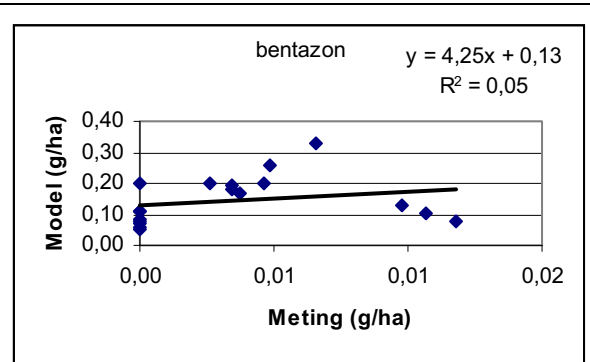
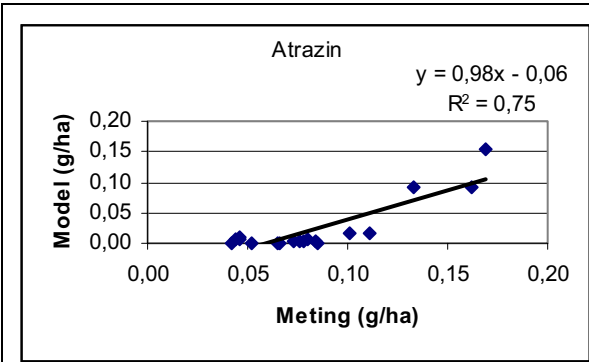
1) Stoffen zijn op vier locaties gemeten.

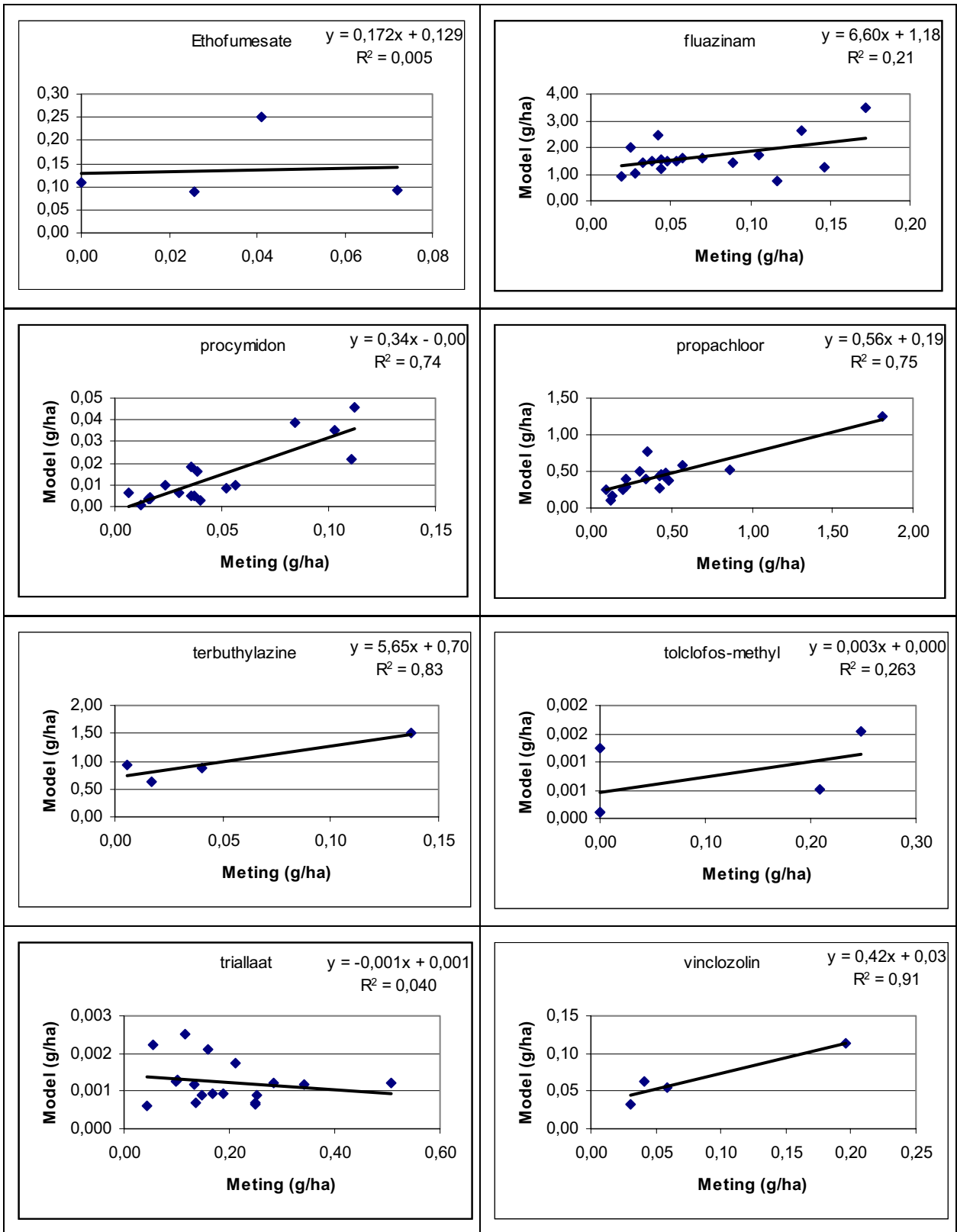
2) De opmerking 'Emissies onderschat' of 'Emissies overschat' geeft aan dat waarschijnlijk modelparameters zoals emissies, omzettingssnelheden of uitwas-coëfficiënten onjuist zijn. Een afwijking in de emissiefactor ligt echter het meest voor de hand.

Deze tabel laat zien dat het model:

- de goede orde van grootte van depositie berekent voor *atrazin*, *chloorprofam*, *chloorthalonil*, *dichloorvos*, *ethofumesaat*, *procymidon*, *propachloor*, *terbutylazine* (2001) en *vinclozolin*,
- de depositie van *bentazon*, *dimethoaat* en *terbutylazine* (2000) sterk overschat,
- de depositie van *dichlobenil*, en *triallaat* sterk onderschat, ondanks dat bijdrages vanuit het buitenland niet zijn berekend.

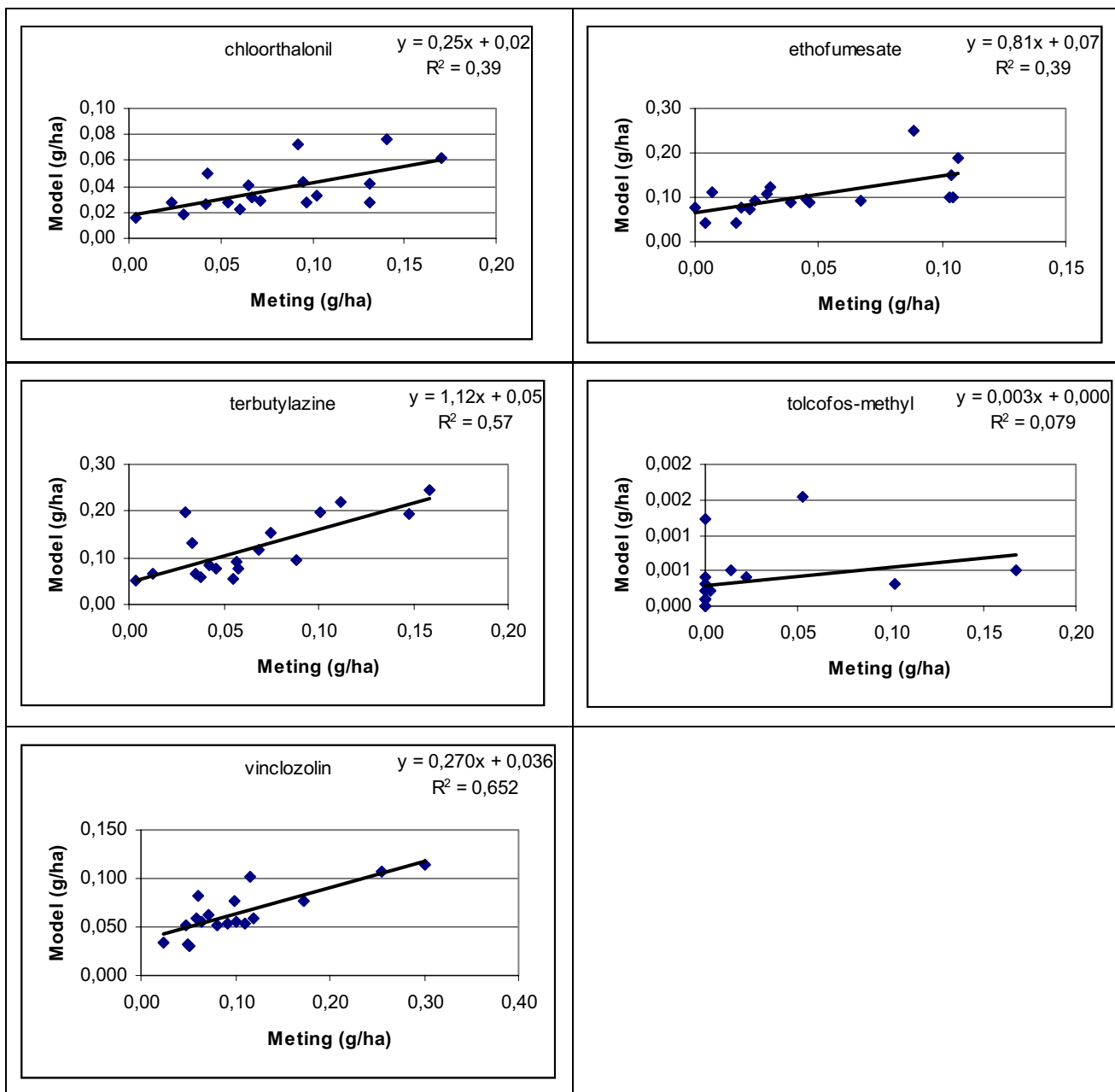






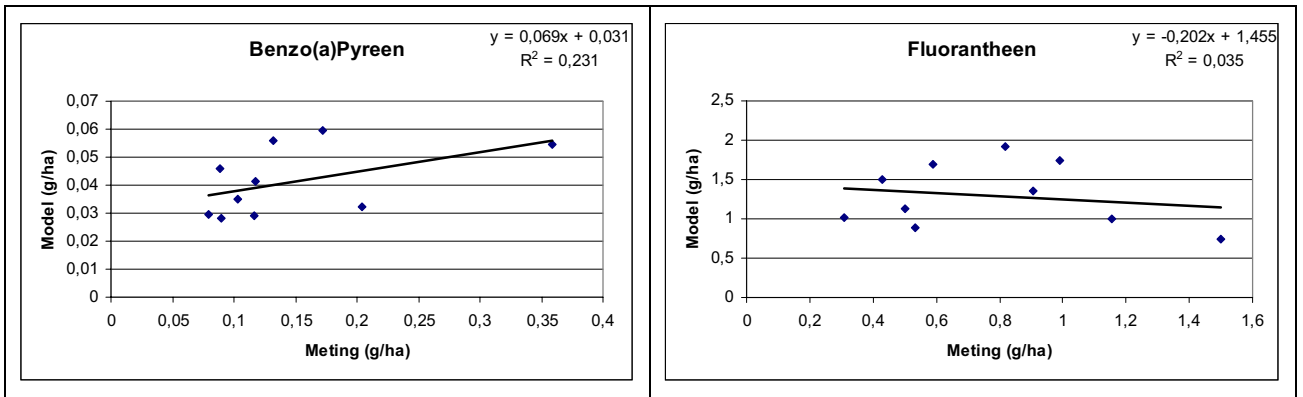
Figuur 27 Vergelijking tussen met het OPS model berekende en gemeten waarden van de natte depositie van een aantal belangrijke pesticiden in het jaar 2000.

Voor *chloorthalonil*, *ethofumesaat*, *terbutylazine*, *tolclofos-methyl* en *vinclozolin* is de vergelijking tussen de modelresultaten en metingen in 2001 op 18 meetpunten te zien in Figuur 28.



Figuur 28 Vergelijking tussen met het OPS model berekende en gemeten waarden van de natte depositie van een aantal belangrijke pesticiden voor het jaar 2001. Daarbij werden de emissiecijfers van 2001 gebruikt en de meteorologische gegevens van 2000. Het gaat hier om pesticiden die in het jaar 2000 op vier locaties werden bepaald, en in 2001 op achttien locaties.

De berekende natte depositie van de PAK *benzo(a)pyreen* en *fluorantheen* is ook met de gemeten waarden vergeleken. Figuur 29 laat voor *benzo(a)pyreen* nog enige correlatie zien tussen meting en model. Het model onderschat echter de gemeten natte depositie met ongeveer een factor drie. Er is ook weinig correlatie tussen de gemeten en berekende depositie van *fluorantheen*. Het absolute niveau van de depositie is daarbij nog redelijk goed geschat.

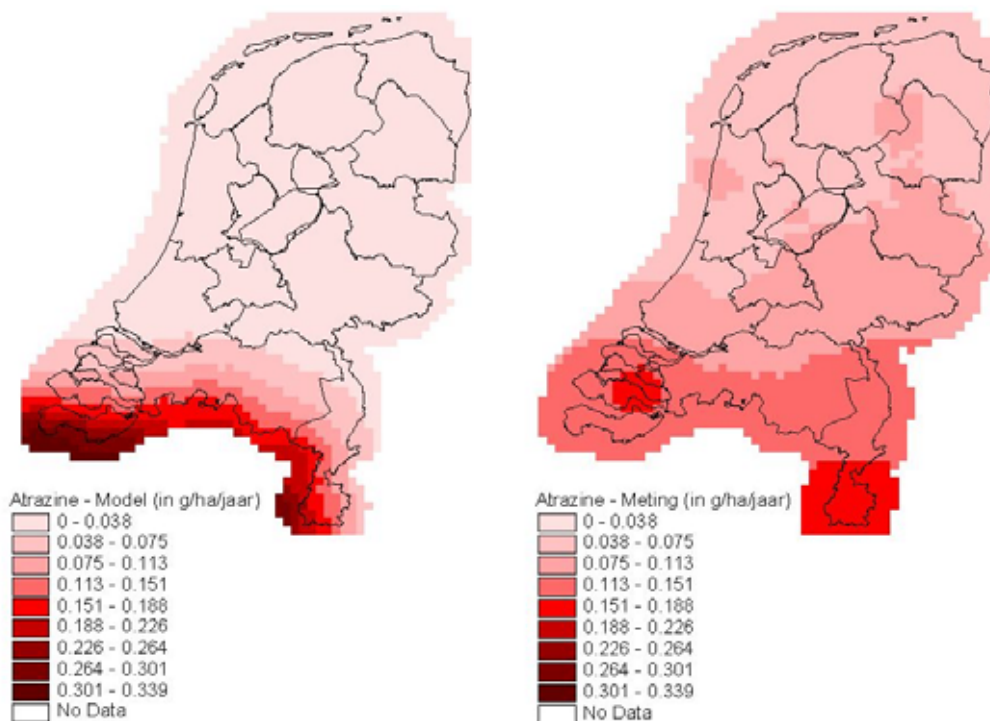


Figuur 29 Vergelijking tussen de berekende en de gemeten natte depositie van fluorantheen en benzo[a]pyreen in het jaar 2000.

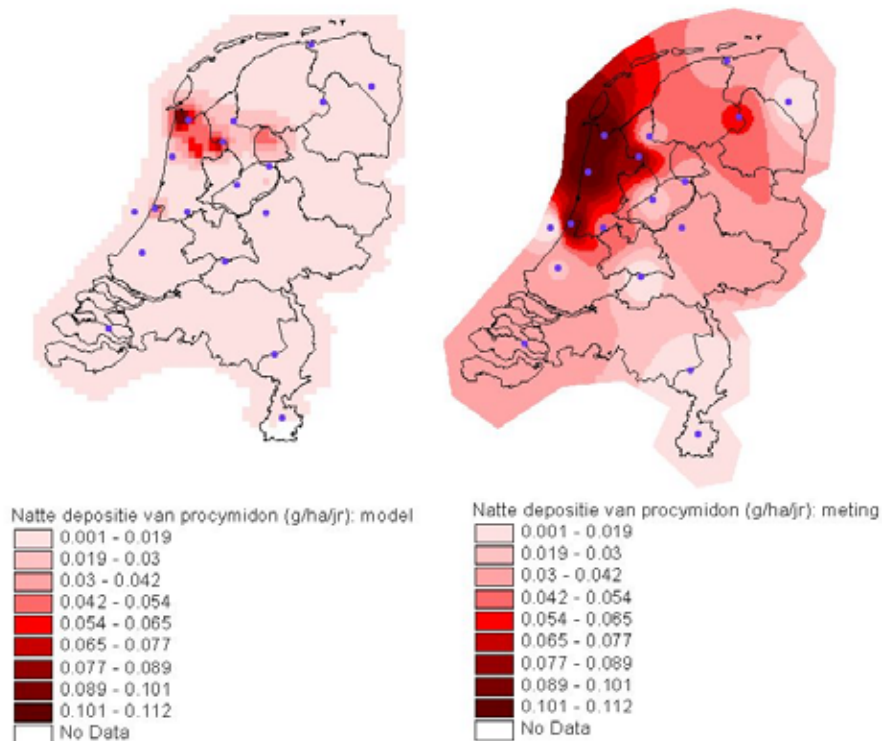
De vergelijking is slecht voor: *DNOC*, *dimethoaat*, *pirimifos-methyl*, *tolclofos-methyl* en *triallaat*.

Voor *dichlobenil* waren geen schattingen van de emissies in het buitenland beschikbaar.

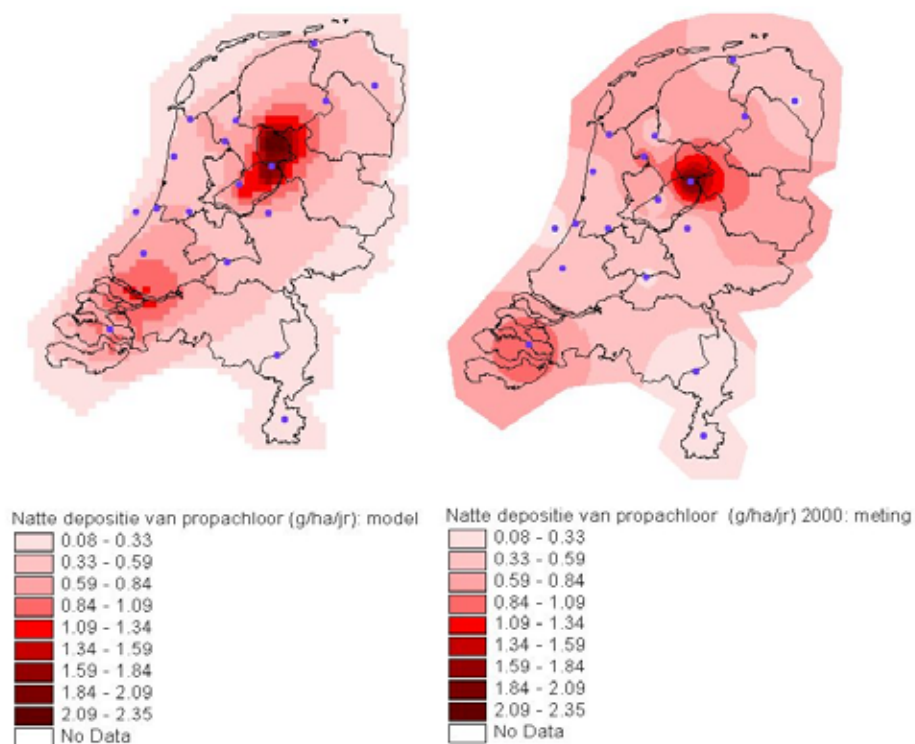
In Figuur 22 tot en met Figuur 38 wordt de ruimtelijke verdeling van de gemeten en gemodelleerde natte depositie over Nederland weergegeven van *atrazine*, *procymidon*, *propachloor*, *terbutylazine*, *ethofumesaat* en *triallaat*.



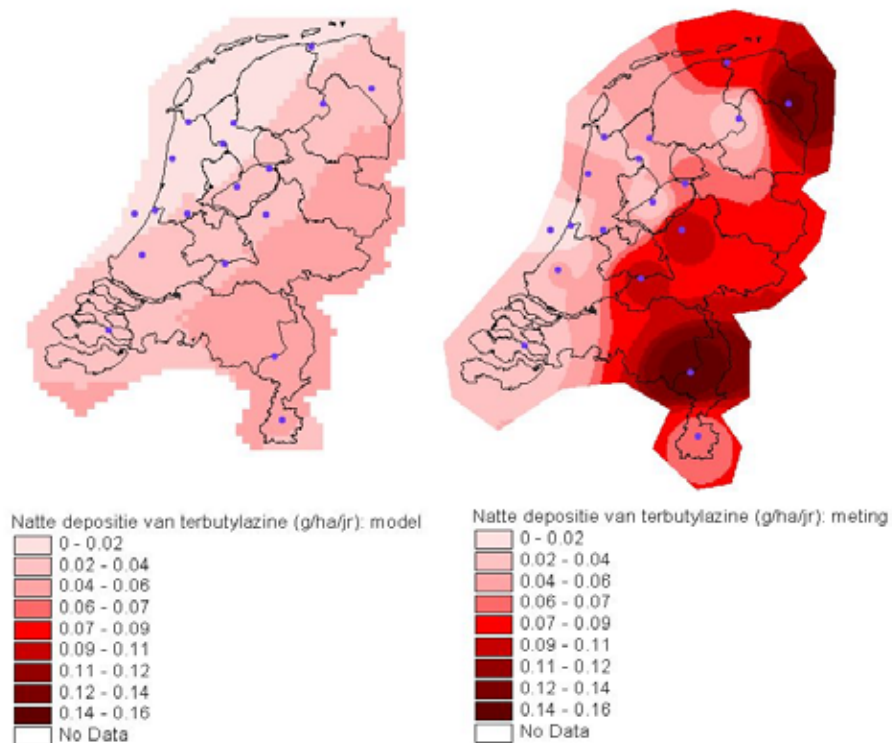
Figuur 30 De ruimtelijke verdeling van de gemodelleerde en gemeten natte depositie van atrazine (g/ha/jr) voor het jaar 2000.



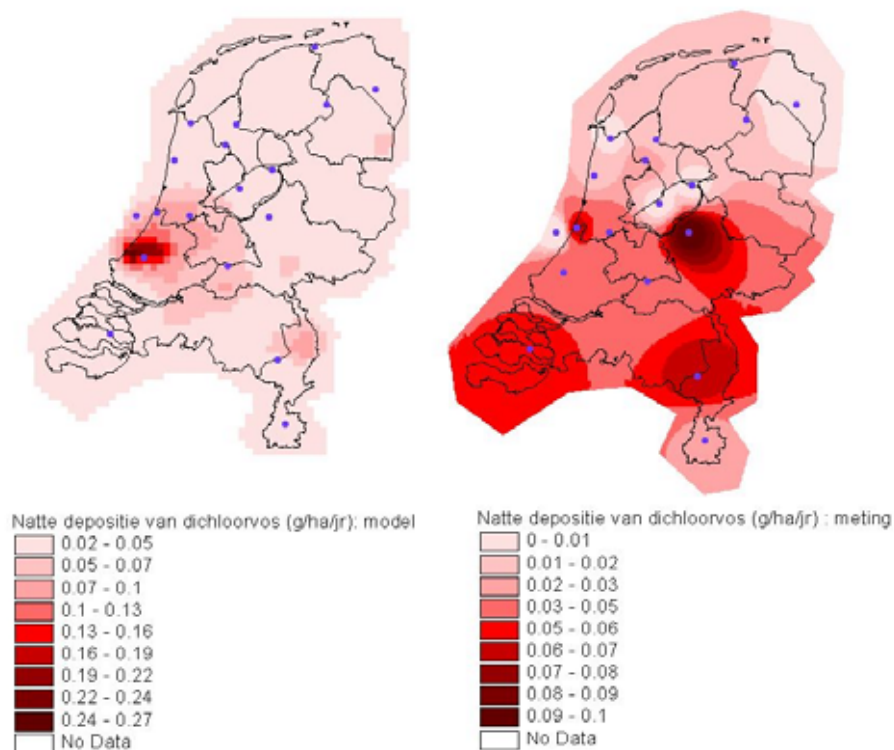
Figuur 31 De ruimtelijke verdeling van de gemodelleerde en gemeten natte depositie van procymidon (g/ha/jr) voor het jaar 2000.



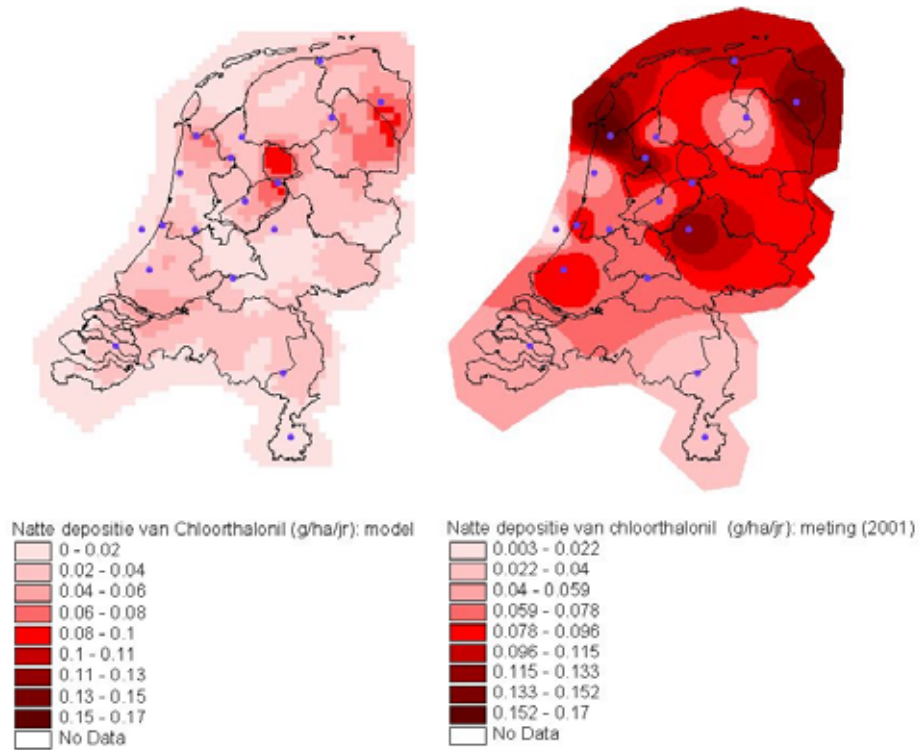
Figuur 32 De ruimtelijke verdeling van de gemodelleerde en gemeten natte depositie van propachloor (g/ha/jr) voor het jaar 2000.



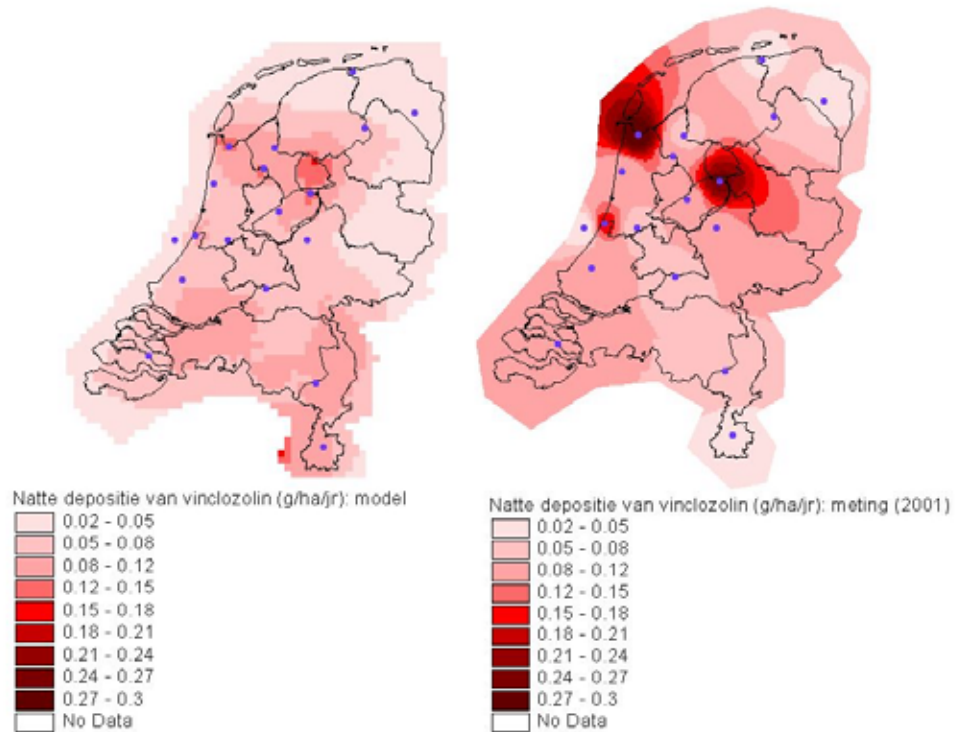
Figuur 33 De ruimtelijke verdeling van de gemodelleerde en gemeten natte depositie van terbutylazine (g/ha/jr) voor het jaar 2001.



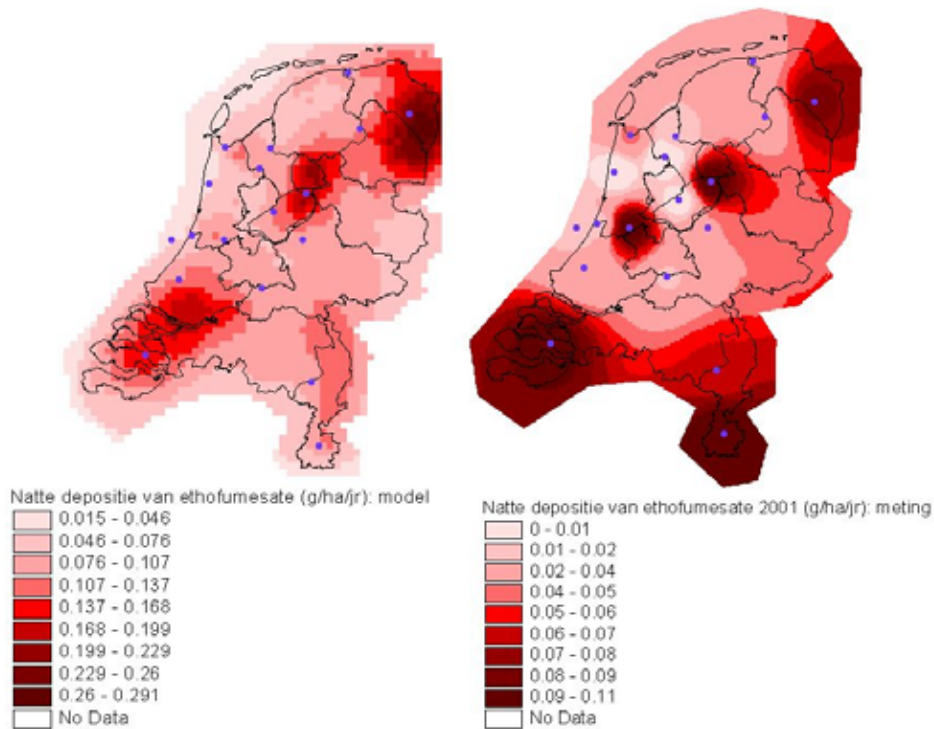
Figuur 34 De ruimtelijke verdeling van de gemodelleerde en gemeten natte depositie van dichloorvos (g/ha/jr) voor het jaar 2000.



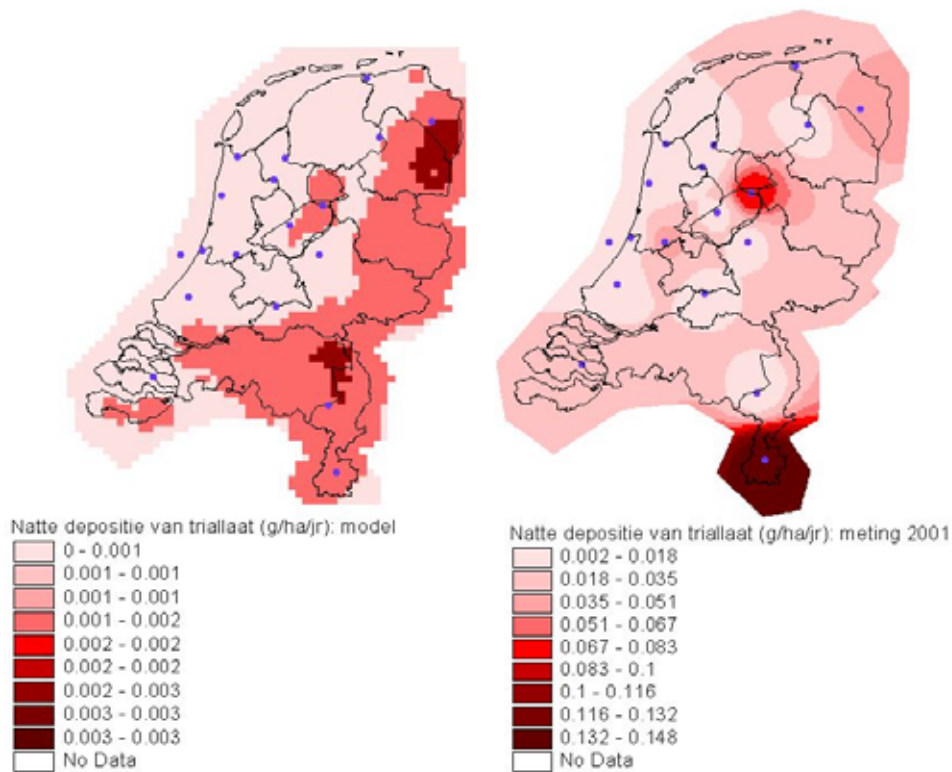
Figuur 35 De ruimtelijke verdeling van de gemodelleerde en gemeten natte depositie van chloorthalonil(g/ha/jr) voor het jaar 2001.



Figuur 36 De ruimtelijke verdeling van de gemodelleerde en gemeten natte depositie van vinclozolin (g/ha/jr) voor het jaar 2001.



Figuur 37 De ruimtelijke verdeling van de gemodelleerde en gemeten natte depositie van ethofumesaat (g/ha/jr) voor het jaar 2001.



Figuur 38 De ruimtelijke verdeling van de gemodelleerde en gemeten natte depositie van triallaat (g/ha/jr) voor het jaar 2001.

Uit deze figuren blijkt, dat voor deze pesticiden de correlatie tussen de gemeten en gemodelleerde natte depositie en de orde van grootte van de gemodelleerde natte depositie, vrij goed is, behalve voor *triallaat*. Voor dit herbicide is correlatie voor het jaar 2001 redelijk (Figuur 38), maar is de orde van grootte van de gemodelleerde depositie slecht. De emissie is waarschijnlijk



sterk onderschat. De kwaliteit van de metingen van *triallaat* in het jaar 2000 is waarschijnlijk niet goed, gezien de slechte correlatie tussen meting en model voor dat jaar.

### 3.4.2 *Bijdrages van emissies van de verschillende provincies op deposities in waterschappen*

Met behulp van het transport en depositiemodel OPS kan de relatie gelegd worden tussen bronnen (emissie van stoffen) en de depositie. Zo kan berekend worden wat de bron van een bepaalde depositie is. Door het transport en de depositie van de emissie per bron of de emissie per provincie met het model te berekenen, kan zo de bijdrage van die bron of provincie worden berekend. In het kader van deze studie is voor een beperkt aantal stoffen berekend:

- 1) wat de depositie in een beheersgebied is, en
- 2) wat de bijdrage van de emissies uit de verschillende provincies in zo'n gebied is.

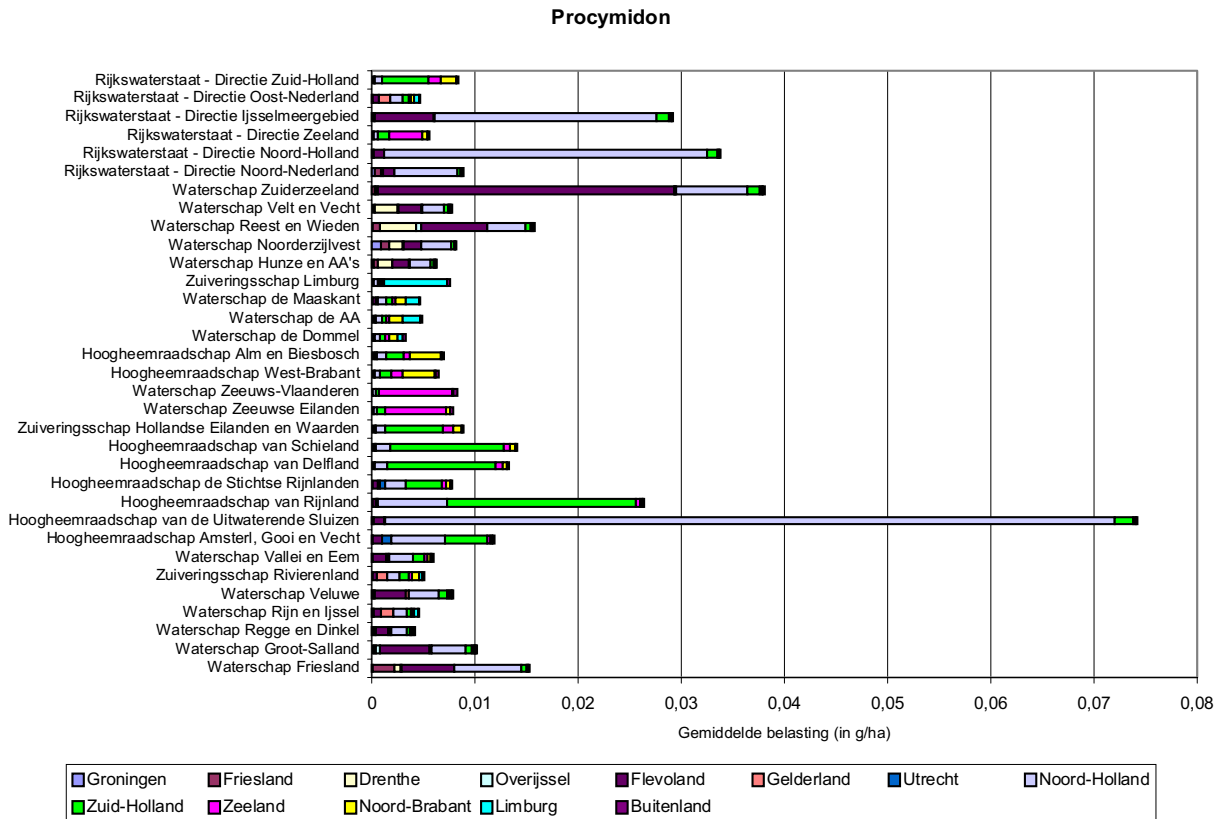
Met behulp van de verdeling van de emissies van een stof over het land kan een schatting gemaakt worden van de belasting van een gebied met die stof, en het aandeel van emissies buiten dat gebied. Voor vier pesticiden en twee PAK is berekend, wat het aandeel is van emissies in de verschillende provincies in Nederland op de belasting van die pesticiden in beheersgebieden. Figuur 39 tot en met Figuur 42 laten deze bijdragen zien voor de pesticiden *procymidon*, *fluazinam*, *dichloorvos* en *chloorthalonil* en voor de PAK *benzo(a)pyreen*. Gezien de correlatie tussen modelberekeningen en metingen (Tabel 10) is het model redelijk tot goed in staat om voor deze stoffen de ruimtelijke verdeling over het land te berekenen. Naast de bijdragen kan ook de gemiddelde belasting per gebied afgelezen worden. Bij de interpretatie van de figuren moet echter rekening gehouden worden met eventuele over- of onderschatting door het model van de gemeten depositie waarden. In Figuur 40 kan bijvoorbeeld afgelezen worden dat de gemiddelde belasting van 'waterschap Hunze en de AA' met *fluazinam* ongeveer 3,3 gram per hectare is, terwijl de gemeten depositie van deze stof gemiddeld niet hoger was dan 0,45 gram per hectare, op het meetpunt met de hoogste waarde in Nederland. Voor *dichloorvos* en *chloorthalonil* onderschatte het model de belasting. De modellering van de atmosferische depositie van *procymidon* kwam goed overeen met de metingen. De gemeten totale depositie van *procymidon* in Noord-Holland was gemiddeld 0,08 gram per hectare per jaar.

Figuur 39 laat zien dat een groot gedeelte van deze depositie afkomstig is uit de eigen provincie en dat het dat de totale belasting op waterkwaliteitbeheersgebieden daar varieert van 0,04 tot 0,07 gram per hectare per jaar.

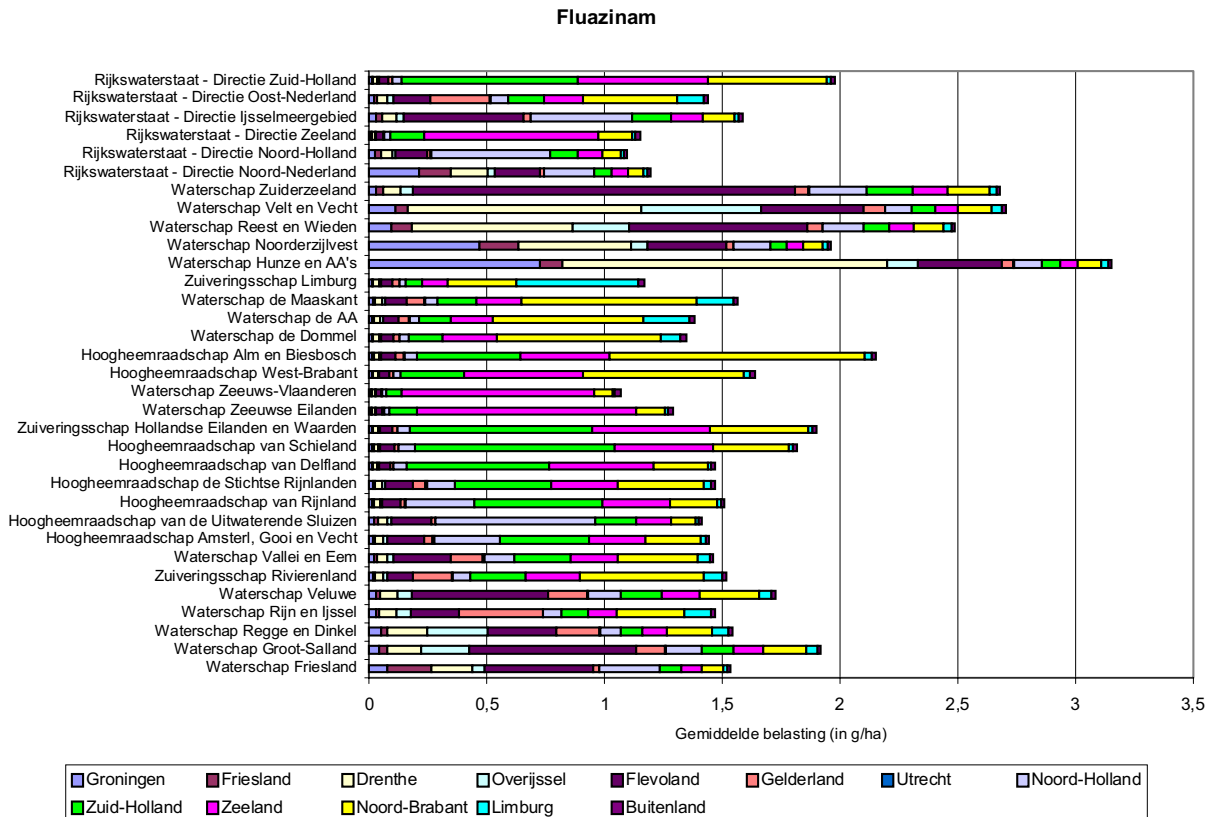
In het algemeen hangt de depositie zeer sterk samen met de ligging van een gebied ten opzichte van brongebieden. *Dichloorvos*, voornamelijk gebruikt in het Westland, geeft aanleiding tot hoge deposities in het beheersgebied van de Hoogheemraadschappen van Schieland en Delfland. Een zelfde relatie geldt voor *procymidon* dat een belangrijk gebruik kent in het gebied van Hoogheemraadschap Uitwaterende Sluizen. Landelijk veel gebruikte stoffen zoals *fluazinam* en *chloorthalonil* dragen bij aan de depositie in alle beheersgebieden.

Recentelijk voerden Bleeker en Duyzer (2002) een uitgebreide studie uit naar de belasting van het oppervlaktewater in het beheersgebied van het Zuiveringsschap Hollandse Eilanden en Waarden (ZHEW). Daaruit bleek dat de depositie van de verschillende pesticiden gebruikt in het gebied voor ongeveer 25-30% afkomstig was van emissies vanuit het gebied zelf.

Er is ook berekend wat het aandeel is van emissies in de verschillende provincies in Nederland op de belasting op elk van de meetlocaties, en welk gedeelte van de depositie uit het buitenland afkomstig is. Deze staan gegeven in bijlage VII.

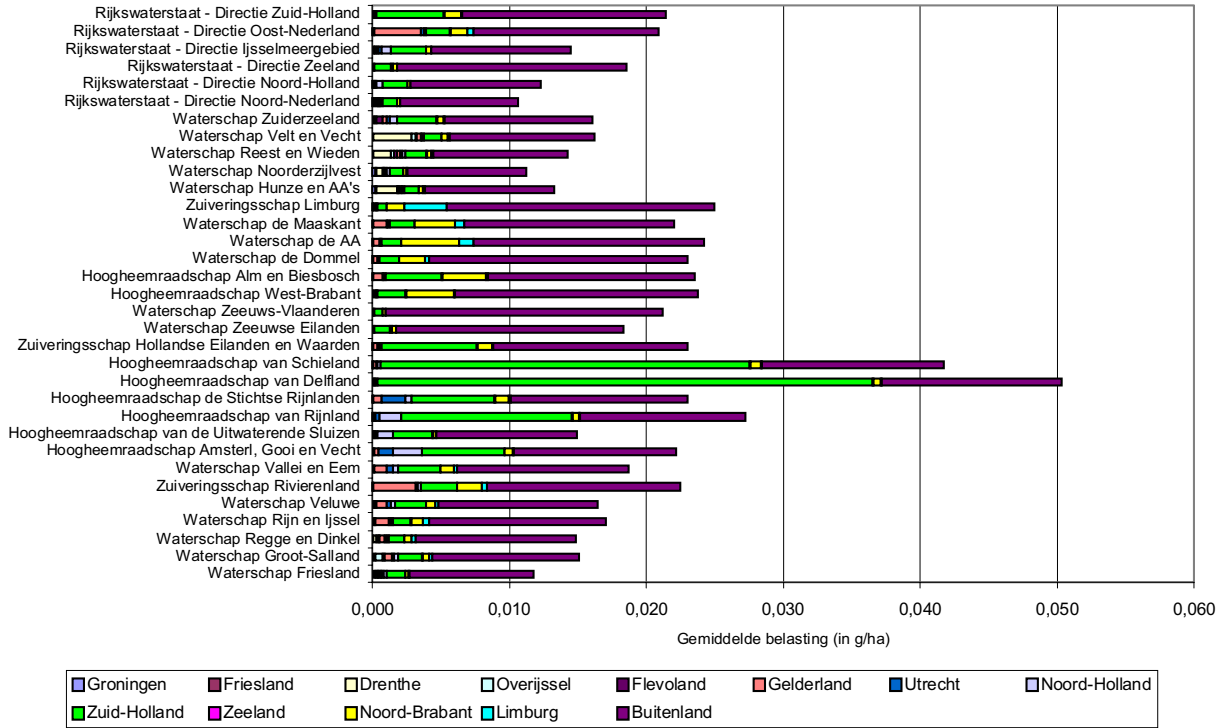


Figuur 39 Bijdragen van emissies van procymidon per provincie op de gemiddelde belasting met procymidon in de waterkwaliteitsbeheersgebieden (g/ha).



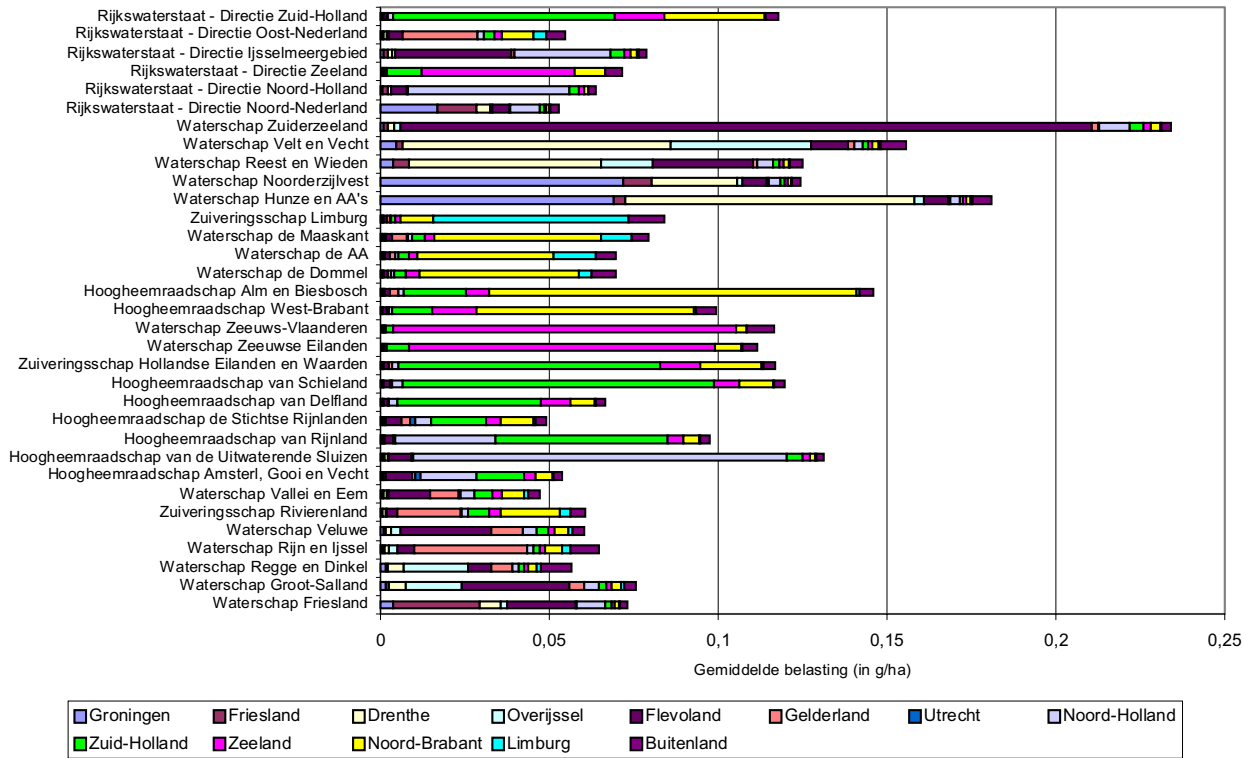
Figuur 40 Bijdragen van emissies van fluazinam per provincie op de gemiddelde belasting in de waterkwaliteitsbeheersgebieden (g/ha).

### Dichloorvos

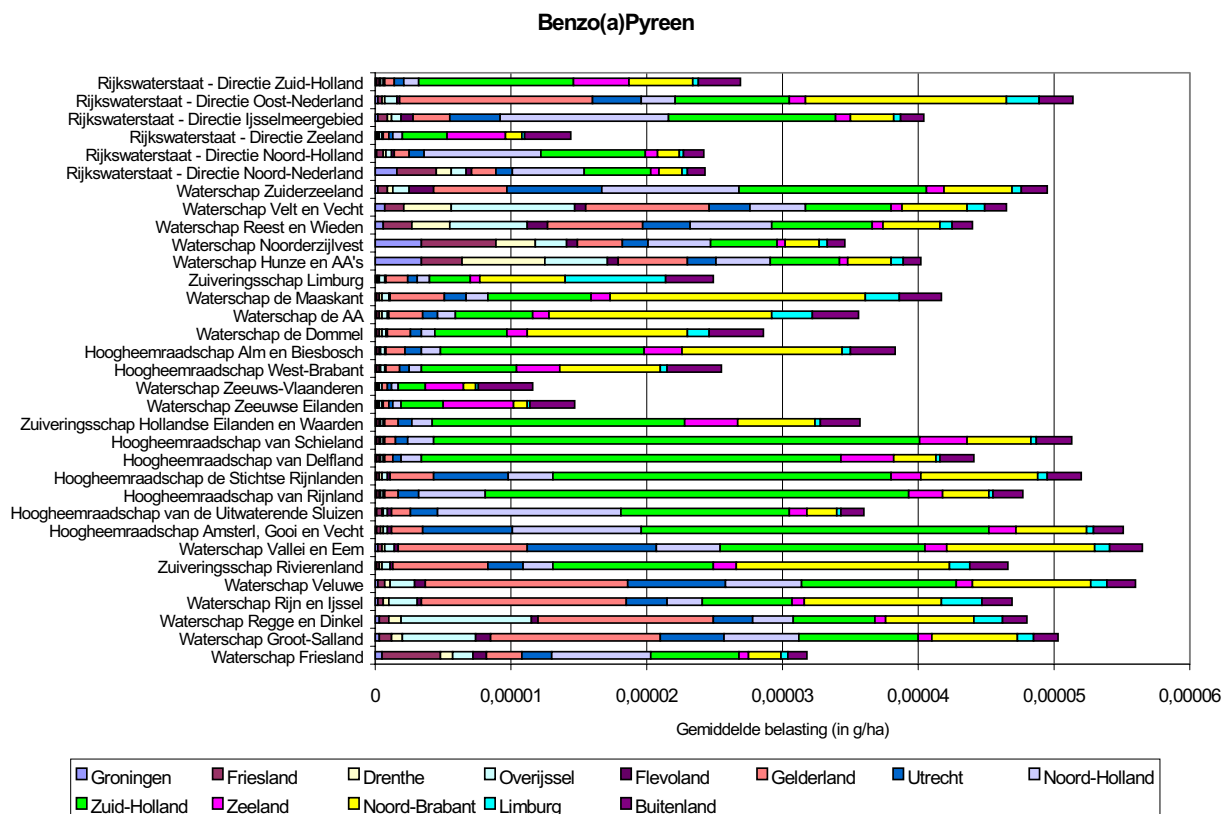


Figuur 41 Bijdragen van emissies van dichloorvos per provincie op de gemiddelde belasting in de waterkwaliteits-beheersgebieden (g/ha).

### Chloorthalonil



Figuur 42 Bijdragen van emissies van chloorthalonil per provincie op de gemiddelde belasting in de waterkwaliteitsbeheersgebieden (g/ha).



Figuur 43 Bijdragen van emissies van Benzo(a)Pyreen per provincie en vanuit het buitenland op de gemiddelde belasting in de waterkwaliteitsbeheersgebieden (g/ha).

### 3.4.3 *Het effect van atmosferische depositie van pesticiden op de concentraties in oppervlaktewater; vergelijking met normwaarden*

Nadat stoffen via atmosferische depositie in het oppervlaktewater zijn terechtgekomen worden ze aan allerlei processen blootgesteld. Deze processen waaronder verdunning en afbraak leiden ertoe dat de concentratie uiteindelijk lager wordt dan de concentratie in de atmosferische depositie. Met behulp van simulatie modellen kan de concentratie in de waterfase worden berekend. Er zijn verschillende modellen in de literatuur beschreven. In dit onderzoek is gewerkt met het *Waterbox* model (Bakker en van den Hout, 1993). Dit boxmodel berekent het lot van stoffen in water waarbij rekening wordt gehouden met de volgende processen:

- hechting van de stof aan in het water zwevend slib en sediment
- diffusie van een stof tussen water en sediment
- afbraak van de stof in water en sediment.

Het model berekent de concentratie in de situatie dat er volledig evenwicht is ontstaan tussen alle aan- en afvoerprocessen. Deze concentratie wordt berekend voor verschillende standaardwateren zoals sloten, vennen, rivieren en meren. Omdat voor het watersysteem *ven* de verdunning het laagst is wordt voor dit systeem de berekende concentratie het hoogst. In dit onderzoek is daarom voor vennen de concentratie berekend als indicator voor mogelijke problemen. De concentratie in de andere watersystemen wordt veel minder hoog. Tabel 12 geeft ter illustratie ook de berekende concentratie in een groot meer. De tabel geeft voor een aantal verbindingen de concentratie die wordt berekend als gevolg van atmosferische depositie. Er is geen rekening gehouden met de belasting door andere bronnen zoals drift.

Voor de berekeningen is de jaarlijkse Nederlands gemiddelde atmosferische depositie naar oppervlaktewater gebruikt. De berekeningen zijn gedaan voor een aantal pesticiden, die in 2001 in het oppervlaktewater zijn aangetroffen.

Tabel 12 Concentraties in een ven en in een groot meer (in ng/l en als percentage van het MTR) ten gevolge van louter atmosferische depositie, berekend met het Waterbox model. Verder is de verhouding tussen de hoogste belasting die in Nederland op een bepaalde locatie werd aangetroffen en de gebruikte Nederlands gemiddelde belasting gegeven. De concentratie van Isoproturon werd alleen in monsters van één locatie bepaald. Die van trifenyltin werd op vier locaties bepaald.

Stof	MTR (ng/l)	Concen-tratie in een Ven (ng/l)	Concen-tratie in een groot meer (ng/l)	Concen-tratie ven (% van MTR)	Concentra-tie in een groot meer (% van MTR)	Verhouding tussen gemid- delde Belasting in NI en hoogste waarde (factor)	Locatie met hoogste waar- de
atrazin	2900	0,8	0,1	0,03	0,00004	2,3	WY
simazin	140	0,3	0,05	0,2	0,0003	6,0	GP
terbutylazine	190	11,7	0,7	6	0,0039	4,4	GP
chloorfenvinfos	2	0,08	0,02	4	0,01	12,6	EG
dichloorvos	0,7	0,01	0,002	1	0,003	6,7	GP
isoproturon	320	40	4,8	13	0,01	1	
lindaan	920	1,0	0,2	0,1	0,0002	3,1	WY
MCPA	2000	0,6	0,1	0,03	0,00005	2,0	YE
mecoprop		0,6	0,1	0,03		2,1	YE
propachloor	1300	34	3,6	3	0,003	5,6	KE
trifenyltin (fentin hydroxide)	5	0,7	0,1	14	0,03	1,9	VE
Benzo[a]pyreen	500	0,2	0,1	0,04	0,02	1,5	KE/LE
fluoranteen	500	18	8	3,5	1,5	12	EG

Voor *isoproturon*, *propachloor* en *simazin* werden in de literatuur zeer uiteenlopende waarden gevonden voor de halfwaardetijd in oppervlaktewater. De berekeningen zijn met de grootste halfwaardetijd uitgevoerd. Het MTR in oppervlaktewater werd voor geen van de onderzochte pesticiden overschreden als gevolg van de bijdrage van atmosferische depositie.

Voor *isoproturon*, *propachloor* en *terbutylazine* werden concentraties in een ven berekend van enkele (tientallen) ng/liter, respectievelijk 13, 3 en 6% van het MTR van die stoffen.

De atmosferische depositie van organofosforverbindingen *dichloorvos* en *chloorfenvinfos* leidt tot lage berekende concentraties in het oppervlaktewater. Zelfs in het meest gevoelige systeem (ven) ligt de concentratie beneden het MTR. Voor *dichloorvos* en *chloorfenvinfos* werd wel de streefwaarde voor oppervlaktewater overschreden.

De tabel geeft ook nog aan de verhouding tussen de hier gebruikte landelijk gemiddelde depositie en de in het land, op een meetstation, gevonden hoogste jaargemiddelde depositie. Daaruit blijkt dat de concentratie van *terbutylazine*, *chloorfenvinfos*, *dichloorvos*, *propachloor* en *trifenyltin* in sommige brongebieden als gevolg van atmosferische depositie nog op zou kunnen lopen tot waarden tussen vijf en vijftig procent van de MTR waarde. Atmosferische depositie kan samen met andere bronnen gemakkelijk leiden overschrijding van normwaarden voor deze stoffen.

Naast het MTR niveau is ook het VR niveau belangrijk. Deze waarde is doorgaans 100x lager dan de waarde voor het MTR. Uit de tabel blijkt dat voor een aantal stoffen zoals *terbutylazine*, *chloorfenvinfos*, *isoproturon*, *propachloor* en *trifenyltin* VR concentratie in verschillende soorten oppervlaktewater overschreden kan worden door de bijdrage van atmosferische depositie alleen.

Deze berekende waarden zijn evenwichtsconcentraties ten gevolge van de jaarbelasting van depositie. De concentraties in oppervlaktewater kunnen echter korte tijd na een hoge belasting, bijvoorbeeld in de maand dat het pesticide wordt gebruikt, tijdelijk veel hoger zijn dan de met dit model berekende evenwichtsconcentratie. Het gebruikte model is niet geschikt om deze verhoogde concentratie te berekenen.

Men dient zich bovendien wel te realiseren dat het doel van het hier gepresenteerde onderzoek was een landelijk beeld te verkrijgen. De meetstations zijn daarom alle zo gekozen dat ze ver van grote bronnen zijn gelegen. De depositie in de directe omgeving van deze bronnen is waarschijnlijk nog aanzienlijk hoger. Deze zou daarom ook gemakkelijker tot overschrijding van normwaarden kunnen leiden. In bijlage V wordt een voorbeeld uitgewerkt waarbij de concentratie op één km afstand van een bron vijftig keer hoger is dan op tien kilometer afstand van de bron. Bovendien blijkt dat binnen een straal van de eerste kilometer vanaf de bron tot 20% van de geëmitteerde hoeveelheid te kunnen deponeren.

Meer informatie over de belasting van het oppervlaktewater in de omgeving van de bron is te vinden in Baas en Bakker (1996). Daarin worden realistische schattingen gemaakt van de depositie in de omgeving van een glastuinbouw en de concentratie die daarvan het gevolg is in oppervlaktewater, bodem en lucht. Afhankelijk van verversingsgraad van het oppervlaktewater kan de concentratie in het oppervlaktewater oplopen tot 500 ng/l op korte afstand van het kas-sengebied.



## 4. Discussie en conclusies

### 4.1 Inleiding

Om te onderzoeken in hoeverre atmosferische depositie van (eco)toxische stoffen het oppervlaktewater en terrestrische ecosystemen belast kunnen modelberekeningen worden gebruikt en metingen. Daarbij vormen modelberekeningen vaak de eerste stap om vast te stellen of de bijdrage inderdaad van belang is, wie daarvoor verantwoordelijk is. Metingen vormen de tweede stap waarbij onderzocht wordt in hoeverre er werkelijk sprake is van een probleem. De afgelopen vijftien jaar is in de IWAD de lijn gevolgd die ging van oriënterende berekeningen van de depositie naar een compleet meetnet met als doel de depositie uit metingen af te leiden. In het kader van IWAD zijn de laatste drie jaar voor het eerst op systematische wijze metingen van de depositie in Nederland uitgevoerd. De verzamelde meetgegevens maken een goede beoordeling van de kwaliteit van modelberekeningen mogelijk. In deze paragraaf wordt getracht de thans beschikbare resultaten in een bredere context te plaatsen, de witte plekken te identificeren en mogelijkheden voor verbetering aan te geven. Daarnaast wordt ingegaan op de mogelijkheden atmosferische depositie in de toekomst te monitoren en de mogelijkheden de atmosferische depositie in de toekomst te verminderen.

### 4.2 De resultaten van de metingen

De gemeten atmosferische depositie kan op verschillende manieren worden beoordeeld. Enerzijds kan onderzocht worden of effecten van de waargenomen *niveaus* kunnen worden verwacht. Het betreft hier eerder de effecten op de korte termijn dan die op de lange. Anderzijds is voor waterkwaliteitsbeheerders de *vracht* in kg/jaar een belangrijke grootheid. Beide kanten van de meetresultaten zullen worden besproken.

#### *Niveaus*

De waargenomen concentratie niveaus zijn, bij gebrek aan normen voor neerslag of lucht, vergeleken met de MTR waarden voor oppervlaktewater. De concentratie van zeventien verschillende pesticiden en verschillende PAK overschreed één of meerdere keren het MTR niveau. De concentratie van tweeëntwintig verschillende pesticiden en een aantal PAK overschreed de norm voor drinkwater van 100 ng/liter. Het is niet duidelijk in hoeverre deze belasting van het oppervlaktewater ook werkelijk leidt tot effecten. De gemiddelde concentratie van stoffen in het oppervlaktewater is door allerlei processen zoals afbraak en hechting aan sediment doorgaans lager dan die in neerslag.

Berekeningen met een eenvoudig computermodel voor enkele stoffen, waarmee processen in water kunnen worden gesimuleerd, laten zien dat de gemiddelde depositieniveaus niet snel zullen leiden tot voortdurende overschrijding van het MTR niveau in oppervlaktewater. Voor een aantal pesticiden, waarvan de gehele jaardosis nog al eens in betrekkelijk korte perioden worden gebruikt, is de situatie anders. De piekbelasting die in (bron)gebieden gedurende enkelen maanden wordt aangetroffen zou echter in sommige watersystemen wel tot overschrijding van normen kunnen leiden<sup>1</sup>.

Op locaties dichterbij grote bronnen of brongebieden kan de concentratie, als gevolg van atmosferische depositie, hoger worden. Het onderzoek van Baas en Bakker (1996) naar het effect van

---

<sup>1</sup> Op basis van het hier gepresenteerde meetgegevens wordt door het onderzoeksbureau ALTEERRA in samenwerking met het RIVM onderzocht in hoeverre atmosferische depositie leidt tot effecten in het oppervlaktewater. De uitkomsten van dit onderzoek zullen aan het einde van het jaar 2002 beschikbaar komen.



emissies uit de glastuinbouw liet dit al zien Zoals eerder vermeld richt het huidige onderzoek zich echter op de *landelijke* schaal. De meetlocaties zijn alle gelegen op zo groot mogelijke afstand van bronnen. Dichterbij bronnen kan de concentratie veel hoger zijn. In een uitgewerkt voorbeeld (Bijlage V) was de concentratie op één km afstand van een bron vijftig keer zo hoog als op tien kilometer afstand van de bron.

#### *Vergelijking met de belasting door andere bronnen*

Op landelijke schaal is de belasting van het oppervlaktewater met pesticiden vergelijkbaar met die door drift en laterale uitspoeling. Uit de metingen blijkt dat gemiddeld 0,1% van de hoeveelheid gebruikte werkzame stof door atmosferische depositie het oppervlaktewater terecht komt (zie Bijlage IX), terwijl de belasting via de genoemde andere routes 0,22% is. Voor enkele stoffen zoals *propachloor* en *vinclozolin* is depositie naar water, met ongeveer één procent van het gebruik, zelfs hoog te noemen.

De schatting van de belasting van de bodem is erg onzeker. De uit de metingen afgeleide depositie naar bodem zou gelijk zijn aan ruwweg 0,2 tot 0,3% van het gebruik.

Er zijn echter belangrijke verschillen tussen het effect van atmosferische belasting en bijvoorbeeld drift. Voor afgelegen natuurgebieden (terrestrisch en niet-terrestrisch) is de atmosfeer de enige bron! Mogelijke effecten in deze gebieden worden dus uitsluitend veroorzaakt door atmosferische depositie van bronnen verder weg. In sommige gevallen gaat het hierbij zelfs om bronnen in het buitenland. Een ander verschil is dat de belasting door drift terechtkomt op een relatief klein wateroppervlak dicht bij de bron. De atmosferische depositie zoals die uit de metingen wordt afgeleid, komt terecht op het volledig Nederlands wateroppervlak. Drift leidt tot hoge concentratie in een klein gebied rondom de bron. De hier gemeten, grootschalige atmosferische depositie leidt tot een, relatief lage, concentratie in alle wateren in Nederland. De totale hoeveelheid materiaal die het oppervlaktewater in Nederland bereikt is echter voor beide routes van dezelfde orde van grootte.

Tabel 14 en Tabel 15 geven een overzicht van de depositie van een aantal stoffen en stofgroepen naar het IJsselmeer en naar het Nederlands oppervlaktewater. Deze gegevens zijn afkomstig uit de Jaarrapportages van de Hoofdinspectie Milieuhygiëne (Koch et al., 2001, van Harmelen et al., 2001).

Voor alle stoffen is de gemeten belasting door atmosferische depositie van dezelfde orde van grootte als de directe belasting en de belasting via effluenten. Voor *HCB*, *PCB's* en *pentachloorfenol* is de atmosferische route veruit de belangrijkste.

Tabel 14 Belasting van het IJsselmeergebied vanuit verschillende bronnen in het jaar 1998 in kg/ jaar (Koch et al. 2001 aangegeven met <sup>1)</sup>) vergeleken met de gemeten depositie.

	Direct <sup>1)</sup> (1998)	Atmosferische depositie <sup>1)</sup>	Effluenten <sup>1)</sup>	Atmosferische depositie (metingen)	
				2000	2001
Benzo[a]pyreen	81,9	124	0,16	48	18
Fluoranteen	219	2120	0,936	560	419
PAK (6 van Borneff)	407	2250	1,35	880	558
HCB	0,00024	-	-	2	1
PCB (som van 10)	0	-	0,00000635	8,1	5,5
PCP	0,00143	-	0,698	26	23

Tabel 15 Belasting van het Nederlands oppervlaktewater vanuit verschillende bronnen in het jaar 1998 in kg jaar (van Harmelen et al. 2001 <sup>2)</sup>) vergeleken met de gemeten depositie naar heel Nederland (oppervlakte 5421 km<sup>2</sup>, dat is exclusief de Waddenzee).

	Direct <sup>2)</sup> (1999)	Atmosferische depositie <sup>2)</sup>	Effluenten <sup>2)</sup>	Atmosferische depositie (metingen)	
				2000	2001
Benzo[a]pyreen	417	273	15,6	116	58
Fluoranteen	1700	2920	89,8	1671	1378
PAK (6 van Borneff)	2890	3200	187	2426	1836
HCB	0,266	-	0,154	4	4
PCB (som van 10)	0	-	0,00075	30	13
PCP	1,26	-	63,3	74	54

Een gedeelte van de depositie op bodem zal ook via uitspoeling of afspoeling in het oppervlaktewater terecht kunnen komen. Schattingen van de bijdrage van deze *indirecte depositie* via uit- en afspoeling van bodem zijn relatief onzeker. In de hier gepresenteerde schattingen is de bijdrage van deze indirecte belasting niet meegenomen. De bijdrage van de indirecte depositie is volgens een eerste schatting (voor het beheersgebied van ZHEW) van dezelfde orde van grootte als de directe atmosferische depositie. De waargenomen depositie zou dus verdubbeld kunnen worden door de bijdrage van de indirecte depositie.

#### *Vergelijking met andere schattingen*

In het kader van de recentelijk uitgevoerde MJP-G evaluatie zijn ook berekeningen van de belasting van het oppervlaktewater door atmosferische depositie uitgevoerd. In deze berekeningen werden de berekeningen uitgevoerd voor alle in Nederland gebruikte stoffen. Bovendien werd de emissies volgens een afwijkende procedure over het land verdeeld. Gemiddeld over alle stoffen zou 0,01% van de gebruikte hoeveelheid actieve stof door atmosferische depositie in het Nederlands oppervlaktewater terechtkomen. Dit is een veel lagere waarde dan nu blijkt uit de hier gepresenteerde metingen. De in de MJP-G berekeningen gebruikte fysisch-chemische eigenschappen zijn mogelijk niet representatief voor het middelenpakket in het huidige onderzoek. Dit verklaart waarschijnlijk het verschil tussen de huidige resultaten en de resultaten uit de MJP-G evaluatie.

In de hierboven gegeven schattingen uit de rapportages van Hoofdinspectie Milieuhygiëne worden in de Emissiemonitor voor enkele stoffen schattingen van de depositie gepresenteerd. De daar geschatte atmosferische depositie naar het Nederlands oppervlaktewater is doorgaans een factor drie tot vier hoger dan de uit de metingen voor enkele PAK afgeleide depositie.

#### *Ontwikkelingen van de depositie in de laatste jaren en het toelatingsbeleid*

Voor veel stoffen lijkt de thans gemeten depositie aanzienlijk lager dan de 10 jaar geleden geschatte depositie. De uit de metingen afgeleide depositie is doorgaans lager dan de voor het jaar 1990 met verspreidingsmodellen berekende atmosferische depositie op Nederland. Voor PAK en PCB's is de huidige depositie respectievelijk een factor vier en een factor twee lager dan voor het jaar 1990 werd geschat. De deposities van *endosulfan*, *lindaan* en *trifluralin* verschillen echter een factor 10 tot 50. Opvallend zijn verder lage waarden voor de depositie van *parathion-ethyl*, *mevinfos*, *pentachloorfenol*, *simazine*, *bentazon* en *atrazin*. In Duyzer en Vonk (2001) is uitgebreid ingegaan op deze verschillen. Één van de oorzaken van dit verschil is het sterk gedaalde verbruik van juist die stoffen die tijdens de eerste studie in de belangstelling stonden. Het gebruik van een aantal van deze stoffen is, als gevolg van beleidsmaatregelen, afgenomen. An-

dere stoffen worden nu in plaats daarvan gebruikt. In de MJP-G evaluatie wordt over de betrokken periode ook een daling van het totale volume aan werkzame stoffen genoemd. Het is niet geheel duidelijk in hoeverre deze afname ook maatgevend is voor de hier bestudeerde stoffen. In Duyzer en Vonk (2001) werd al geïllustreerd dat deze daling ook van belang is voor stoffen zoals *azinphos-methyl*, *bentazon*, *parathion*, *lindaan* en *simazine*. Het toelatingsbeleid heeft duidelijk ook een grote invloed op het voorkomen van stoffen in neerslag. Een illustratie daarvan is de waargenomen daling in de concentratie van *dichloorvos* in de neerslag verzameld in Zuid Holland. Deze daling sinds 1990 loopt parallel met de daling in het voorkomen van deze stof in het oppervlaktewater (Duyzer et al. 2001).

Afgezien van deze trend worden nog regelmatig niet toegelaten stoffen aangetroffen. Het betreft hier stoffen zoals *atrazin*, *endosulfan*, *propachloor*, *trifluralin* en *mevinvos*. Deze stoffen werden alle in 2001 in neerslag aangetroffen. Voor *atrazin*, dat vanaf het jaar 2000 niet is toegelaten in Nederland, *trifluralin* en *lindaan* lijken ook bronnen in het buitenland een belangrijke bijdrage te leveren.

### 4.3 Vergelijking met modelberekeningen

Voor twintig stoffen, die regelmatig werden aangetroffen, zijn ook berekeningen uitgevoerd met het OPS model op basis schattingen van de emissie naar lucht. Voor ruim 40% van deze stoffen verschilden de berekende en de gemeten natte depositie minder dan een factor twee en was er een goede correlatie tussen de gemeten en berekende depositie. Dit geeft aan dat de schattingen die gemaakt zijn van de grootte van de emissie en de verdeling over het land en de berekeningen van de verspreiding door de atmosfeer redelijk goed zijn. Voor enkele stoffen (bijna 40%) werd de verdeling over het land goed voorspeld maar werd de emissie of omzettingsprocessen in de lucht over dan wel onderschat. Daardoor was de gemiddelde depositie sterk over of onderschat. De overeenkomst tussen de gemeten en berekende natte depositie verschilde tot een factor tien voor *dichlobenil*, *DNOC* en *triallaat*. De conclusie lijkt gerechtvaardigd dat het model in principe goed, dat wil zeggen binnen een factor twee, in staat is de concentratie en depositie van stoffen te berekenen. Voorwaarde is in ieder geval dat goede schattingen van de emissie voorhanden zijn.

De berekende depositie van *fluoranteen* (een gasvormige PAK) en voor *benzo[a]pyreen* verschilde ook aanzienlijk van de gemeten depositie. Het model onderschat de gemeten depositie van *benzo[a]pyreen* met een factor drie. De natte depositie van *fluoranteen* wordt door het model met een factor twee overschat.

In het kader van de recentelijk uitgevoerde MJP-G evaluatie zijn ook berekeningen van de belasting van het oppervlaktewater door atmosferische depositie uitgevoerd. Deze berekeningen werden uitgevoerd voor alle in Nederland gebruikte stoffen. Bovendien werd de emissies volgens een afwijkende procedure over het land verdeeld. Gemiddeld over alle stoffen zou 0,01% van de gebruikte hoeveelheid actieve stof door atmosferische depositie in het Nederlands oppervlaktewater terechtkomen. Dit is bijna een factor tien lagere waarde dan nu blijkt uit de hier gepresenteerde metingen. De in de MJP-G berekeningen gebruikte fysisch-chemische eigenschappen zijn waarschijnlijk niet representatief voor het middelenpakket in het huidige onderzoek. Dit verklaart waarschijnlijk het verschil tussen de huidige resultaten en de resultaten uit de MJP-G evaluatie.

### *De bron van de depositie*

Modelberekeningen maken het mogelijk aan te geven welke bronnen in welke mate bijdragen aan de depositie. Op basis van het gedetailleerde bestand van emissies dat voor de huidige studie beschikbaar was, is een berekening gemaakt van de bijdrage van de verschillende brongebieden in Nederland aan de depositie. Een analyse van de bijdrage van verschillende brongebieden aan de depositie in verschillende waterbeheersgebieden laat zien dat deze bijdrage sterk samenhangt met de ligging van de bron ten opzichte het betrokken waterkwaliteitsgebied. Er zijn grofweg twee patronen te herkennen. De hoogste depositie van *dichloorvos*, een stof gebruikt in kassen, treedt op in Delfland een gebied met veel kassen. Voor heel Nederland is de emissie uit dit gebied de belangrijkste bron en leidt ze tot overschrijdingen van het MTR voor oppervlaktewater in neerslag. De depositie van *chloorthalonil*, een veel gebruikte stof in aardappelen, is heel weer anders over het land verdeeld. De depositie is bij deze stof ook het hoogst in de specifieke aardappelgebieden in Groningen en Zeeland. In de meeste gevallen komt de grootste bijdrage echter uit de eigen provincie.

De goede overeenkomst tussen de berekende en gemeten concentratie van *atrazin* is opnieuw een aanwijzing dat de depositie van deze, in Nederland niet toegelaten, stof veroorzaakt wordt door emissies in het buitenland. Bij de berekeningen werd er van uitgegaan dat de stof niet in Nederland wordt gebruikt.

## **4.4 Aanbevelingen voor het vervolg**

In deze paragraaf wordt ingegaan op de noodzaak en het doel van vervolgonderzoek en de mogelijkheden de resultaten van het onderzoek in te passen in het beleid gericht op verbetering van de kwaliteit van het oppervlaktewater.

### *4.4.1 Aanbevelingen voor het verder onderzoek*

De hier afgeleide waarden voor de depositie zijn afgeleid uit metingen op achttien stations verspreid over het land. Daardoor ontstaat een representatief beeld van de depositie naar Nederland. Door het gebruik van metingen is de kwaliteit van de schatting van belasting relatief hoog in vergelijking tot de, in het verleden gemaakte, schattingen op basis van modelberekeningen. De onzekerheid in de berekende belasting van het oppervlaktewater werd geschat op een factor 5-10. In dit onderzoek is de depositie voor het eerst ook op basis van metingen vastgesteld. Uit een vergelijking tussen metingen en modelberekeningen blijkt dat het model in staat is de natte depositie vaak binnen een factor twee te schatten. De conclusie lijkt daarmee gerechtvaardigd dat de depositie met de huidige methoden goed kan worden vastgesteld. Verbetering van de kwaliteit kan, voor wat betreft de kwaliteit van de metingen, nog worden bereikt door:

- Verbetering van de gevoeligheid van de chemische analyse  
Een verbetering van de nauwkeurigheid kan voor een aantal stoffen nog wel worden bereikt door verhoging van de gevoeligheid van de chemische analyse voor enkele stoffen. Voor de meeste stoffen is de nauwkeurigheid echter voldoende. Voor de polaire pesticiden is de gevoeligheid te laag.
- Vergroting van de kennis over de droge depositie  
Een onzekere grootte is de waarde van de droge depositiesnelheid naar bodem, vegetatie en oppervlaktewater. De droge depositie wordt nu afgeleid uit metingen van concentratie in lucht en een schatting van de depositiesnelheid. De onzekerheid in deze depositiesnelheid is vrij groot en er is behoefte aan validatie van de schattingen. De aandacht voor de belasting van terrestrische ecosystemen vanuit de atmosfeer is, behalve voor verzurende stoffen, zeer

beperkt. Mede daardoor is er weinig onderzoek uitgevoerd naar de onderliggende processen en is de kennis zeer beperkt.

- Vergroting van de kennis over de indirecte depositie  
In deze studie is het belang van de indirecte depositie (afspoeling enzovoort) niet meegenomen. De onzekerheid in het belang van dit proces is erg groot terwijl de bijdrage aan de belasting mogelijk groot is. Afhankelijk van allerlei factoren zou de afspoeling van de depositie van verhard oppervlak groot kunnen zijn.
- Verbetering van de schatting van de depositie op de Noordzee.  
De schatting van de depositie op de Noordzee is nu geschat aan de hand van metingen dichtbij de Nederlands kust. Daardoor is geen rekening gehouden met het verloop van de concentratie van de kust naar meer open zee. Verbetering van deze schattingen is mogelijk door metingen ter plaatse uit te voeren. Daarnaast zou een uitgebreide modelstudie het inzicht kunnen vergroten.

De kwaliteit van de modelberekeningen van de depositie van pesticiden kan los daarvan verbeterd te worden door verbetering in:

- Gegevens van de emissie van pesticiden in het buitenland. De op dit moment gemaakte schattingen zijn voornamelijk gebaseerd op gegevens over de Nederlandse landbouw. Goede gegevens over het gebruik in het buitenland ontbraken.
- De kwaliteit van fysisch chemische parameters zoals de Henry-constante en de dampspanning. Vooral voor laag vluchtige verbindingen is de onzekerheid over de dampspanning groot. De kennis over de omzettingssnelheid van stoffen in de atmosfeer is erg beperkt. Dit leidt tot grote onzekerheden over de bijdrage van de belasting met stoffen vanuit bronnen in het buitenland.
- Zoals hierboven al genoemd is er behoefte aan kennis over het proces van de droge depositie en de indirecte depositie.

In het hier gepresenteerde onderzoek zijn bijzonder veel gegevens verzameld. De analyse van de gegevens is zeer tijdrovend en heeft zich gericht op hoofdzaken. Er is zeker ruimte voor een meer gedetailleerde, wetenschappelijke analyse van de meetgegevens. Bij een uitgebreide analyse zouden uiteraard modelberekeningen een rol kunnen spelen. Startpunt van deze activiteit zou kunnen zijn een nadere analyse van de oorzaak van de verschillen tussen de gemeten en berekende deposities zoals die voor enkele stoffen wordt aangetroffen.

#### 4.4.2 *Monitoren van atmosferische depositie van organische verbindingen in de toekomst*

De, in deze studie vastgestelde, omvang van atmosferische depositie als diffuse bron voor het oppervlaktewater lijkt zodanig groot dat verwacht mag worden dat er behoefte blijft bestaan aan gegevens over het belang van dit proces. Op basis van de vergelijking tussen de resultaten van modelberekeningen en metingen lijkt de conclusie bovendien gerechtvaardigd dat geschikte modellen beschikbaar zijn. Het blijkt daarnaast technisch goed mogelijk door metingen de depositie op landelijke schaal te bepalen. De kosten van het meetprogramma zijn redelijk te overzien.

Voor het ontwikkelen van een strategie gericht op het monitoren van depositie in de komende jaren staan dus zowel metingen als modelberekeningen ter beschikking. Voor het ontwikkelen van een dergelijke strategie, zijn vooral het concrete doel en de mogelijke kosten in relatie tot beschikbare budgetten van belang. Een combinatie van modelberekeningen en metingen ligt voor de hand. Een meetprogramma zou dan gericht kunnen zijn op het in kaart brengen van de verdeling van de depositie over het land en het volgen van ontwikkelingen in het pakket aan

bestrijdingsmiddelen. Modelberekeningen zouden gebruikt kunnen worden om regionaal de depositie in relatie tot emissies en de ontwikkelingen daarin in kaart te kunnen brengen. In een recent uitgevoerde onderzoek ten behoeve van het RIZA is door TNO een strategie uitgewerkt gericht op de informatiebehoefte van waterkwaliteitsbeheerders (Duyzer *et al.* 2002). Ook voor de informatiebehoefte op de nationale schaal kunnen drie sporen worden onderscheiden:

- Modelberekeningen voor heel Nederland  
Voorgesteld wordt berekeningen met een verspreidingsmodel in een formeel traject uit te voeren op basis van gegevens over de emissie naar lucht. Deze gegevens kunnen worden verkregen op basis van de Emissieregistratie. Schattingen van de emissies van pesticiden zouden daarin kunnen worden opgenomen. Ook de uitkomsten van de berekeningen worden opgenomen in de Emissieregistratie. Het voordeel van deze formele aanpak is dat de kwaliteit van de gegevens vastligt en gehandhaafd blijft. Een resolutie van de gegevens op 5 bij 5 km schaal maakt het mogelijk voor elke waterkwaliteitsbeheerder gegevens te verzamelen.
- Meting van de depositie op landelijke schaal  
Dit spoor is vooral belangrijk voor pesticiden. Doordat het middelpakket voortdurend verandert zijn metingen noodzakelijk om ontwikkelingen vast te stellen en te volgen. Daarnaast kunnen metingen een belangrijke rol spelen om de effecten van beleid in het gebruik in binnen- en buitenland te volgen. Ook zou het illegaal gebruik kunnen worden opgespoord. Voor het verkrijgen van een landelijk beeld zou de inspanning beperkt kunnen blijven tot enkele meetstations. De grote verschillen in de depositie over Nederland zouden waarschijnlijk goed in beeld gebracht kunnen worden door een verdeling van vijf stations volgens een dobbelsteen-configuratie. Daarmee zouden grote verschillen tussen Noord/Zuid/Oost en West in kaart kunnen worden gebracht. Het is wel belangrijk op deze stations een uitgebreid pakket stoffen met hoge gevoeligheid te monitoren en het pakket regelmatig aan te passen aan de ontwikkelingen. De belasting van specifieke regio zou geschat kunnen worden op basis van modelberekeningen uitgaande van gedetailleerde schattingen van de emissie. Aan de hand van modelberekeningen kan in ieder geval een redelijke schatting worden gemaakt.
- Meting van de depositie op regionale schaal  
Bij behoefte aan gegevens op regionale schaal kunnen enkelvoudige meetstations worden ingericht. Hierbij kan het middelenpakket specifiek worden vastgesteld. Aansluiting met de landelijke meetactiviteiten maakt vergelijking van resultaten mogelijk.

#### *Andere stoffen*

Het thans afgeronde onderzoek was vooral gericht op organische verbindingen met de nadruk op persistente verbindingen en pesticiden. Uit het onderzoek van Baart *et al.*, (1995) kwam al naar voren dat ook voor andere stoffen de belasting uit de atmosfeer belangrijk kan zijn. Bovendien zijn er recente aanwijzingen dat de atmosferische depositie van bijvoorbeeld zink hoger is dan eerder werd verondersteld (Smolders, 2002). Ook de belasting van het oppervlaktewater met organische verbindingen die in het huidige onderzoek niet werden betrokken zou belangrijk kunnen zijn. Hamers (2002) toonde met behulp van bio-essays aan dat neerslag oestrogene potentie kan hebben. Deze potentie bleek gerelateerd te kunnen worden aan de aanwezigheid van *organochloor* bestrijdingsmiddelen. De betekenis van deze onderzoekresultaten is nog onderwerp van nadere studie.

Ook over de grootte van de belasting van het oppervlaktewater vanuit de atmosfeer met nutriënten is nog relatief weinig bekend. Het effect van de atmosferische depositie van ammoniak op afgelegen wateren zoals vennen is inmiddels uitvoerig gedocumenteerd (Heij en Schneider, 1991). In recentelijk gerapporteerd onderzoek wordt gesuggereerd dat de belasting van estuaria

en kustwater met nutriënten vanuit de atmosfeer een belangrijk effect kan hebben (Paerl, 2002). Er wordt een invloed gesuggereerd op bekende effecten zoals algenbloei en zelfs uiteindelijk een verlies aan biodiversiteit. In hoeverre de resultaten van dit Noordamerikaans onderzoek ook in Noord-Europa van belang zijn is vooralsnog onduidelijk.

Het lijkt zinvol in de nabije toekomst een inventariserende studie uit te voeren naar het belang van de depositie van metalen, oestrogeen actieve verbindingen en nutriënten voor de kwaliteit van het oppervlaktewater.

#### 4.4.3 *Atmosferische depositie in het toelatingsbeleid*

De belasting van het Nederlands oppervlaktewater via atmosferische depositie met pesticiden blijkt van dezelfde orde van grootte is als de belasting via drift en laterale uitspoeling. De bijdrage van de indirecte depositie kan de belasting nog aanzienlijk verhogen.

Een belangrijk verschil is wel dat alle belasting door drift plaatsvindt op een relatief klein wateroppervlak terwijl de atmosferische depositie in heel Nederland plaatsvindt. Belasting door drift zal daardoor sneller leiden tot hoge concentraties en normoverschrijding. Atmosferische depositie zorgt voor een relatief lage belasting van grote gebieden. Het gemiddelde niveau zal daardoor niet snel leiden tot normoverschrijdingen in die gebieden. Tegelijkertijd laten de metingen zien dat in concentratiegebieden, in perioden waarin de stoffen gebruikt worden, de depositie wel een factor tien hoger kan zijn. Hoewel hiernaar in de huidige studie geen onderzoek is gedaan is het duidelijk dat nog dichterbij de bron, binnen enkele kilometers van bronnen of brongebieden, de concentratie en depositie nog veel hoger zou kunnen zijn.

Atmosferische depositie lijkt dus een belangrijke diffuse bron voor het oppervlaktewater. Hoge belastingen in bepaalde perioden in brongebieden leiden waarschijnlijk tot overschrijding van MTR niveaus. Gezien deze situatie lijken de argumenten aanwezig om atmosferische depositie bij het toelatingsbeleid te betrekken. Er lijken goede mogelijkheden de thans beschikbare kennis geschikt te maken als instrument voor de toelatingsbeoordeling.

Een pilotstudy naar de mogelijkheden atmosferische depositie in het toelatingsbeleid op te nemen lijkt zinvol. Onderzocht zou kunnen worden in hoeverre fysisch chemische parameters in de praktijk het transport over middenlange afstanden beïnvloeden en welke aspecten hier verder van belang zijn. Het onderzoek zou zich kunnen richten op de middenlange afstand van de bron tot de directe omgeving van de bron tot honderden kilometers. Depositie in de directe omgeving van de bron is in de huidige studie niet nader onderzocht. De depositie is hier waarschijnlijk veel hoger dan op de huidige meetstations. De kans dat in de directe omgeving van bronnen, binnen enkele kilometers overschrijdingen van normconcentraties optreden en effecten optreden is veel groter dan op landelijke schaal. Het lijkt verder nuttig een aantal realistische situaties uitgebreid door te rekenen.

#### *Beperking van atmosferische depositie*

De vraag is in hoeverre de depositie van gewasbeschermingsmiddelen beperkt zou kunnen worden. Een uitvoerige bespreking van de mogelijkheden valt buiten het bestek van deze studie. Een studie naar de mogelijkheden werd al eerder uitgevoerd door het CLM (Boland en Leendertse, 1999). Daarom wordt op deze plaats volstaan met enkele opmerkingen van algemene aard. Een belangrijk gegeven is allereerst dat de depositie vrijwel recht evenredig met de emissie naar lucht. Daarnaast laten de modelberekeningen zien dat de depositie in de verschillende waterkwaliteitsgebieden vaak gerelateerd kan worden aan emissies in de omgeving (binnen de provincie). Beperkingen in het gebruik en de emissie in Nederland leiden daardoor rechtstreeks tot vermindering van de depositie. Keuze voor stoffen met een kortere verblijftijd in lucht, bijvoorbeeld veroorzaakt door een hogere omzettingssnelheid, leidt ook tot vermindering van de depo-

sitie. Bij de toelating van pesticiden zou daarom rekening gehouden kunnen worden met de verblijftijd in lucht. Dit is echter een complexe materie waarbij veel basisgegevens ontbreken. In de directe omgeving van de bron, op een schaal van tientallen kilometers waar de depositie het hoogst is, zal bovendien het effect van een hoge omzettingssnelheid (ofwel een lage verblijftijd in lucht) relatief beperkt zijn. Het voordeel van stoffen met een hoge omzettingssnelheid treedt vooral op grotere afstanden van de bron op.

Voor een aantal, in Nederland niet langer toegelaten, stoffen spelen bronnen in het buitenland een belangrijke rol. Het in Nederland uitgevoerde beleid heeft geen invloed op de bijdrage van deze bronnen. Hier zou het internationaal toelatingsbeleid een rol moeten spelen.





## 5. Referenties

- [1] Atkinson, R. 1991.  
Kinetics of the gas-phase reactions of a series of organosilicon compounds with OH and NO<sub>3</sub> radicals and O<sub>3</sub> at 297 ± 2K. Environ. Sci. Technol. 25: 863-6.
- [2] Baart, A.C., Berdowski, J.J.M., Van Jaarsveld, J.A. (1995)  
TNO Rapport R95/138\*. Calculation of atmospheric deposition of contaminants over the North Sea.
- [3] Baas, J. en Duyzer, J.H., (1997)  
Pesticidenconcentraties in lucht en regenwater. Pilotstudie naar concentraties pesticiden in lucht en regenwater in Naaldwijk, de Zilk, en meetpost Noordwijk.  
TNO-MEP – R97/113.
- [4] Bakker, D.J., en van den Hout, K.D., (1993)  
De invloed van atmosferische depositie op de kwaliteit van bodem en oppervlaktewater in Nederland. Beschrijving rekenmethode en berekeningsresultaten. TNO-rapport IMW-R93/200.
- [5] Baas, J. en D.J. Bakker (1996)  
Blootstelling aan pesticiden: Concentraties lucht, bodem, water en vegetatie door emissie uit de glastuinbouw.  
TNO rapport R96/313.
- [6] Beeltje, H., (2002)  
Bepaling pesticiden, PAK en PCB in oppervlaktewater- en grondmonsters.  
TNO-MEP TR 02/271.
- [7] Brandes, L.J., H.den Hollander, D. van de Meent, (1996)  
SimpleBox 2.0: a nested multimedia fate model for evaluating the environmental fate of chemicals. RIVM report no. 719101029.
- [8] Bleeker, A, J.H. Duyzer (2002)  
Belasting van het oppervlaktewater in het beheersgebied van het Zuiveringsschap Hollandse Eilanden en Waarden ten gevolge van atmosferische depositie.  
TNO-MEP rapport R2002/231.
- [9] Boland, D. en P.C. Leendertse (1999)  
Minder bestrijdingsmiddelen de lucht in.  
CLM Utrecht, CLM422.
- [10] Duyzer, J., R. Plant, R. Merkelbach, P. Leendertse, D. Boland (2001)  
Bestrijdingsmiddelen in Zuid Holland; Concentraties in bodem, water lucht en bodemfauna.  
TNO-MEP, CLM, Alterra.  
Rapport R2001/178, TNO-MEP, Apeldoorn.

- [11] Duyzer, J.H. R.A.J. Plant, A. Bleeker (2002)  
Bepaling van emissies naar water door atmosferische depositie  
TNO-MEP rapport R2002/268 Apeldoorn.
- [12] Duyzer, J.H., J.Baas, M. Hertoghs (1998)  
Een programma om in de behoefte aan gegevens over atmosferische depositie van POP te voorzien  
TNO-MEP Rapport R98/040.
- [13] Duyzer, J.H., Peters, R.J.B., en Heidema, L.F., (1999)  
De depositie van POP in Nederland. Verslag van de voorbereidingsfase.  
TNO-MEP rapport 99/397.
- [14] Duyzer, J.H. (2000a)  
Bepaling van de atmosferische depositie van pesticiden, PCB's, PAK op twee locaties aan het IJsselmeer. Eerste tussenrapport  
TNO-MEP-R2000/422.
- [15] Duyzer, J.H. (2000b)  
De depositie van POP in Nederland: Verslag van het eerste halfjaar van het meetprogramma. TNO-MEP rapport R2000/230.
- [16] Duyzer, J.H. en Vonk, A.W (2001)  
Atmosferische depositie van POP in Nederland: Resultaten van de metingen in het jaar 2000  
TNO-MEP rapport R2001/307.
- [17] Hamers, T. (2002)  
Toxic potency and effects of diffuse air pollution  
PhD Thesis University of Wageningen, Netherlands 90-5808-7-9-3.
- [18] Harmelen, A.K., W.W.R. Koch, P.W.H.G. Coenen, J.C. van den Roovaart, C.S.M. Olsthoorn (2001)  
Emissiemonitor  
Jaarcijfers 1999 en ramingen 2000 voor emissies en afval  
Rapportagereeks Doelgroepmonitoring Nummer 9, mei 2001  
Hoofdinspectie Milieuhygiëne, Den Haag.
- [19] Heij, G.J. and T. Schneider (1991)  
Summary of Acidification Research in the Netherlands  
In: Acidification Research in the Netherlands, G.J. Heij and T. Schneider (editors), Elsevier, Amsterdam. 3-24.
- [20] Junge, C.,E., (1977)  
Basic considerations about trace constituents in the atmosphere as related to the fate of global pollutants, *in* Suffet, I.H., ed., Fate of pollutants in the air and water environments: John Wiley and Sons, New York, p 7-25.
- [21] Koch, W.W.R., A.K. van Harmelen, G.P.J. Draaijers (2001)  
Emissies in Nederland per regio

Jaarrapport 1998 en ramingen 1999  
Rapportagereeks MilieuMonitor Nummer 2, november 2001  
Hoofdinspectie Milieuhygiëne, Den Haag.

- [22] de Nie, D.S. (2002)  
Emissie-evaluatie MJP-G 2000  
RIVM rapport 716601 004.
- [23] Pankow, J.F., (1987)  
Review and comparative analysis of the theories on partitioning between the gas and aerosol particulate phases in the atmosphere. *Atmospheric Environment*. V. 21. no 11, p 2275-2283.
- [24] Paerl, H.W. (2002)  
Connecting atmospheric nitrogen deposition to Coastal Eutrophication  
*Environmental Science and Technology* (August), 323- 326A.
- [25] Smulders, L. (2002)  
Prevent diffuse waterpollution  
Proceedings of the 6<sup>th</sup> International Conference on Diffuse pollution, Amsterdam 30 september- 4 oktober 2002.
- [26] Warmenhoven, J.P., J.A. Duiser, L.T. de Leu, C. Veldt (1989a)  
De bijdrage van atmosferische depositie aan de verontreiniging van de Nederlandse bodem en het Nederlandse oppervlaktewater  
IMW-TNO rapport R 89/385 Delft.
- [27] Warmenhoven, J.P., J.A. Duiser, L.T. de Leu, C. Veldt (1989b)  
The contribution of the input from the atmosphere to the contamination of the North Sea and the Dutch Wadden Sea, TNO report R89/349A, 1989.
- [28] Zalinge, J.van. (2001)  
Bestrijdingsmiddelen in neerslag in Zuid-Holland 1998  
Rapportage van de provincie Zuid-Holland.



## 6. Verantwoording

Naam en adres van de opdrachtgever:

Stichting Toegepast Onderzoek Waterbeheer (STOWA), Utrecht  
Provincie Noord-Holland, Haarlem  
Ministerie van Verkeer en Waterstaat, Directoraat-Generaal Rijkswaterstaat, Rijksinstituut voor Kust en Zee (RIKZ), 's Gravenhage  
Ministerie van Verkeer en Waterstaat, Directoraat-Generaal Rijkswaterstaat, Rijksinstituut voor Integraal Zoetwaterbeheer en Afvalwaterbehandeling (RIZA), Lelystad  
Ministerie van Verkeer en Waterstaat, Directoraat-Generaal Rijkswaterstaat, Directie IJsselmeergebied, Lelystad  
Ministerie van Volkshuisvesting, Ruimtelijke Ordening en Milieubeheer, 's Gravenhage  
Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu, Bilthoven  
TNO Doelfinanciering LNV en V&W

Namen en functies van de projectmedewerkers:

Jan Duyzer	Projectleider
Roel Plant	Database ontwikkeling
Anne Wim Vonk	Verwerking meetgegevens, rapportage
Albert Bleeker	Modelberekeningen
Hilbrand Weststrate	Monsterneming
Bert Heidema	Opzet en organisatie monsterneming
Henk Verhagen	Monsterneming
Andre Cinjee	Monsterneming
Teun Hofman	Monsterneming
Ruud Peters	Leiding chemische analyse
Henry Beeltje	Chemische analyse
Sasja Walraven	Chemische analyse
Alex van Renesse	Chemische analyse


Namen van instellingen waaraan een deel van het onderzoek is uitbesteed:

Omegan, Amsterdam

Datum waarop, of tijdsbestek waarin, het onderzoek heeft plaatsgehad:

januari 1999 - oktober 2002

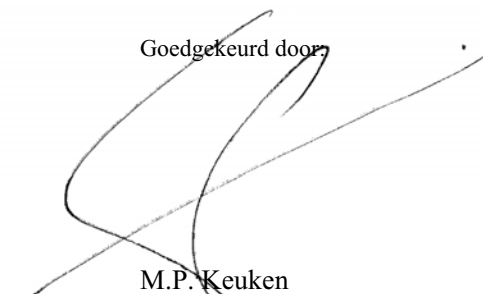
Ondertekening:



J.H. Duyzer  
projectleider

STOWA

Goedgekeurd door:



M.P. Keuken  
afdelingshoofd



## Bijlage I Depositiesnelheid

De droge depositiesnelheid van stoffen is sterk afhankelijk van meteorologische condities en de ondergrond waarop de depositie plaatsvindt. Uitwisseling naar het oppervlak vanuit de atmosfeer vindt eerst plaats via turbulente bewegingen, en dicht boven het oppervlak wordt de uitwisseling geregeld door moleculaire diffusie door een laminaire laag boven dit oppervlak. Dit proces is limiterend in de uitwisseling naar het oppervlak, en verloopt verschillend voor water en bodem.

### *Depositie naar oppervlaktewater*

Voor depositie naar water is de oplosbaarheid van een stof een belangrijke factor. Stoffen met een hoge oplosbaarheid deponeren gemakkelijk op wateroppervlakken. Opname in het water wordt dan vrijwel alleen gelimiteerd door de weerstand in de luchtlaag boven dat water. Depositiesnelheden zijn dan in de orde van 0,4 centimeter per seconde. Wanneer stoffen slecht oplosbaar zijn, belemmert dat de opname in water en neemt de depositiesnelheid af. Een stof als chloorthalonil is slecht oplosbaar; er kan ongeveer 0,6 milligram van de stof oplossen per liter water. De Henrycoëfficiënt ( $H$ ) van die stof, die benaderd kan worden door ratio van de dampdruk ( $P_i$ ) van die stof en de oplosbaarheid ( $S$ ), is hoog. De berekende depositiesnelheid ( $V_d$ ) van chloorthalonil naar een wateroppervlak ligt in de orde van 0,1 centimeter per seconde. Deze depositiesnelheid is berekend volgens Liss and Slater, (1974):

$$Flux = V_d \left( C_l - \frac{H}{RT} C_w \right)$$

waarbij

$$V_d = \frac{1}{\frac{1}{k_a} + \frac{H}{RT} \frac{1}{k_l}}$$

Hierin stelt  $k_a$  de uitwisselingscoëfficiënt naar lucht voor,  $k_l$  de uitwisselingscoëfficiënt naar water,  $R$  de specifieke gasconstante en  $T$  de luchttemperatuur in Kelvin.

### *Reëmissie*

De vergelijking laat zien hoe in het Liss en Slater model rekening wordt gehouden met de concentratie van een stof in het oppervlaktewater ( $C_w$ ). In sommige gevallen kan, wanneer de concentratie in het oppervlaktewater hoog is de richting van de flux omkeren en zelfs (re-)emissie uit het wateroppervlak optreden. Het kan daarbij gaan om stoffen die met neerslag in het oppervlaktewater terecht zijn gekomen of om stoffen die op andere wijze daarin zijn terechtgekomen. Om het belang van dit proces te onderzoeken werden in december 2000 in het kader van dit onderzoek monsters oppervlaktewater, gras en bodem genomen en onderzocht met behulp van dezelfde analyse methode als die voor de neerslagmonster wordt gebruikt (Beeltje, 2002). Voor die stoffen is de depositiesnelheid naar wateroppervlakken gecorrigeerd voor de concentratie in het water (Tabel I.1). Daaruit blijkt bij de gevonden concentraties in oppervlaktewater een aantal stoffen waarschijnlijk eerder zal verdampen uit het oppervlaktewater dan door droge depositie zal worden opgenomen.



Een goede inschatting van het belang van deze correctie voor heel Nederland is pas mogelijk op basis van een goed overzicht van de concentratie van stoffen in het oppervlaktewater. Dat overzicht ontbreekt op dit moment. De tabel illustreert alleen dat voor 2,4 D, atrazin en hexachloorbenzeen dit effect een rol kan spelen. Voor de andere stoffen ontbreken de gegevens.

Tabel I.1 Depositiesnelheid (in cm/s) van een aantal stoffen berekend uitgaande van een verwaarloosbare concentratie van de stof in oppervlaktewater (Vd1) en berekend rekening houdend met de aangetroffen concentratie (Vd2).

Stof	Vd1	Vd2
2,4-D	0,45	-210,74
atrazine	0,46	-5,16
azinfos-methyl	0,43	0,40
Bentazon	0,45	0,40
dichlobenil	0,49	0,12
hexachloorbenzeen	0,37	-51,29
MCPA	0,46	0,10
mecoprop	0,45	0,32
PCP	0,46	0,45
triallaat	0,40	0,40

#### *De depositiesnelheid naar bodem en vegetatie*

De depositiesnelheid naar bodem voor de verschillende stoffen is berekend met het model. *SimpleBox* (Van der Meent, 1993). In dit model wordt de verdeling van die stoffen tussen de componenten lucht, water, bodem en sediment berekend. Verder kan een stof gedeeltelijk gehecht aan aërosolen en gedeeltelijk in gasfase in de atmosfeer voorkomen, o.a. afhankelijk van de dampdruk van een stof en de heersende temperatuur. De depositiesnelheid van de aan aërosolen gebonden stoffen verschilt van de in gasfase voorkomende stof. Om die redenen wordt hier gesproken over een effectieve depositiesnelheid, waarin binding van een stof aan deeltjes is verdisconteerd. Belangrijke stoffeigenschappen in dit model zijn:

- $K_{ow}$  octanol -water verdelingscoëfficiënt: maat voor de affiniteit van een stof voor vet en organisch materiaal
- oplosbaarheid in water
- dampdruk
- afbraaksnelheid van de stof in lucht, water, bodem en sediment.

Voor die stoffen, die veel in neerslag- en luchtmonsters zijn aangetroffen, is een berekening van de droge en natte depositie uitgevoerd. De depositiesnelheid van deze stoffen en een aantal fysische stoffeigenschappen staan vermeld in Tabel I.2.

Tabel I.2 De droge depositiesnelheid van pesticiden naar water en bodem, berekend volgens Liss en Slater (1974) en met het SIMPLEBOX model respectievelijk.

Stofnaam	MW	log K <sub>ow</sub>	P	S	Omzetting in lucht	Vd water	Vd bodem
	g/mol		Pa	mg/L	%/hr	cm/s	cm/s
atrazin	215,7	2,6	0,00004	30	57	0,46	0,244
bentazon	240	2,3	4,6E-04	500	24	0,48	0,279
chloorprofam	214	3,4	1,3E-03	89	15	0,46	0,068
chloorpyriphosmethyl	322,5	4,7	5,6E-03	4	23	0,44	0,005
chlorthalonil	265,9	3,1	8,1E-03	1	3,7	0,12	0,004
dichlobenil	172,0	2,7	7,3E-02	18	0,07	0,52	0,006
dichloorvos	221	1,9	1,6E+00	10000	0,12	0,51	0,014
dimethoat	229,3	0,7	1,1E-03	25000	31	0,49	0,303
DNOC	198	2,4	8,7E-03	130	0,08	0,51	0,025
ethofumesaat	286	2,7	8,6E-05	80	21	0,46	0,145
fluazinam	465	5,7	5,1E-06	0,4	0,03	0,40	0,006
hexachloorbenzeen	283,8	5,7	1,5E-03	0	0,01	0,39	0,025
PCP	266,3	5,1	5,0E-02	80	0,21	0,48	0,007
pentachloorbenzeen	250,3	5,2	1,3E-01	1	0,02	0,12	0,001
pirimifos-methyl	305	1,2	1,5E-02	305	62	0,45	0,022
procymidon	284,1	3,1	1,8E-02	5	3	0,48	0,005
propachloor	212	1,8	3,1E-02	613	8,7	0,47	0,030
terbuthylazine	229,7	3,2	1,5E-04	9	3,7	0,49	0,060
tolclofosmethyl	301,1	4,6	5,7E-02	0	24	0,12	0,001
triallaat	304,7	4,3	1,6E-02	4	13	0,42	0,004
trifluralin	335,5	5,3	1,4E-02	1	9,	0,44	0,003
vinclozolin	286,1	3,0	1,6E-05	1000	12,86	0,48	0,134



## Bijlage II Concentraties in neerslag en in lucht

In deze bijlage staan de overzichten van concentraties van pesticiden, PAK's en PCB's, zoals ze zijn aangetroffen in neerslag en luchtmonsters. Gegeven worden de jaargemiddelde concentratie over alle monsters op alle meetlocaties, het percentage van de monsters waarin de stof is aangetroffen en de gemiddelde concentratie van alleen die monsters waarin de stof is aangetroffen. De gegevens voor de jaren 2000 en 2001 staan in aparte kolommen vermeld.

### Concentraties in lucht

Tabel II.1 Overzicht van het voorkomen van pesticiden in luchtmonsters in Nederland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het gemiddelde van de monsters waarin de stof is aangetroffen gegeven (- deze stof is niet meer bepaald, 0: de stof is wel bepaald, maar niet aangetroffen).

Stof	Aange- toond in lucht 2000 (%)	Aange- toond in lucht 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie > nul 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie > nul 2001 (ng/m <sup>3</sup> )
2,4-D	0	0	0,00	0,00	0,00	0,00
aldrin	0	-	0,00	-	0,00	-
atrazin	3	1	0,001	0,0002	0,05	0,02
bentazon	1	11	0,002	0,01	0,15	0,13
bitertanol	3	-	0,13	-	4,43	-
captan	3	12	0,02	0,14	0,76	1,19
chloorfenvinfos	2	1	0,002	0,001	0,08	0,09
chloorprofam	48	46	0,85	0,41	1,76	0,91
chloorpyriphos-methyl	19	14	0,002	0,001	0,01	0,01
chloorthalonil <sup>1</sup>	51	31	0,38	0,24	0,74	0,77
chloridazon (pyrazon)	2	-	0,003	-	0,17	-
deltametrin	0	-	0	-	0,00	-
demeton-S-methyl	11	-	0,02	-	0,18	-
diazinon	1	0	0,001	0,00	0,06	0,00
dichlobenil	99	96	1,57	0,99	1,59	1,04
dichloorvos	1	6	0,021	0,02	2,37	0,41
dicofol	0	-	0,00	-	0,00	-
dimethoaat	2	6	0,001	0,01	0,03	0,11
disulfoton	0	-	0,00	-	0,00	-
DNOC	28	37	0,37	0,35	1,33	1,0
endosulfan I	1	2	0,003	0,01	0,21	0,29
endosulfan II	0,4	1	0,002	0,002	0,45	0,25
endrin	6	-	0,01	-	0,15	-
epoxiconazol	6	-	0,005	-	0,08	-
ethofumesaat <sup>1</sup>	8	25	0,001	0,06	0,01	0,24
parathion-ethyl	0,4	1	0,000	0,0004	0,01	0,04
fenitrothion	0	-	0,00	-	0,00	-
fenthion	0	-	0,00	-	0,00	-
fluazinam	28	23	0,04	0,03	0,13	0,14
fluroxypyr <sup>2</sup>	11	13	0,05	0,04	0,42	0,29
fosfamidon	0	-	0,00	-	0,00	-
heptachloor	0	0,4	0,00	0,002	0,00	0,47
heptachloor epoxide	51	-	0,01	-	0,01	-
heptenofos	0	-	0,00	-	0,00	-

Stof	Aange- toond in lucht 2000 (%)	Aange- toond in lucht 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie > nul 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie > nul 2001 (ng/m <sup>3</sup> )
hexachloor-1,3-butadieen	6	-	0,002	-	0,04	-
hexachloorbenzeen	61	30	0,003	0,003	0,004	0,01
isoxaflutole	6	-	0,02	-	0,28	-
kresoxim-methyl <sup>1</sup>	19	15	0,01	0,01	0,06	0,06
lindaan	12	3	0,04	0,01	0,34	0,36
malathion	0,4	-	0,000	-	0,03	-
MCPA	3	1	0,001	0,002	0,05	0,21
mecoprop	1	2	0,000	0,003	0,01	0,12
metamitron	0	-	0,00	-	0,00	-
methiocarb	0	1	0,00	0,001	0,00	0,1
methomyl	0	-	0,00	-	0,00	-
parathion-methyl	0	-	0,00	-	0,00	-
metolachloor	6	4	0,02	0,003	0,30	0,07
mevinfos	8	4	0,004	0,01	0,06	0,15
o,p'-DDD <sup>1</sup>	5	2	0,01	0,0004	0,12	0,02
o,p'-DDE	6	-	0,004	-	0,07	-
p,p'-DDT <sup>1</sup>	0	0 (0,5)	0,00	0 (0,0002)	0,00	0 (0,04)
PCP	84	74	0,06	0,05	0,08	0,06
pentachloorbenzeen <sup>2</sup>	8	21	0,002	0,001	0,03	0,01
pirimicarb	4	2	0,001	0,001	0,02	0,05
pirimifos-methyl	-	12	-	0,94	-	7,89
prochloraz	0,4	0,5	0,000	0,001	0,01	0,18
procymidon	40	12	0,03	0,01	0,08	0,10
propachloor	30	21	0,40	0,18	1,33	0,87
propoxur	0,4	0	0,001	0,00	0,13	0,00
pyrazofos	8	2	0,01	0,001	0,09	0,04
simazin	3	2	0,01	0,01	0,23	0,28
telodrin	9	-	0,001	-	0,02	-
terbutylazine <sup>1</sup>	3	8	0,001	0,057	0,03	0,75
tetrabromobisfenol A <sup>1</sup>	41	31	0,0001	0,002	0,0001	0,002
tolclofos-methyl	16	18	0,08	0,06	0,50	0,36
triadimenol	0	-	0,00	-	0,00	-
triallaat	75	58	0,4	0,21	0,58	0,36
triazofos	3	-	0,002	-	0,07	-
trifluralin	82	91	0,17	0,25	0,21	0,27
vinclozolin <sup>2</sup>	59	42	0,11	0,23	0,19	0,55

<sup>1</sup> Stoffen die in 2000 op vier locaties zijn bepaald en in 2001 op alle locaties.

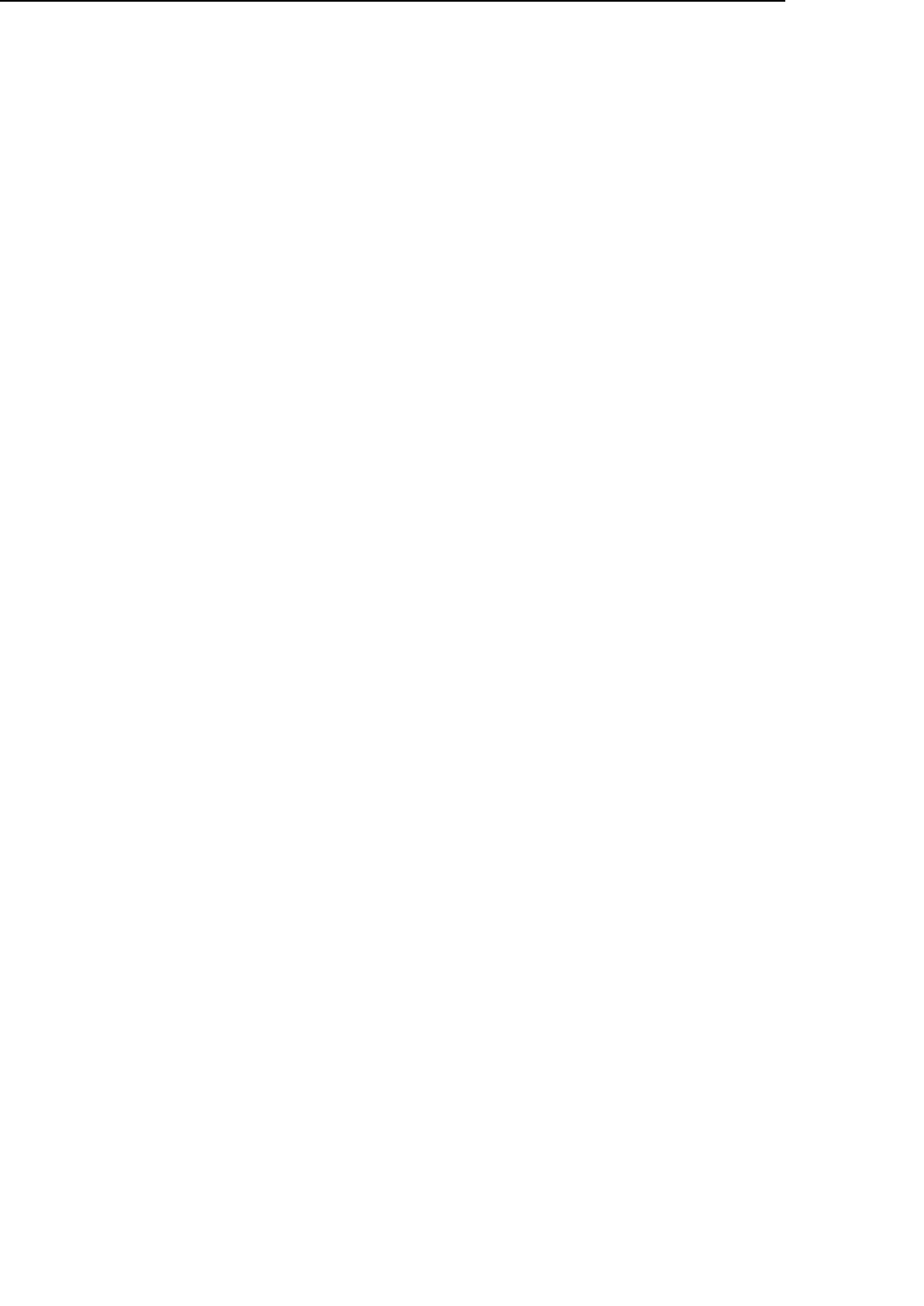
- Stoffen die in het jaar 2001 niet meer zijn bepaald.

Tabel II.2 Overzicht van het voorkomen van PAK in luchtmonsters in Nederland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het gemiddelde van alleen die monsters, waarin de stof is aangetroffen, gegeven.

Stof	Aange- toond in lucht 2000 (%)	Aange- toond in lucht 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie > nul 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie > nul 2001 (ng/m <sup>3</sup> )
acenafteen	100	96	2,44	1,65	2,44	1,73
acenaftyleen	59	52	0,14	0,12	0,23	0,24
antraceen	95	64	0,31	0,10	0,33	0,16
benzo[a]antraceen	78	32	0,03	0,01	0,04	0,03
benzo[a]pyreen	84	74	0,04	0,03	0,05	0,04
benzo[b]fluoranteen	90	91	0,12	0,12	0,13	0,13
benzo[g,h,i]peryleen	94	86	0,04	0,04	0,04	0,05
benzo[k]fluoranteen	90	92	0,07	0,08	0,08	0,09
chryseen	80	34	0,14	0,04	0,17	0,11
dibenz[a,h]-antraceen	75	42	0,004	0,01	0,01	0,01
fenantreen	100	98	6,14	5,33	6,14	5,46
fluoranteen	98	98	1,62	1,46	1,65	1,49
fluoreen	100	97	3,86	3,00	3,86	3,10
indeno[1,2,3-cd]pyreen	88	76	0,03	0,04	0,04	0,06
naftaleen	100	99	12,05	11,62	12,05	11,75
pyreen	95	93	0,77	0,71	0,81	0,76

Tabel II.3 Overzicht van het voorkomen van PCB's in luchtmonsters in Nederland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het gemiddelde van alleen die monsters, waarin de stof is aangetroffen, gegeven (0: de stof is wel bepaald, maar niet aangetroffen).

Stof	Aange- toond in lucht 2000 (%)	Aange- toond in lucht 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie > nul 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie > nul 2001 (ng/m <sup>3</sup> )
PCB-101	51	27	0,0024	0,004	0,005	0,014
PCB-118	4	6	0,0001	0,0003	0,002	0,005
PCB-138	18	3	0,0004	0,0001	0,002	0,004
PCB-153	28	3	0,0005	0,00003	0,002	0,001
PCB-180	11	0	0,0003	0	0,003	0,000
PCB-20	18	16	0,0070	0,004	0,038	0,023
PCB-28	18	9	0,0052	0,002	0,028	0,022
PCB-35	2	3	0,0004	0,001	0,023	0,029
PCB-52	37	29	0,0047	0,006	0,013	0,021
PCB-8	32	12	0,0044	0,003	0,013	0,021



## Concentraties in neerslag

Tabel II.4 Overzicht van het voorkomen van pesticiden in neerslagmonsters in Nederland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het gemiddelde van alleen die monsters, waarin de stof is aangetroffen, gegeven (- deze stof is niet meer bepaald, 0: de stof is wel bepaald, maar niet aangetroffen).

Stof	Aange- toond in neerslag 2000 (%)	Aange- toond in neerslag 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie > nul 2000 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie > nul 2001 (ng/l)
2,4-D	9	31	0,8	1,9	8,9	6,2
aldrin	0	-	0,0	-	0,0	-
atrazin	23	25	12,1	16,5	52,4	65,9
bentazon	5	11	0,4	0,6	7,5	5,4
bitertanol	0	-	0,0	-	0,0	-
captan	12	5	4,8	9,0	41,0	171,4
chloorfenvinfos	1	1	0,1	0,2	9,4	26,5
chloorprofam	90	85	116,7	59,6	130,3	70,4
chloorpyriphos-methyl	43	38	0,4	0,2	0,9	0,4
chloorthalonil <sup>1</sup>	69	54	20,0	14,8	28,9	27,5
chloridazon (pyrazon)	2	-	0,4	-	23,0	-
deltametrin	0	-	0,0	-	0,0	-
demetone-S-methyl	0	-	0,0	-	0,0	-
diazinon	3	4	0,5	0,3	18,0	7,2
dichlobenil	99	89	15,9	10,6	16,0	12,0
dichloorvos	21	29	3,8	3,4	18,4	12,0
dicofol	0	-	0,0	-	0,0	-
dimethoat	4	0,4	2,8	0,1	70,7	18,9
disulfoton	0	-	0,0	-	0,0	-
DNOC	99	98	1061,1	462,6	1075,1	470,9
endosulfan I	0,4	0,4	0,1	0,2	20,2	49,0
endosulfan II	5	0,4	1,5	0,0	31,6	9,0
endrin	0	-	0,0	-	0,0	-
epoxiconazol	11	-	3,7	-	34,9	-
ethofumesaat <sup>1</sup>	18	21	6,0	9,3	33,2	43,9
parathion-ethyl	2	0	0,2	0,0	7,5	0,0
fenitrothion	1	-	0,0	-	3,5	-
fenthion	3	-	0,0	-	1,0	-
fluazinam	45	35	8,9	15,1	19,8	43,6
fluroxypyr <sup>1</sup>	13	0 (2)	4,5	0 (0,2)	35,2	0 (9,7)
fosfamidon	0	-	0,0	-	0,0	-
heptachloor	0	0	0,0	0,0	0,0	0,0
heptachloor epoxide	0	-	0,0	-	0,0	-
heptenofos	0	-	0,0	-	0,0	-
hexachloor-1,3-butadien	3	-	0,0	-	0,3	-
hexachloorbenzeen	97	71	0,4	0,3	0,4	0,4
isoxaflutole	3	-	0,4	-	14,2	-
kresoxim-methyl <sup>1</sup>	31	44	6,3	8,3	20,3	18,8
lindaan	27	31	14,3	10,9	53,1	35,4
malathion	0,4	-	0,0	-	2,7	-
MCPA	64	58	9,7	6,1	15,1	10,5
mecoprop	47	36	7,3	5,6	15,7	15,9



Stof	Aange- toond in neerslag 2000 (%)	Aange- toond in neerslag 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie > nul 2000 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie > nul 2001 (ng/l)
metamitron	5	-	0,3	-	5,5	-
methiocarb	2	10	0,0	3,2	1,7	32,8
methomyl	0	-	0,0	-	0,0	-
parathion-methyl	1	-	0,0	-	2,5	-
metolachloor	24	18	8,8	2,8	36,9	15,2
mevinfos	2	4	0,2	0,1	9,3	3,4
o,p'-DDD <sup>1</sup>	46	10	3,2	0,28	7,0	3,0
o,p'-DDE	0	-	0,0	-	0,0	-
p,p'-DDT <sup>1</sup>	0	0 (1)	0,0	0 (0,1)	0,0	0 (10,8)
PCP	99	97	7,9	4,4	8,0	4,5
pentachloorbenzeen <sup>1</sup>	82	79	0,2	0,2	0,3	0,3
pirimicarb	1	5	0,1	0,3	6,6	5,5
pirimifos-methyl	-	4	-	10,3	-	293,9
prochloraz	1	1	1,2	1,1	88,4	86,4
procymidon	67	56	8,5	4,0	12,6	7,1
propachloor	50	50	103,9	68,4	205,9	138,0
propoxur	14	11	1,4	0,6	10,1	5,8
pyrazofos	3	0	1,5	0,0	50,4	0,0
simazin	3	1	0,8	0,5	29,8	40,7
telodrin	0	-	0,0	-	0,0	-
terbutylazine <sup>1</sup>	36	39	9,9	16,0	27,5	41,7
tetrabromobisfenol A <sup>1</sup>	41	69	0,2	2,9	0,4	4,1
tolclofos-methyl	8	9	2,2	2,2	28,7	25,2
triadimenol	0	-	0,0	-	0,0	-
triallaat	77	58	20,8	4,4	26,8	7,5
triazofos	0	-	0,0	-	0,0	-
trifluralin	73	76	2,2	3,7	3,0	4,8
vinchlozolin <sup>1</sup>	85	75	17,2	15,6	20,4	20,8

<sup>1</sup> Stoffen die in 2000 op vier locaties zijn bepaald en in 2001 op alle locaties.

- Stoffen die in het jaar 2001 niet meer zijn bepaald.

Tabel II.5 Overzicht van het voorkomen van PAK in neerslagmonsters in Nederland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het gemiddelde van alleen die monsters, waarin de stof is aangetroffen, gegeven.

Stof	Aange- toond in neerslag 2000 (%)	Aange- toond in neerslag 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie > nul 2000 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie > nul 2001 (ng/l)
acenafteen	96	95	8,4	5,2	8,7	5,5
acenaftyleen	26	48	2,9	3,0	11,2	6,4
antraceen	100	94	9,3	6,3	9,3	6,7
benzo[a]antracenen	99	97	11,6	9,7	11,7	10,0
benzo[a]pyreen	91	94	19,4	12,7	21,3	13,4
benzo[b]fluoranteen	100	99	39,3	25,3	39,3	25,6
benzo[g,h,i]peryleen	97	97	16,8	11,2	17,3	11,6
benzo[k]fluoranteen	100	99	25,0	18,7	25,0	18,9
chryseen	100	100	35,3	26,2	35,3	26,2
dibenz[a,h]-antracenen	74	91	2,9	3,4	3,9	3,7
fenantreen	100	100	109,6	78,5	109,6	78,5
fluoranteen	100	100	93,8	77,6	93,8	77,6

fluoreen	98	99	17,5	12,2	17,8	12,4
indeno[1,2,3-cd]pyreen	92	95	15,7	10,6	17,1	11,1
naftaleen	100	100	60,3	40,5	60,3	40,5
pyreen	99	98	80,4	48,4	81,1	49,5

Tabel II.6 Overzicht van het voorkomen van PCB's in neerslagmonsters in Nederland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het gemiddelde van alleen die monsters, waarin de stof is aangetroffen, gegeven.

Stof	Aange- toond in neerslag 2000 (%)	Aange- toond in neerslag 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie > nul 2000 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie > nul 2001 (ng/l)
PCB-101	58	19	1,4	0,2	2,3	1,2
PCB-118 <sup>1</sup>	39	15	0,4	0,3	1,1	24,6
PCB-138	50	17	0,5	0,2	1,0	1,4
PCB-153	73	45	0,6	0,3	0,8	0,8
PCB-180	14	6	0,2	0,1	1,4	1,9
PCB-20	47	55	1,0	0,6	2,0	1,1
PCB-28	39	22	1,3	0,4	3,3	2,0
PCB-35	4	3	0,1	0,1	2,3	2,8
PCB-52	34	28	2,2	0,7	6,6	2,3
PCB-8	11	7	0,3	0,1	2,6	1,4

<sup>1</sup> De gemiddelde concentratie van PCB-118 was hoger (3,6 ng/l), als gevolg van een piek in de concentraties van 298 ng/l op station Ketelhaven, in december 2001. Aangezien het hier waarschijnlijk om een uitbijter gaat, is deze waarde niet meegenomen. De concentratie was ook verhoogd op station Lelystad, maar in mindere mate (10 ng/l).



## Bijlage III De nauwkeurigheid van de geschatte atmosferische belasting

### Nauwkeurigheid van de geschatte depositie

Zoals hiervoor al rapportage is vermeld is de bepaling van representatieve grootheden uit meetgegevens niet eenvoudig. Sommige stoffen komen een gedeelte van het jaar niet boven de detectiegrens voor, maar worden de rest van het jaar aangetroffen (zie Bijlage II). Voorbeelden van stoffen met een dergelijk concentratieverloop zijn de herbiciden *propachloor* en het fungicide *fluazinam*. Wanneer de concentratie van een stof zo laag is, dat het niet met de gebruikte meetmethode kan worden aangetoond, kan de stof toch nog in een monster aanwezig zijn. Wanneer de concentratie in dit monster als '0' wordt meegenomen in de middeling van de concentraties, zorgt dit mogelijk voor een onderschatting van de berekende gemiddelde concentratie, en van de daaruit afgeleide belasting door depositie. Het belang van dit mogelijke artefact is onderzocht. Daarbij is aangenomen dat de concentratie in plaats van de gerapporteerde concentratie *nul* een waarde heeft die gelijk is aan één derde van de gerapporteerde detectiegrens. Het verschil tussen de op deze wijze berekende gemiddelde depositie of concentratie geeft aan hoe groot het effect van de gevoeligheid van de methode is. Voor sommige stoffen, die gedurende het gehele jaar aangetoond worden, is de invloed van de detectielimiet op de berekende depositie gering. Voorbeelden van dergelijke stoffen zijn *DNOC* en *dichlobenil*. Voor andere stoffen is de onzekerheid zo groot dat geen betrouwbare uitspraak kan worden gedaan. Dit geldt voor *aldrin*, *bitertanol*, *demetone-S-methyl*, *diazinon*, *endrin*, *fenthion*, *heptachloorepoxide*, *heptenofos*, *hexachloorbutadieen*, *malathion*, *o,p'-DDE*, *p,p-DDT*, *prochloraz*, *telodrin*, *triademol*, *triazofos*.

In Tabel III.1 is de gevonden range voor alle stoffen onder invloed van de detectiegrens aangegeven.

Tabel III.1 geeft een schatting van de landelijk gemiddelde droge depositie van pesticiden naar bodem en water voor de jaren 2000 en 2001. Ook wordt het aandeel van de droge depositie op de totale depositie gegeven. Voor stoffen die moeilijk in neerslag en of lucht kunnen worden aangetoond zou de depositie kunnen worden onderschat, als deze stoffen in concentraties voorkomen, die lager zijn dan de detectiegrens. Om een idee te krijgen van de mogelijke onderschatting van de depositie is een bovengrens van de depositie berekend, door éénderde van de detectielimiet te hanteren wanneer stoffen niet zijn aangetoond in monsters. In de 'tot' kolom van de tabel is deze depositie weergegeven.

Tabel III.1 Jaargemiddelde range in natte en totale depositie van pesticiden op Nederlands binnenwater, voor de jaren 2000 en 2001 (kg/jr), berekend uit een gemiddelde over alle meetlocaties.

Stof	Natte depositie				Totale depositie op Ned.Oppervlaktewater (kg/jr)			
	2000		2001		2000		2001	
	van	tot	van	tot	van	tot	van	tot
2,4-D	1,2	5,5	3,7	5,3	1,2	7,5	3,7	6,7
aldrin	0,0	19,7	-	-	0,0	27,0	-	-
atrazin	23,9	30,7	25,9	30,1	24,5	35,1	26,0	33,3
	-	-	-	-	-	-	-	-
bentazon	1,0	8,2	1,6	5,4	1,8	12,6	7,6	13,5
bitertanol	0,0	8,3	-	-	44,6	55,6	-	-
captan	9,3	37,0	12,8	129,2	17,8	59,8	66,8	243,2
chloorfenvinfos	0,3	24,9	0,2	6,5	0,9	35,3	0,7	9,7
chloorprofam	240,2	241,2	140,2	141,3	566,5	569,9	298,7	302,2
chloorpyriphos-methyl	0,7	2,5	0,4	2,2	1,5	4,1	0,7	3,1
chloorthalonil <sup>1</sup>	33,3	34,9	22,8	24,1	72,7	74,5	39,3	40,9
chloridazon (pyrazon)	0,6	21,2	-	-	0,6	30,9	-	-
	-	-	-	-	-	-	-	-
deltametrin	0,0	15,6	-	-	0,0	21,6	-	-
demetone-S-methyl	0,0	9,2	-	-	7,4	19,7	-	-
diazinon	1,1	33,0	0,9	21,9	1,4	46,4	0,9	31,9
dichlobenil	30,9	30,9	23,2	23,5	704,2	704,3	448,0	448,4
dichloorvos	9,8	40,2	10,1	29,2	18,7	67,0	20,0	51,8
dicofol	0,0	54,4	-	-	0,0	73,5	-	-
dimethoaat	6,1	55,0	0,2	77,8	6,4	78,7	2,8	119,9
disulfoton	0,0	16,8	-	-	0,0	23,1	-	-
DNOC	2254,8	2258,2	1087,3	1089,0	2412,3	2503,9	1237,4	1282,2
endosulfan I	0,1	71,8	0,6	45,8	1,0	97,9	2,2	65,4
endosulfan II	2,9	75,0	0,1	30,4	3,5	102,8	0,8	41,5
endrin	0,0	29,4	-	-	3,0	42,9	-	-
epoxiconazol	5,1	16,7	-	-	6,8	22,9	-	-
ethofumesaat <sup>2</sup>	13,3	19,3	13,7	19,1	13,7	21,4	34,6	42,0
parathion-ethyl	0,3	10,0	0,0	7,1	0,3	14,2	0,1	9,9
fenitrothion	0,1	18,8	-	-	0	26,5	-	-
fenthion	0,1	1,3	-	-	0	1,7	-	-
fluazinam	20,0	39,5	43,1	73,0	31,8	60,8	54,5	98,2
fluroxypyr <sup>1</sup>	8,4	21,5	0,7	3,1	24,4	42,3	9,3	12,3
fosfamidon	0,0	43,1	-	-	0,0	60,4	-	-
heptachloor	0,0	22,2	0,0	12,2	0,0	31,2	0,7	18,6
heptachloor epoxide	0,0	3,2	-	-	2,3	6,0	-	-
heptenofos	0,0	26,4	-	-	0,0	36,3	-	-
hexachloor-1,3-butadieen	0,0	1,0	-	-	0,8	2,2	-	-
hexachloorbenzeen	0,9	0,9	0,6	1,0	1,7	2,0	1,6	2,2
isoxaflutole	0,9	56,3	-	-	6,6	82,2	-	-
kresoxim-methyl <sup>1</sup>	10,3	13,9	13,3	15,3	14,8	20,0	16,3	19,4
lindaan	24,1	53,4	18,3	39,1	39,8	84,8	22,6	57,6
malathion	0,0	29,3	-	-	0,1	41,2	-	-
MCPA	15,6	17,5	11,7	12,8	16,1	20,4	12,4	15,0
mecoprop	12,0	30,9	11,3	24,1	12,1	46,0	12,3	35,6
metamitron	1,2	8,4	-	-	1,2	11,4	-	-
	-	-	-	-	-	-	-	-
methiocarb	0,1	4,6	6,6	10,9	0,1	6,7	6,9	13,3

Stof	Natte depositie				Totale depositie op Ned.Oppervlaktewater (kg/jr)			
	2000		2001		2000		2001	
	van	tot	van	tot	van	tot	van	tot
methomyl	0,0	175,2	-	-	0,0	254,0	-	-
parathion-methyl	0,1	23,5	-	-	0,1	33,0	-	-
metolachloor	17,8	21,3	4,3	7,4	24,2	29,5	5,4	10,2
mevinfos	0,4	18,2	0,3	11,3	2,2	28,1	3,0	19,9
o,p'-DDD2	6,2	7,7	1,1	2,6	8,5	10,9	1,2	3,4
o,p'-DDE	0,0	4,6	-	-	0,0	4,6	-	-
p,p'-DDT2	-	-	0,3	4,2	-	-	0,4	6,3
PCP	13,9	14,0	9,2	9,3	39,5	39,8	28,1	28,3
pentachloorbenzeen <sup>1</sup>	0,4	0,5	0,5	0,8	0,6	0,7	0,6	0,9
pirimicarb	0,2	42,2	0,9	7,7	0,5	59,4	1,2	11,2
pirimifos-methyl	0,0	49,9	17,0	19,6	3,9	72,4	370,6	373,9
prochloraz	2,1	33,2	2,6	26,2	2,1	45,6	2,8	34,9
procymidon	13,1	15,4	8,4	9,8	25,6	29,4	13,2	15,9
propachloor	161,0	169,0	127,8	132,7	320,8	333,7	199,8	209,0
propoxur	2,3	13,5	1,5	8,9	2,5	18,8	1,5	12,6
pyrazofos	2,2	12,0	0,0	7,0	4,5	18,0	0,3	9,9
simazin	1,4	24,7	1,1	19,7	3,9	38,5	3,6	31,7
telodrin	0,0	6,2	-	-	0,5	8,8	-	-
terbutylazine <sup>1</sup>	19,2	20,1	18,7	20,0	19,5	21,0	29,8	31,6
tetrabromobisfenol A2	0,0	0,0	7,1	7,4	0,1	0,1	7,8	8,2
tolclofos-methyl	7,8	21,3	5,8	14,5	15,7	30,7	12,2	21,9
triadimenol	0,0	11,7	-	-	0,0	15,7	-	-
triallaat	54,6	56,4	8,2	9,3	207,3	210,0	82,0	84,0
triazofos	0,0	22,8	-	-	0,7	31,8	-	-
trifluralin	5,3	6,0	9,1	9,5	58,6	59,5	86,1	86,6
vinchlozolin <sup>1</sup>	31,3	31,6	30,1	31,9	76,5	77,4	109,6	112,7

<sup>1</sup> Stoffen die in 2000 op vier locaties zijn bepaald en in 2001 op alle locaties.

- Stoffen die in het jaar 2001 niet meer zijn bepaald.

Tabel III.2 Jaargemiddelde range in natte depositie van PAK voor de jaren 2000 en 2001 ( $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{jr}$ ).

Stof	Natte Depositie 2000 ( $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{jr}$ )		Natte Depositie 2001 ( $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{jr}$ )	
	van	tot	van	tot
acenafteen	6,2	6,2	4,4	4,4
acenaftyleen	2,9	3,6	2,8	3,3
antraceen	8,5	8,5	5,7	5,8
benzo[a]antraceen	9,4	9,4	8,1	8,1
benzo[a]pyreen	14,2	14,3	9,3	9,3
benzo[b]fluoranteen	31,8	31,8	20,7	20,7
benzo[g,h,i]peryleen	13,8	13,8	9,3	9,3
benzo[k]fluoranteen	19,3	19,3	15,2	15,2
chryseen	28,1	28,1	21,7	21,7
dibenz[a,h]-antraceen	2,2	2,2	3,0	3,0
fenantreen	89,5	89,5	67,8	67,8
fluoranteen	78,3	78,3	72,2	72,2
fluoreen	14,0	14,0	10,2	10,2
indeno[1,2,3-cd]pyreen	12,5	12,5	8,8	8,8
naftaleen	44,7	44,7	33,3	33,3
pyreen	58,2	58,2	45,4	45,4

Tabel III.3 Het aandeel van droge depositie in de totale depositie naar bodem en water voor de jaren 2000 en 2001.

Pesticiden	Fractie droge depositie naar	Fractie droge depositie naar	Fractie droge depositie naar	Fractie droge depositie naar
	water 2000	water 2001	bodem 2000	bodem 2001
2,4-D	0,00	0,00	0,00	0,00
atrazine	0,02	0,00	0,01	0,00
bentazon	0,45	0,78	0,34	0,69
captan	0,47	0,63	0,02	0,03
chloorfenvinfos	0,71	0,68	0,29	0,26
chloorprofam	0,58	0,53	0,18	0,15
chloorpyriphos-methyl	0,51	0,43	0,01	0,01
chloorthalonil	0,66	0,42	0,09	0,02
diazinon	0,22	0,00	0,01	0,00
dichlobenil	0,96	0,95	0,20	0,18
dichloorvos	0,47	0,49	0,02	0,03
dimethoat	0,03	0,93	0,02	0,89
DNOC	0,07	0,12	0,00	0,01
endosulfan I	0,87	0,76	0,42	0,26
endosulfan II	0,18	0,86	0,02	0,41
ethofumesate	0,03	0,61	0,01	0,35
ethyl-parathion	0,06	1,00	0,00	1,00
fluazinam	0,37	0,21	0,01	0,00
fluroxypyr	0,68	0,92	0,00	0,25
heptachloor	-	1,00	-	1,00
hexachloorbenzeen	0,50	0,61	0,00	0,00
kresoxim-methyl	0,31	0,18	0,02	0,01
lindaan	0,39	0,19	0,01	0,00
MCPA	0,03	0,07	0,03	0,06
mecoprop	0,00	0,09	0,00	0,06
methiocarb	0,00	0,05	0,00	0,00
metolachloor	0,26	0,17	0,11	0,07
mevinvos	0,82	0,87	0,00	0,85
o,p'-DDD	0,29	0,04	0,00	0,00
p,p'-DDT	-	0,20	-	0,00
PCP	0,64	0,64	0,03	0,03
pentachloorbenzeen	0,34	0,20	0,01	0,00
pirimicarb	0,49	0,27	0,39	0,19
pirimiphos-methyl	1,00	0,95	1,00	0,53
prochloraz	0,01	0,12	0,00	0,00
procymidon	0,47	0,35	0,01	0,01
propachloor	0,49	0,36	0,06	0,04
propoxur	0,09	0,00	0,00	0,00
pyrazofos	0,54	1,00	0,00	1,00
simazine	0,63	0,71	0,32	0,40
terbutylazine	0,02	0,37	0,00	0,00
tetrabromobisphenol A	0,11	0,09	0,00	0,01
tolclofos-methyl	0,50	0,52	0,01	0,01
triallaat	0,73	0,90	0,03	0,09
trifluralin	0,91	0,90	0,08	0,07
vinclozolin	0,68	0,72	0,46	0,44

PAK	Fractie droge depositie naar water	Fractie droge depositie naar water	Fractie droge depositie naar bodem	Fractie droge depositie naar bodem
	2000	2001	2000	2001
acenafteen	0,98	0,98	0,74	0,77
acenaftyleen	0,86	0,88	0,27	0,30
antraceen	0,89	0,76	0,25	0,11
benzo_a_antraceen	0,30	0,18	0,04	0,02
benzo_a_pyreen	0,33	0,41	-0,24	-0,38
benzo_b_fluoranteen	0,38	0,52	0,00	0,00
benzo_g,h,i_peryleen	0,30	0,47	0,41	0,58
benzo_k_fluoranteen	0,40	0,51	0,38	0,48
chryseen	0,41	0,26	-0,79	-0,28
dibenz_a,h_antraceen	0,21	0,27	0,01	0,02
fenantreen	0,90	0,93	0,36	0,46
fluoranteen	0,75	0,81	0,44	0,50
fluoreen	0,97	0,98	0,66	0,72
indeno_1,2,3-cd_pyreen	0,30	0,48	0,09	0,18
naftaleen	0,94	0,96	0,06	0,09
pyreen	0,67	0,77	0,08	0,12
<b>PCB</b>				
PCB-101	0,06	0,40	-0,002	-0,016
PCB-118	0,02	0,03	0,000	-0,001
PCB-138	0,03	0,01	-0,001	0,000
PCB-153	0,03	0,00	-0,001	0,000
PCB-180	0,03	0,00	-0,001	0,000
PCB-20	0,20	0,17	-0,007	-0,005
PCB-28	0,10	0,11	-0,003	-0,003
PCB-35	0,13	0,27	-0,004	-0,009
PCB-52	0,07	0,24	-0,002	-0,008
PCB-8	0,30	0,48	-0,012	-0,023

Deze tabel laat zien dat de droge depositie een aanzienlijk gedeelte van de totale depositie kan uitmaken. Boven wateroppervlakken heeft de droge depositie van goed oplosbare stoffen een groot aandeel in de totale depositie.

Tabel III.4 Jaargemiddelde natte depositie van PCB's voor de jaren 2000 en 2001 ( $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{jr}$ ).

Stof	Natte Depositie 2000 ( $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{jr}$ )		Natte Depositie 2001 ( $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{jr}$ )	
	van	tot	van	tot
PCB-101	0,9	1,0	0,2	0,4
PCB-118	0,3	0,4	4,4	4,5
PCB-138	0,3	0,4	0,2	0,4
PCB-153	0,4	0,4	0,3	0,4
PCB-180	0,1	0,3	0,1	0,3
PCB-20	0,6	0,9	0,5	0,7
PCB-28	0,9	1,5	0,4	1,2
PCB-35	0,1	0,6	0,1	0,6
PCB-52	1,4	1,6	0,6	0,8
PCB-8	0,2	0,9	0,1	0,9



Tabel III.5 Totale depositie naar Nederland (bodem) en naar Nederlands oppervlaktewater (kg/jr). De variatie over Nederland wordt aangegeven door het landelijk minimum en het landelijk maximum weer te geven. De gebruikte oppervlakte voor Nederland is 36.783 km<sup>2</sup>, de gebruikte oppervlakte voor oppervlaktewater is 2.790 km<sup>2</sup>. Dit is exclusief het IJsselmeer, de Waddenzee, de Ooster- en Westerschelde. Een scheef gedrukte "0" geeft aan dat de stof niet is aangetroffen.

Totale depositie (kg/jr)	Naar Nederlandse bodem				Naar Nederlands oppervlaktewater			
	Landelijk minimum	Landelijk maximum	Landelijk minimum	Landelijk maximum	Landelijk minimum	Landelijk maximum	Landelijk minimum	Landelijk maximum
	2000	2000	2001	2001	2000	2000	2001	2001
2,4-D	0	3	1	7	0	35	10	95
atrazine	12	47	9	58	163	622	119	766
bentazon	0	9	0	18	0	87	0	199
captan	0	67	0	208	0	206	0	1688
chloorfenvinfos	0	6	0	8	0	47	0	38
chloorprofam	14	2738	40	1389	153	17805	470	8547
chloorpyriphos-methyl	0	5	0	2	0	28	-	-
chloridazon (pyrazon)	0	4	-	-	0	52	-	-
chloorthalonil	8	74	2	102	3	684	13	651
diazinon	0	6	0	8	0	84	0	111
dichlobenil	97	1454	171	827	159	1117	117	739
dichloorvos	0	173	0	129	0	382	0	349
dimethoaat	0	32	0	13	0	422	0	126
DNOC	763	2997	345	1571	8433	38351	3694	17970
endosulfan I	0	8	0	11	0	33	0	129
endosulfan II	0	14	0	8	0	190	0	26
epoxiconazol	0	7	-	-	0	88	-	-
ethofumesaat	0	20	5	115	0	266	33	764
parathion-ethyl	0	2	0	1	0	30	0	0
fentitrothion	0	1	-	-	0	10	-	-
fenthion	0	0,2	-	-	0	3	-	-
fluazinam	7	83	5	184	72	636	1	1653
fluroxyppyr	0	22	0	22	0	286	0	82
hexachloor-1,3-butadieen	0	0,04	-	-	0	0	-	-
hexachloorbenzeen	1	5	0	7	5	35	4	22
isoxaflutole	0	3	-	-	0	35	-	-
kresoxim-methyl	0	20	3	28	0	202	-	-
lindaan	11	103	0	53	143	539	0	598
malathion	0	1	-	-	0	12	-	-
MCPA	1	30	5	26	12	401	72	344
mecoprop	2	26	3	25	28	343	34	300
metamitron	0	2	-	-	0	24	-	-
methiocarb	0	1	0	26	0	13	0	337
parathion-methyl	0	1	-	-	0	13	-	-
metolachloor	5	143	1	25	68	1283	7	244
mevinfos	0	8	0	12	0	80	0	118
o,p'-DDD	0	12	0	4	0	158	0	50
p,p'-DDT	0	0	0	3	0	0	0	45
PCP	21	48	13	62	128	228	74	195
pentachloorbenzeen	0	1	0	2	0	8	3	13
pirimicarb	0	3	0	5	0	35	0	60
pirimifos-methyl	0	15	99	1172	0	10	-	-
prochloraz	0	18	0	23	0	237	0	303
procymidon	3	83	1	61	25	416	12	369
propachloor	52	1536	28	1089	207	8253	366	7171
propoxur	0	9	0	5	0	118	0	64
pyrazofos	0	32	0	0	0	425	0	0
simazine	0	20	0	21	0	206	0	148
terbutylazine	0	39	1	129	0	504	12	585
tetrabromobisfenol A	0	0	1	26	0	0	10	336
tolclofos-methyl	0	138	0	93	0	921	-	-
triallaat	100	464	16	433	177	1882	10	603
trifluralin	27	89	38	153	28	150	44	305
vinclozolin	6	143	16	507	25	1067	124	2640

## Ruimtelijke verdeling van de totale depositie

Uit de berekende totale depositie naar oppervlaktewater voor alle achttien locaties is de minimale, de maximale en gemiddelde depositie berekend in gram per hectare per jaar. Ook is de locatie van de maximale depositie vastgesteld. Deze gegevens zijn weergegeven in Tabel III.6.

Tabel III.6 Totale depositie naar Nederlands oppervlaktewater (gram per hectare per jaar). De variatie over Nederland wordt aangegeven door het landelijk minimum en het landelijk maximum weer te geven.

Nederlands oppervlakte- water	2000	2000	2000	Locatie	2001	2001	2001	Locatie max 2001
	min	max	gemid- deld		min	max	gemid- deld	
	g/ha/jr	g/ha/jr	g/ha/jr	max	g/ha/jr	g/ha/jr	g/ha/jr	
2,4-D	0,000	0,009	0,004	KE	0,003	0,026	0,013	AP
atrazine	0,044	0,169	0,086	WY	0,032	0,208	0,090	YE
bentazon	0,000	0,032	0,006	ZI	0,000	0,063	0,025	KE
captan	0,000	0,241	0,055	WY	0,000	0,746	0,231	ST
chloorfenvinfos	0,000	0,021	0,003	EG	0,000	0,029	0,002	EG
chloorprofam	0,051	9,814	1,965	AP	0,143	4,980	1,031	ZI
chloorpyriphos-methyl	0,001	0,017	0,005	ZI	0,000	0,007	0,002	KE
chloridazon (pyrazon)	0,000	0,014	0,002	YE	-	-	-	-
chloorthalonil	0,027	0,266	0,150	VE	0,007	0,365	0,136	AP
diazinon	0,000	0,023	0,004	AL	0,000	0,030	0,003	AN
dichlobenil	0,348	5,210	2,423	YE	0,612	2,963	1,547	KE
dichloorvos	0,000	0,620	0,065	GP	0,000	0,462	0,069	DE
dimethoat	0,000	0,115	0,022	AN	0,000	0,046	0,010	WY
DNOC	2,736	10,743	8,463	SP	1,238	5,632	4,272	DE
endosulfan I	0,000	0,030	0,004	WY	0,000	0,038	0,008	SP
endosulfan II	0,000	0,052	0,012	GP	0,000	0,028	0,003	VE
epoxiconazol	0,000	0,024	0,011	GP	-	-	-	-
ethofumesaat	0,000	0,073	0,029	GP	0,019	0,413	0,119	WY
parathion-ethyl	0,000	0,008	0,001	AN	0,000	0,005	0,000	NO
fenitrothion	0,000	0,003	0,000	NO	-	-	-	-
fenthion	0,000	0,001	0,000	DE	-	-	-	-
fluazinam	0,025	0,296	0,111	YE	0,016	0,660	0,188	KE
fluroxypyr	0,000	0,078	0,017	GP	0,000	0,081	0,032	AL
hexachloor-1,3-butadien	0,000	0,000	0,000	AP	-	-	-	-
hexachloorbenzeen	0,003	0,019	0,006	AP	0,001	0,024	0,005	AN
isoxaflutole	0,000	0,009	0,002	DE	-	-	-	-
kresoxim-methyl	0,000	0,070	0,030	AP	0,012	0,101	0,055	WY
lindaan	0,039	0,370	0,139	WY	0,000	0,189	0,078	AL
malathion	0,000	0,003	0,000	SP	-	-	-	-
MCPA	0,003	0,109	0,056	YE	0,020	0,093	0,043	AP
mecoprop	0,008	0,093	0,042	YE	0,009	0,090	0,043	WY
metamitron	0,000	0,007	0,002	DE	-	-	-	-
methiocarb	0,000	0,002	0,000	AL	0,000	0,092	0,024	BE
parathion-methyl	0,000	0,004	0,000	SP	-	-	-	-
metolachloor	0,019	0,514	0,084	WY	0,002	0,089	0,019	WY
mevinfos	0,000	0,028	0,007	SP	0,000	0,044	0,010	LE
o,p'-DDD	0,000	0,043	0,013	GP	0,000	0,014	0,004	NO
p,p'-DDT	0,000	0,000	0,000	-	0,000	0,012	0,001	KE
PCP	0,075	0,171	0,137	ST	0,047	0,222	0,097	AN
pentachloorbenzeen	0,000	0,005	0,001	AP	0,001	0,006	0,002	AN
pirimicarb	0,000	0,009	0,001	SP	0,000	0,016	0,003	AN
pirimifos-methyl	0,000	0,053	0,008	AP	0,354	4,202	1,279	LE
prochloraz	0,000	0,065	0,007	NO	0,000	0,082	0,009	AN
procymidon	0,012	0,298	0,089	ZI	0,003	0,218	0,046	ZI

Nederlands oppervlakte- water	2000	2000	2000	Locatie	2001	2001	2001	Locatie
	min	max	gemid- deld		min	max	gemid- deld	
	g/ha/jr	g/ha/jr	g/ha/jr	max	g/ha/jr	g/ha/jr	g/ha/jr	
propachloor	0,185	5,507	1,112	KE	0,099	3,902	0,690	KE
propoxur	0,000	0,032	0,008	AN	0,000	0,017	0,005	DE
pyrazofos	0,000	0,116	0,008	EG	0,000	0,000	0,000	VE
simazine	0,000	0,073	0,014	GP	0,000	0,074	0,012	AP
terbutylazine	0,000	0,140	0,041	GP	0,003	0,461	0,103	GP
tetrabromobisfenol A	0,000	0,000	0,000	DE	0,003	0,092	0,025	ZI
tolclofos-methyl	0,000	0,494	0,054	ZI	0,000	0,332	0,042	AP
triallaat	0,359	1,664	0,716	KE	0,057	1,552	0,283	WY
trifluralin	0,096	0,320	0,201	ZI	0,138	0,549	0,297	YE
vinclozolin	0,023	0,513	0,157	AP	0,057	1,817	0,378	KE

Slechts voor een aantal pesticiden is de locatie met de maximale depositie in beide meetjaren hetzelfde: *chloorfenvinfos* (EG), *metolachloor* (GP), *procymidon* (ZI), *propachloor* (KE) en *terbutylazine* (GP). Voor een gedeelte wordt dit veroorzaakt doordat sommige pesticiden in 2000 slechts op vier locaties zijn gemeten, en in 2001 op achttien. Een andere verklaring kan zijn de meteorologische invloed, of verandering in gebruik van pesticiden.

## Bijlage IV Gebruikte verwerkingsmethoden

### *Interpolatie van ruimtelijke gegevens*

#### *Methode om de depositiegegevens op de meetstations ruimtelijk weer te geven*

Om de depositie resultaten op de meetstations ruimtelijk over Nederland weer te geven moeten ze worden geïnterpoleerd op locaties tussen de meetstations, en geëxtrapoleerd naar locaties die niet tussen meetstations in liggen. Eerder werd al gebruik gemaakt van lineaire interpolatie met het GIS-programma ArcView. Dit leidt soms tot vreemde waarden in gebieden buiten de meetstations, door interpolatie artefacten. Om een meer geschikte interpolatie-methode te vinden, zijn uit een met OPS gemodelleerd concentratie-veld van *fluazinam* de waarden op de 18 meetlocaties geëxtraheerd. Met die 18 punt-waarden is met verschillende interpolatietechnieken geprobeerd het modelveld zo goed mogelijk te herleiden. Het OPS model is hier als een soort referentie genomen, omdat het de verdeling van stoffen over het land over het algemeen goed kan beschrijven, wanneer er goede emissiebestanden voorhanden zijn. Zo is een aantal interpolatie methodes gebruikt:

- de Kriging methode, met verschillende modellen om de semi-variogrammen te modelleren (lineair, exponentieel, circulair etc.),
- interpolatie, gewogen met de inverse van de afstand tussen de meetstations (IDW),
- de Nearest Neighbour methode, waarin naar een aantal naburige stations invloed heeft op de concentratie.

Voor alle methoden dient een afstandsschaal ingesteld te worden, waarover de invloed van de meetpunten reikt, hetzij door een aantal naburige stations op te geven, of door een vaste afstand als straal op te geven. Eerder werd al gesteld dat de verschillende meetpunten representatief zijn op een schaal van enkele kilometers tot tientallen kilometers, aangezien de meetpunten niet in de directe omgeving van emissiebronnen van pesticiden zijn gelegen. Daarom moet de invloed van de meetstations in die orde van grootte worden gekozen. Er is gebleken dat de semi-variogrammen, die voor de Kriging methode uit de meetwaarden van de verschillende stations worden bepaald, voor slechts weinig stoffen goed met één van de semi-variogram modellen kon worden beschreven. De ruimtelijke samenhang tussen de onderlinge stations bleek vaak te klein. Voor die stoffen, die vanuit het buitenland worden getransporteerd naar Nederland, was er wel genoeg samenhang en werkt de kriging interpolatiemethode goed. Voor *fluazinam*, in dit voorbeeld, met de belangrijkste bronnen binnen Nederland, was het resultaat met Kriging met lineair model, met 50 kilometer straal redelijk goed. Nadelen van Kriging waren dat maxima werden afgevlakt en minima opgevuld worden. Het beeld werd dus erg “gladgestreken”. Dit was minder het geval wanneer de IDW methode werd gebruikt. Het beste resultaat werd verkregen met de IDW methode met een straal van 50 kilometer. Een grotere straal leidt tot artefacten, met name voor punten die niet tussen meetstations in liggen. Nadeel is dan nog dat niet het hele land wordt bedekt. Voor de hier gepresenteerde plaatjes is dus inverse distance interpolatie gebruikt, met 50 kilometer straal.

### *Middelingsmethoden*

Het bepalen van representatieve grootheden uit de beschikbare meetgegevens is vaak niet eenvoudig. Dat komt omdat de concentratie van sommige stoffen niet vaak en slechts weinig boven de detectiegrens wordt aangetroffen. Bij het bepalen van de concentratie van stoffen in de genomen monsters is hier aandacht aan besteed. Bij elke serie monsters wordt een schatting van de detectiegrens gemaakt. Maar ook beneden deze detectiegrens kan de concentratie worden vastgesteld. Dit kan als volgt worden begrepen:

Bij de GC-MS bepaling wordt de identiteit van stoffen bepaald op basis van retentietijd en nadere identificatie van de stoffen met behulp van massaspectrometrie. In de praktijk wordt steeds de verhouding tussen de intensiteit van twee massa's in het massaspectrum bepaald en vergeleken met de verhouding in een standaardoplossing van die stof (zie Duyzer et al. 1999). Wanneer de identificatie van de stof slaagt wordt op basis van kalibratie met behulp van de standaardoplossing de concentratie berekend. Wanneer de identificatie niet slaagt dan wordt voor deze stof een nul waarde gerapporteerd. Voor elk monster en elke stof is een ruwe schatting gemaakt van de concentratie waaronder identificatie niet mogelijk is. Dit maakt het mogelijk een indruk te krijgen van de concentratie van de stof, die voor zou kunnen komen, zonder dat de stof in het monster wordt aangetroffen. Deze 'detectiegrens' hangt sterk af van de hoeveelheid storende stoffen in het monster en varieert dus per monster. Zo kan in het ene monster een stof goed worden aangetoond in concentraties ruim beneden de detectiegrens die zou gelden in een ander, meer verontreinigd, monster. De detectiegrens (berekend als drie maal het ruisniveau) is dus niet veel meer dan een indicatie van de kwaliteit van de **kwantitatieve** analyse.

Er wordt dus met drie soorten resultaten van de analyse gewerkt:

1. Een concentratie in g/l wanneer identificatie geslaagd is. In de tabellen aangegeven als het percentage waarin de stof werd *aangetoond*.
2. Een concentratie gelijk aan *nul* wordt gerapporteerd wanneer de identificatie van de stof niet mogelijk is.
3. Een schatting van de detectiegrens, berekend als drie maal de ruis.

De detectiegrens wordt in principe alleen gebruikt om inzicht te krijgen in de kwaliteit van het meetresultaat.

Bij pesticiden is een bijkomend aspect dat stoffen niet het hele jaar worden gebruikt. Een bepaald herbicide kan alleen gedurende drie maanden in het voorjaar worden gebruikt. Gedurende drie maanden is de stof goed meetbaar en de rest van het jaar niet. De stof kan zelfs gedurende die drie maanden MTR waarden overschrijden. Het berekende jaargemiddelde komt daardoor erg laag uit en geeft dan niet een goed beeld van het voorkomen van de stof.

Ter illustratie geeft Figuur 9 de concentratie van *DNOC* in neerslagmonsters weer. Deze stof wordt gedurende het gehele jaar aangetroffen. Omdat een redelijk normale verdeling wordt gevonden is het afleiden van representatieve grootheden relatief eenvoudig. Veel lastiger is het om een representatieve grootheid af te leiden voor een stof zoals *propachloor* (Figuur 4 en 5). Het aantal keren dat deze stof kan worden aangetoond is veel geringer dan het aantal keren dat *DNOC* kan worden aangetoond. Bovendien is het voorkomen log-normaal verdeeld. Er zijn veel monsters waarin de stof nauwelijks kan worden aangetoond.

Het is niet op voorhand duidelijk hoe in dit geval de gegevens het best kunnen worden gepresenteerd. Om deze problematiek te omzeilen wordt in deze rapportage naast gemiddelde waarden ook het aantal malen dat de stof wordt aangetroffen, en eventueel normen overschrijdt, gepresenteerd.

Tenslotte is voor de meeste stoffen ook de jaargemiddelde depositie berekend.

#### *Alternatieve middelingmethoden*

Om de gevoeligheid van samenvattende statistieken, zoals het rekenkundig gemiddelde, voor uitschieters te beperken, en om een meer representatieve centrale waarde voor de gemeten concentratie reeksen te krijgen, is gezocht naar alternatieven voor het rekenkundig gemiddelde van de concentratie. Daarbij wordt gelet op de statistische verdeling van die stoffen. Er wordt bijvoorbeeld aangenomen dat de concentraties van stoffen beneden de onderste bepalingsgrens van de methode log-normaal verdeeld is. Deze verdeling kan ontstaan, doordat vele stoffen voorkomen in niveaus die dichtbij de "detectielimiet" van de bepalingmethode liggen en daardoor moeilijk te bepalen zijn. De gegevens zijn aan die kant begrensd door de bepalingmethode. Het

rekenkundige gemiddelde, wordt dan sterk beïnvloed door een klein aantal hoge waarden. Een dataset is daardoor statistisch scheef verdeeld (meer dan de helft van de waarden uit de meetreeks zijn dan kleiner dan het gemiddelde) Hierbij moet worden opgemerkt dat concentraties van stoffen beneden het niveau van de detectielimiet, die wel konden worden geïdentificeerd via massaspectrometrie en gaschromatografie, wel zijn gerapporteerd en niet zijn vervangen door een “< detectielimiet” teken. Ze zijn verwerkt in het rekenkundig gemiddelde van de concentratie. In Duyzer en Vonk (2001) wordt hier uitgebreid aandacht aan besteed. Percentielen geven dan wellicht een beter beeld van de meetreeks, waarbij de mediaan, het 50-percentiel, het midden van de meetreeks aangeeft, wanneer alle metingen op rangorde zijn gezet.

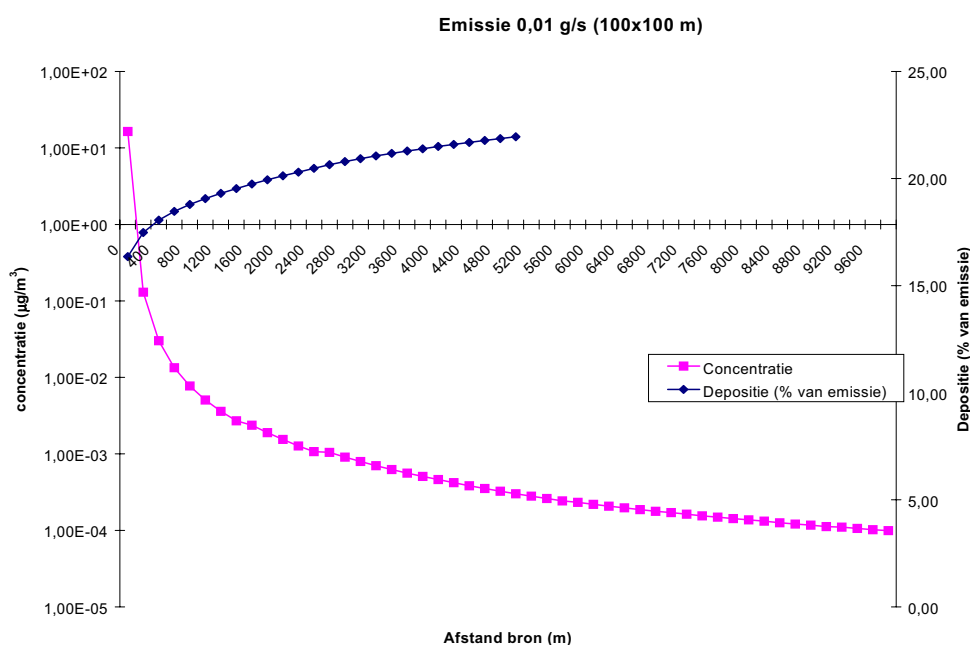
Een andere manier om het gemiddelde van scheef verdeelde meetreeksen te schatten gebeurt door het logaritme van het cumulatieve percentage van de totale massa van een meetreeks van concentraties uit te zetten tegen de concentratie de metingen uit die reeks op log-waarschijnlijkheids papier. Dit liet voor een aantal stoffen zien, dat deze niet log-normaal verdeeld waren. Het schatten van een gemiddelde kon dus niet via log-waarschijnlijkheids plots plaatsvinden.



## Bijlage V Atmosferische depositie in de omgeving van de bron

Het doel van het hier gepresenteerde onderzoek was het verkrijgen van een landelijk overzicht van de belasting van Nederland vanuit de atmosfeer. Hoewel depositie dicht bij de bron geen onderdeel was van het huidige onderzoek treedt dit proces uiteraard ook dichtbij de bron op. Op *locale* schaal, dicht bij bronnen, kan de depositie zelfs veel hoger zijn. Dit wordt geïllustreerd in Figuur V.1 waar de concentratie van een stof is gegeven in de omgeving van de bron. Het gaat hier om een voorbeeld waarbij gerekend is met een standaard emissiebron met een sterkte van 0,01 g/s. Duidelijk is dat de concentratie in lucht sterk afneemt met de afstand tot de bron. De depositie is recht evenredig met de concentratie in lucht en neemt daardoor even snel af. Zo is op tien km afstand van de bron de concentratie al 50 keer zo laag als op een afstand van één kilometer. Dat is een geheel andere schaal dan die van het huidige meetnet. Het huidige meetnet is gericht op het verkrijgen van een landelijk beeld. De meetlocaties zijn daarom ook op die wijze geselecteerd, ver weg van grote bronnen. Voor een orde van grootte: achttien meetstations in heel Nederland (bijna 400 00 km<sup>2</sup>) maakt de stations representatief op een schaal van bijna 50 bij 50 km. De depositie is in de directe omgeving van bronnen daardoor veel hoger dan het landelijk gemiddelde. De resultaten uit het huidige onderzoek zijn meer representatief voor het landelijk gemiddelde. De kans dat door dit proces hoge concentraties in oppervlaktewater optreden die mogelijk leiden tot effecten is dan ook hoger.

Opvallend is verder dat bijna 20% van de geëmitteerde hoeveelheid materiaal deponert binnen één kilometer van de bron. In het hier gegeven voorbeeld is gekozen voor een redelijk goed oplosbare stof. Bij minder goed oplosbare stoffen kan het verloop van de concentratie iets anders zijn en kan een kleinere fractie deponeren. De invloed op het verloop van de concentratie is echter vrij klein. Het verloop van de concentratie met de afstand wordt voornamelijk bepaald door verdunning. De gedeponeerde fractie hangt veel sterker af van de fysisch chemische eigenschappen. Het hier gegeven voorbeeld is ruwweg het maximum. Van minder goed oplosbare stoffen deponert minder op geringe afstand van de bron.



Figuur V.1 De concentratie in lucht van een voorbeeld stof (zwaveldioxide) en de fractie van de geëmitteerde stof die deponert, als functie van de afstand tot de bron, bij een veld van 100 bij 100 m bij een bronsterkte van 0,01 g/s.





## **Bijlage VI Concentraties en deposities in Noord-Holland**

### **1.1 Inleiding**

In de provincie Noord-Holland zijn gedurende de looptijd van het project metingen verricht op extra meetstations. In deze bijlage worden de resultaten van de metingen op deze stations nog apart besproken.

### **1.2 Resultaten**

#### *1.2.1 Concentraties en normen*

Tabel VI.1, Tabel VI.2, Tabel VI.3, Tabel VI.4, Tabel VI.5 en Tabel VI.6 geven de resultaten van de metingen in de provincie op de locaties Andijk, Anna Paulowna, Aalsmeer en Egmond. De overschrijding van de drinkwaternorm van *chloorprofam* is hoog op de meetlocaties in Noord-Holland ten opzichte van de andere meetlocaties in Nederland. De gemiddelde concentratie bereikt een waarde van zes keer de drinkwaternorm, terwijl gemiddeld in heel Nederland (incl. Noord-Holland) een factor vier wordt bereikt. Het percentage van de monsters waarin de norm wordt overschreden is het dubbele van het percentage voor heel Nederland (incl. Noord-Holland). *Pyrazofos*, *tolcofos-methyl* en *chloorthalonil* overschrijden alleen in Noord-Holland de drinkwaternorm in neerslag (Tabel VI.7).

De concentratie van *chloorthalonil* werd in 2000 alleen op de meetlocatie Anna Paulowna gemeten en overschreed daar in 90% van de neerslagmonsters het MTR voor oppervlaktewater. De maximale overschrijding was een factor 32! In 2001 werd het MTR voor *chloorthalonil* in 25% van de monsters overschreden hetgeen overeenkomt met het landelijk gemiddelde. Ook in 2001 werd de maximale overschrijding in Anna Paulowna aangetroffen. *Pyrazofos* en *chloorfeninfos* overschreden alleen in Noord-Holland het MTR in neerslag.

Tabel VI.1 Overzicht van het voorkomen van pesticiden in luchtmonsters in Noord-Holland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het percentage van de monsters waarin de stof is aangetroffen gegeven (- deze stof is niet meer bepaald, 0: de stof is wel bepaald, maar niet aangetroffen).

Stof	Aangetoond in lucht 2000 (%)	Aangetoond in lucht 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/m <sup>3</sup> )
2,4-D	0	0	0,000	0,000
aldrin	0	-	0,000	-
atrazin	4	2	0,003	0,000
bentazon	0	6	0,000	0,009
bitertanol	0	-	0,000	-
captan	0	2	0,000	0,012
chloorfenvinfos	2	2	0,002	0,004
chloorprofam	52	56	1,940	0,714
chloorpyriphos-methyl	21	12	0,003	0,001
chloorthalonil <sup>1</sup>	56	34	0,229	0,217
chlolidazon (pyrazon)	0	-	0,000	-
deltametrin	0	-	0,000	-
demetone-S-methyl	33	-	0,060	-
diazinon	2	0	0,002	0,000
dichlobenil	98	98	1,565	1,071
dichloorvos	0	6	0,000	0,016
dicofol	0	-	0,000	-
dimethoaat	0	2	0,000	0,002
disulfoton	0	-	0,000	-
DNOC	21	28	0,299	0,302
endosulfan I	0	0	0,000	0,000
endosulfan II	2	0	0,009	0,000
endrin	11	-	0,023	-
epoxiconazol	0	-	0,000	-
ethofumesaat <sup>1</sup>	22	22	0,003	0,040
Parathion-ethyl	0	0	0,000	0,000
fenitrothion	0	-	0,000	-
fenthion	0	-	0,000	-
fluazinam	25	20	0,029	0,015
fluroxypyr <sup>2</sup>	0	12	0,000	0,036
fosfamidon	0	-	0,000	-
heptachloor	0	0	0,000	0,000
heptachloor epoxide	44	-	0,004	-
heptenofos	0	-	0,000	-
hexachloor-1,3-butadieen	11	-	0,009	-
hexachloorbenzeen	42	32	0,006	0,010
isoxaflutole	0	-	0,000	-
kresoxim-methyl <sup>1</sup>	33	12	0,017	0,006
lindaan	12	2	0,056	0,003
malathion	0	-	0,000	-
MCPA	2	0	0,000	0,000
mecoprop	2	4	0,000	0,002
metamitron	0	-	0,000	-
methiocarb	0	4	0,000	0,001
methomyl	0	-	0,000	-
parathion-methyl	0	-	0,000	-
metolachloor	0	2	0,000	0,000
mevinfos	2	4	0,001	0,006
o,p'-DDD <sup>1</sup>	11	0	0,016	0,000
o,p'-DDE	11	-	0,007	-

Stof	Aangetoond in lucht 2000 (%)	Aangetoond in lucht 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/m <sup>3</sup> )
p,p'-DDT <sup>1</sup>		-		-
PCP	79	74	0,055	0,067
pentachloorbenzeen <sup>2</sup>	33	26	0,010	0,004
pirimicarb	0	0	0,000	0,000
pirimifos-methyl	19	10	0,019	0,796
prochloraz	0	0	0,000	0,000
procymidon	44	22	0,055	0,025
propachloor	40	28	0,436	0,158
propoxur	2	0	0,002	0,000
pyrazofos	4	0	0,003	0,000
simazin	8	4	0,019	0,014
telodrin	11	-	0,003	-
terbutylazine <sup>1</sup>	0	6	0,000	0,018
tetrabromobisfenol A <sup>1</sup>	44	22	0,000	0,005
tolclofos-methyl	33	30	0,161	0,247
triadimenol	0	-	0,000	-
triallaat	75	60	0,316	0,131
triazofos	0	-	0,000	-
trifluralin	81	92	0,193	0,328
vinclozolin <sup>1</sup>	89	36	0,321	0,171

<sup>1)</sup> Stoffen die in 2000 op vier locaties zijn bepaald en in 2001 op alle locaties.

- Stoffen die in het jaar 2001 niet meer zijn bepaald.

Tabel VI.2 Overzicht van het voorkomen van pesticiden in neerslagmonsters in Noord-Holland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het percentage van de monsters, waarin de stof is aangetroffen, gegeven (- deze stof is niet meer bepaald, 0: de stof is wel bepaald, maar niet aangetroffen).

Stof	Aangetoond in neerslag 2000 (%)	Aangetoond in neerslag 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/l)	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/l)
2,4-D	10	33	0,9	2,0
aldrin	0	-	0,0	-
atrazin	21	23	10,1	13,8
bentazon	2	12	0,3	0,3
bitertanol	0	-	0,0	-
captan	11	8	4,9	22,7
chloorfenvinfos	4	4	0,5	1,0
chloorprofam	96	87	250,8	102,2
chloorpyriphos-methyl	52	38	0,7	0,2
chloorthalonil <sup>1</sup>	100	60	52,6	17,0
chloridazon (pyrazon)	0	-	0,0	-
deltametrin	0	-	0,0	-
demetone-S-methyl	0	-	0,0	-
diazinon	4	12	0,8	1,0
dichlobenil	100	88	17,8	13,7
dichloorvos	23	27	3,2	3,3
dicofol	0	-	0,0	-
dimethoat	8	0	8,4	0,0
disulfoton	0	-	0,0	-
DNOC	100	96	1168,4	451,7

<b>Stof</b>	<b>Aangetoond in neerslag 2000 (%)</b>	<b>Aangetoond in neerslag 2001 (%)</b>	<b>Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/l)</b>	<b>Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/l)</b>
endosulfan I	0	0	0,0	0,0
endosulfan II	2	2	0,5	0,2
endrin	0	-	0,0	-
epoxiconazol	0	-	0,0	-
ethofumesaat <sup>1</sup>	40	12	5,1	9,1
parathion-ethyl	2	0	0,5	0,0
fenitrothion	0	-	0,0	-
fenthion	0	-	0,0	-
fluazinam	48	40	6,3	15,7
fluroxypyr <sup>2</sup>	40	4	12,9	0,2
fosfamidon	0	-	0,0	-
heptachloor	0	0	0,0	0,0
heptachloor epoxide	0	-	0,0	-
heptenofos	0	-	0,0	-
hexachloor-1,3-butadieen	0	-	0,0	-
hexachloorbenzeen	94	79	0,5	0,5
isoxaflutole	0	-	0,0	-
kresoxim-methyl <sup>1</sup>	50	44	13,4	8,7
lindaan	31	31	16,8	15,1
malathion	0	-	0,0	-
MCPA	63	52	10,9	7,8
mecoprop	42	31	7,4	5,5
metamitron	10	-	0,5	-
methiocarb	7	12	0,1	2,8
methomyl	0	-	0,0	-
parathion-methyl	0	-	0,0	-
metolachloor	21	15	5,7	2,0
mevinfos	2	8	0,3	0,2
o,p'-DDD <sup>1</sup>	10	2	0,1	0,0
o,p'-DDE	0	-	0,0	-
p,p'-DDT <sup>1</sup>	0	-	-	-
PCP	98	88	9,4	5,0
pentachloorbenzeen <sup>2</sup>	90	81	0,4	0,3
pirimicarb	0	6	0,0	0,3
pirimifos-methyl	0	8	0,0	10,2
prochloraz	2	2	1,1	2,9
procymidon	81	69	17,0	6,8
propachloor	54	52	126,4	62,0
propoxur	21	12	2,6	0,7
pyrazofos	4	0	6,2	0,0
simazin	2	4	0,5	1,3
telodrin	0	-	0,0	-
terbutylazine <sup>1</sup>	40	29	3,1	10,0
tetrabromobisfenol A <sup>1</sup>	50	71	0,0	4,1
tolclofos-methyl	19	29	4,7	8,3
triadimenol	0	-	0,0	-
triallaat	79	50	23,0	3,2
triazofos	0	-	0,0	-
trifluralin	73	79	2,6	4,4
vinclozolin <sup>1</sup>	100	83	45,7	18,9

Tabel VI.3 Overzicht van het voorkomen van PAK in luchtmonsters in Noord-Holland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het percentage van de monsters, waarin de stof is aangetroffen, gegeven.

Stof	Aangetoond in lucht 2000 (%)	Aangetoond in lucht 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/m <sup>3</sup> )
acenaftéen	100	97	2,293	1,747
acenaftyleen	50	55	0,083	0,124
antraceen	90	61	0,137	0,087
benzo[a]antraceen	73	29	0,027	0,006
benzo[a]pyreen	73	71	0,036	0,031
benzo[b]fluoranteen	83	89	0,080	0,139
benzo[g,h,i]peryleen	88	82	0,033	0,050
benzo[k]fluoranteen	83	92	0,052	0,095
chryseen	73	32	0,104	0,016
dibenz[a,h]-antraceen	63	50	0,004	0,008
fenantreen	100	97	6,522	5,841
fluoranteen	96	97	1,867	1,822
fluoreen	100	97	3,591	2,855
indeno[1,2,3-cd]pyreen	79	76	0,028	0,047
naftaleen	100	100	12,769	12,994
pyreen	92	92	0,775	0,728

Tabel VI.4 Overzicht van het voorkomen van PCB's in luchtmonsters in Noord-Holland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het percentage van de monsters, waarin de stof is aangetroffen, gegeven (0: de stof is wel bepaald, maar niet aangetroffen).

Stof	Aangetoond in lucht 2000 (%)	Aangetoond in lucht 2001 (%)	Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/m <sup>3</sup> )	Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/m <sup>3</sup> )
PCB-101	38	24	0,004	0,003
PCB-118	0	5	0,0004	0,000
PCB-138	15	3	0,0002	0,001
PCB-153	25	5	0,0001	0,001
PCB-180	12	0	0,000	0,0003
PCB-20	19	18	0,007	0,010
PCB-28	17	18	0,004	0,009
PCB-35	2	8	0,002	0,001
PCB-52	19	26	0,007	0,003
PCB-8	21	21	0,005	0,003

Tabel VI.5 Overzicht van het voorkomen van PAK in neerslagmonsters in Noord-Holland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het percentage van de monsters, waarin de stof is aangetroffen, gegeven.

<b>Stof</b>	<b>Aangetoond in neerslag 2000 (%)</b>	<b>Aangetoond in neerslag 2001 (%)</b>	<b>Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/l)</b>	<b>Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/l)</b>
acenafteen	98	95	7,9	6,0
acenaftyleen	31	50	3,0	4,1
antraceen	100	95	8,5	7,1
benzo[a]antraceen	100	100	11,8	11,6
benzo[a]pyreen	88	98	18,2	16,5
benzo[b]fluoranteen	100	100	39,1	30,1
benzo[g,h,i]peryleen	98	95	18,3	13,7
benzo[k]fluoranteen	100	100	23,0	22,8
chryseen	100	100	34,0	31,2
dibenz[a,h]-antraceen	79	88	2,9	3,7
fenantreen	100	100	96,4	95,3
fluoranteen	100	100	94,2	93,6
fluoreen	100	100	16,3	14,5
indeno[1,2,3-cd]pyreen	92	95	16,0	12,5
naftaleen	100	100	73,3	41,0
pyreen	100	98	52,1	58,1

Tabel VI.6 Overzicht van het voorkomen van PCB's in neerslagmonsters in Nederland voor de jaren 2000 en 2001. Naast de gemiddelde concentratie over alle monsters is ook het gemiddelde van alleen die monsters, waarin de stof is aangetroffen, gegeven.

<b>Stof</b>	<b>Aangetoond in neerslag 2000 (%)</b>	<b>Aangetoond in neerslag 2001 (%)</b>	<b>Gemiddelde Concentratie 2000 (ng/l)</b>	<b>Gemiddelde Concentratie 2001 (ng/l)</b>
PCB-101	50	15	1,4	0,1
PCB-118	33	3	0,4	0,02
PCB-138	46	8	0,4	0,2
PCB-153	73	33	0,5	0,2
PCB-180	13	5	0,1	0,2
PCB-20	42	45	0,9	0,6
PCB-28	37	5	1,3	0,1
PCB-35	6	5	0,1	0,1
PCB-52	31	23	2,0	0,4
PCB-8	10	0	0,1	0,0

Tabel VI.7 Stoffen die de drinkwaternorm in neerslag overschrijden (100 ng/l), op de meetlocaties in Noord-Holland in 2000 en 2001. Weergegeven zijn het percentage monsters dat de norm overschrijdt en de gemiddelde concentratie in die monsters.

<b>Stof</b>	<b>% monsters &gt; drinkwaternorm 2000</b>	<b>% monsters &gt; drinkwaternorm 2001</b>	<b>Gemiddelde concentratie van monster boven de drink- waternorm 2000</b>	<b>Gemiddelde concentratie van monster boven de drink- waternorm 2001</b>
<b>Fungiciden</b>				
captan	0	2	0	999
chloorthalonil	10	4	325	190
fluazinam	0	4	0	143
prochloraz	0	2	0	152
procymidon	2	0	245	0
pyrazofos	2	0	320	0
tolclofos-methyl	0	2	0	105
vinclozolin	2	4	174	146
<b>Herbiciden</b>				
atrazine	0	6	0	118
chloorprofam	37	33	638	252
dichlobenil	2	2	259	167
ethofumesaat	0	2	0	323
propachloor	29	21	407	252
terbutylazine	0	2	0	156
<b>Insecticiden</b>				
dimethoat	6	0	146	0
lindaan	6	2	117	341
pirimifos-methyl	0	8	0	132
<b>Overig</b>				
DNOC	100	96	1168	470
PCP	2	0	165	0



Tabel VI.8 Overschrijding van het MTR in neerslagmonsters op de meetlocaties in Noord-Holland 2000 en 2001. Weergegeven zijn het percentage maand-monsters dat het MTR overschrijdt, de maximale MTR overschrijding en de toepassing.

Stof	Toe- pas- sing	MTR  (ng/l)	% aange- toond in neerslag 2000	Concen- tratie in neerslag 2000 (ng/l)	% > MTR 2000	% aange- toond in neerslag 2001	Concen- tratie in neerslag 2001 (ng/l)	% > MTR 2001
chloorthalonil	F	10	100	52,6	90	60	17,0	25
captan	F	110	11	4,9	0	8	22,7	2
pyrazofos	F	40	4	6,2	2	0	0,0	0
propachloor	H	1300	54	126,4	2	52	62,0	0
chloorfenvinfos	I	2	4	0,5	4	4	1,0	4
chloorpyriphos-methyl	I	3	52	0,7	6	38	0,2	0
dichloorvos	I	0,7	23	3,2	23	27	3,3	27
parathion-ethyl	I	2	2	0,5	2	-	-	-
mevinfos	I	2	2	0,3	2	8	0,2	6
propoxur	I	10	21	2,6	4	12	0,7	2
methiocarb	I en B	16	7	0,1	0	12	2,8	8
pirimifos-methyl	I/A	2	0	0,0	0	8	10,2	8
benzo[a]antraceen	PAK	30	100	11,8	4	100	11,6	0
fenantreen	PAK	300	100	96,4	4	100	95,3	3
fluoranteen	PAK	500	100	94,2	2	100	93,6	3

### 1.2.2 Vrachten van atmosferische depositie in de provincie Noord-Holland

De totale atmosferische depositie van pesticiden naar het oppervlaktewater (g/ha/jr) in het jaar 2000 en 2001 zijn weergegeven in Tabel VI.9 en Tabel VI.10. Naast de gemiddelde depositie over Noord-Holland en de depositie naar de vier meetlocaties in Noord-Holland is ter vergelijking de landelijk gemiddelde depositie over Nederland weergegeven. Voor *chloorprofam*, *chloorthalonil*, *chloorpyriphos-methyl*, *procymidon* en *tolcofos-methyl* en *vinclozolin* is de belasting van het oppervlaktewater op meetlocaties in Noord-Holland hoger dan de Nederlands gemiddelde belasting. Het gaat hier om stoffen die voornamelijk in de bollenteelt of aardappelteelt worden gebruikt.

In 2001 werd voor één derde van de onderzochte stoffen de maximale depositie aangetroffen op een meetstation in de provincie. Dit is iets meer dan verwacht zou mogen worden aan de hand van de verdeling van de meetstations. Vier van de in totaal 18 meetstations liggen in de provincie. Bij een evenredige verdeling van de maxima over het land zou dus slechts 4/18 (22%) van de maxima in de provincie vallen. Deze geringe verhoging van dit percentage wordt waarschijnlijk veroorzaakt door de toevallige ligging van de meetstations ten opzichte van bronnen en de samenstelling van het analysepakket.

Tabel VI.9 De totale atmosferische depositie van pesticiden naar het oppervlaktewater (g/ha/jr) in het jaar 2000. De gemiddelde depositie over Nederland, over Noord-Holland en de depositie naar de vier meetlocaties in Noord-Holland zijn weergegeven. De betrouwbaarheid van de **vet gedrukte** stoffen is goed. Van de andere is de betrouwbaarheid laag (zie ook tekst). De scheef gedrukte "0" betekent dat de stof niet is aangetroffen.

Totale depositie naar oppervlaktewater (g/ha/jr) 2000	Nederlands gemiddelde	Gemiddelde Noord-Holland	Aalsmeer	Andijk	Anna Paulowna	Egmond	Locatie maximum Nederland
<b>2,4-D</b>	0,004	0,005	0,003	0,008	0,004	0,003	KE
<b>atrazine</b>	0,09	0,07	0,05	0,08	0,07	0,08	WY
<b>bentazon</b>	0,01	0,003	0,00	0,01	0,00	0,00	ZI
<b>captan</b>	0,06	0,05	0,05	0,05	0,05	0,03	WY
chloorfenvinfos	0,003	0,006	0,00	0,002	0,00	0,02	EG
<b>chloorprofam</b>	1,99	4,43	0,53	2,93	9,81	4,43	AP
<b>chloorpyriphos-methyl</b>	0,005	0,008	0,001	0,004	0,018	0,010	ZI
<b>chloorthalonil</b>	0,29	0,32	-	-	0,32	-	VE
<b>diazinon</b>	0,005	0,01	0,03	0,00	0,00	0,00	AL
<b>dichlobenil</b>	2,45	2,51	2,25	2,39	4,01	1,39	YE
<b>dichloorvos</b>	0,06	0,03	0,05	0,03	0,01	0,02	GP
<b>dimethoat</b>	0,02	0,07	0,08	0,11	0,00	0,07	AN
<b>DNOC</b>	8,56	9,08	10,09	8,88	8,79	8,54	SP
<b>endosulfan II</b>	0,01	0,01	0,02	0,00	0,00	0,04	GP
<b>epoxiconazol</b>	0,02	0,00	-	-	0,00	-	GP
<b>ethofumesaat</b>	0,04	0,04	-	-	0,04	-	GP
<b>fluazinam</b>	0,11	0,08	0,17	0,08	0,05	0,03	YE
<b>fluroxypyr</b>	0,07	0,10	-	-	0,10	-	GP
<b>heptachloor epoxide</b>	0,007	0,005	-	-	0,005	-	GP
<b>hexachloorbenzeen</b>	0,01	0,01	0,003	0,02	0,02	0,01	AP
<b>kresoxim-methyl</b>	0,04	0,09	-	-	0,09	-	AP
<b>lindaan</b>	0,14	0,18	0,22	0,28	0,08	0,12	WY
<b>MCPA</b>	0,06	0,06	0,07	0,05	0,07	0,06	YE
<b>mecoprop</b>	0,04	0,04	0,04	0,04	0,03	0,04	YE
<b>methiocarb</b>	0,0002	0,001	0,004	0,000	0,000	0,000	AL
<b>metolachloor</b>	0,08	0,04	0,02	0,07	0,03	0,05	WY
<b>mevinvos</b>	0,007	0,003	0,000	0,000	0,007	0,005	SP
<b>o,p'-DDD</b>	0,03	0,02	-	-	0,02	-	GP
<b>PCP</b>	0,14	0,13	0,13	0,13	0,13	0,13	ST
<b>pentachloorbenzeen</b>	0,002	0,01	-	-	0,01	-	AP
pirimicarb	0,002	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	SP
<b>pirimifos-methyl</b>	0,016	0,024	0,003	0,002	0,083	0,007	AP
prochloraz	0,01	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	NO
<b>procymidon</b>	0,09	0,16	0,06	0,15	0,19	0,26	ZI
<b>propachloor</b>	1,12	1,30	0,76	2,01	1,78	0,64	KE
<b>propoxur</b>	0,01	0,02	0,03	0,03	0,003	0,002	AN
pyrazofos	0,02	0,03	0,00	0,00	0,00	0,13	EG
simazine	0,01	0,03	0,07	0,03	0,02	0,00	AL
<b>terbutylazine</b>	0,05	0,02	-	-	0,02	-	GP
<b>tetrabromobisfenol A</b>	0,0001	0,0001	-	-	0,0001	-	DE
<b>tolclofos-methyl</b>	0,05	0,12	0,00	0,03	0,37	0,06	ZI
<b>triallaat</b>	0,72	0,63	0,56	0,67	0,66	0,61	KE
<b>trifluralin</b>	0,21	0,24	0,28	0,21	0,25	0,20	ZI
<b>vinclozolin</b>	0,28	0,71	-	-	0,71	-	AP

Tabel VI.10 De totale atmosferische depositie van pesticiden naar het oppervlaktewater (g/ha/jr) in het jaar 2001. De gemiddelde depositie over Nederland, over Noord-Holland en de depositie naar de vier meetlocaties in Noord-Holland zijn weergegeven. De betrouwbaarheid van de **vet gedrukte** stoffen is goed. Van de andere is de betrouwbaarheid laag (zie ook tekst). De scheef gedrukte "0" betekent dat de stof niet is aangetroffen.

Totale depositie naar oppervlaktewater (g/ha/jr) 2001	Nederlands gemiddelde	Gemiddelde Noord-Holland	Aalsmeer	Andijk	Anna Paulowna	Egmond	Locatie maximum Nederland
<b>2,4-D</b>	0,01	0,01	0,01	0,01	0,03	0,01	AP
<b>atrazine</b>	0,09	0,07	0,11	0,06	0,05	0,06	YE
<b>bentazon</b>	0,03	0,02	0,002	0,020	0,008	0,037	KE
<b>captan</b>	0,31	0,36	1,25	0,00	0,12	0,08	AL
chloorfenvinfos	0,002	0,01	0,00	0,00	0,01	0,03	EG
<b>chloorprofam</b>	1,04	1,78	0,39	1,55	2,71	2,45	ZI
<b>chloorpyriphos-methyl</b>	0,002	0,003	0,001	0,002	0,006	0,002	KE
<b>chloorthalonil</b>	0,14	0,18	0,11	0,17	0,36	0,09	AP
<b>diazinon</b>	0,003	0,01	0,01	0,03	0,01	0,00	AN
<b>dichlobenil</b>	1,59	1,75	1,81	2,06	2,05	1,07	KE
<b>dichloorvos</b>	0,07	0,05	0,08	0,10	0,03	0,01	DE
<b>dimethoaat</b>	0,01	0,003	0,00	0,01	0,00	0,00	WY
<b>DNOC</b>	4,33	4,05	3,74	4,14	4,33	4,00	DE
<b>endosulfan II</b>	0,003	0,002	0,00	0,00	0,01	0,00	VE
<b>epoxiconazol</b>	-	-	-	-	-	-	-
<b>ethofumesaat</b>	0,12	0,09	0,12	0,11	0,12	0,02	WY
<b>fluazinam</b>	0,19	0,14	0,08	0,13	0,25	0,08	KE
<b>fluroxypyr</b>	0,03	0,05	0,08	0,00	0,08	0,04	AL
<b>heptachloor epoxide</b>	-	-	-	-	-	-	-
<b>hexachloorbenzeen</b>	0,01	0,02	0,01	0,02	0,01	0,01	AN
<b>kresoxim-methyl</b>	0,06	0,06	0,03	0,06	0,10	0,04	WY
<b>lindaan</b>	0,08	0,09	0,25	0,03	0,05	0,04	AL
<b>MCPA</b>	0,05	0,06	0,08	0,04	0,09	0,03	AP
<b>mecoprop</b>	0,04	0,04	0,04	0,04	0,07	0,03	WY
<b>methiocarb</b>	0,02	0,03	0,02	0,02	0,07	0,02	BE
<b>metolachloor</b>	0,02	0,02	0,06	0,002	0,008	0,004	WY
<b>mevinvos</b>	0,01	0,01	0,02	0,002	0,02	0,00	LE
<b>o,p'-DDD</b>	0,004	0,0002	0,001	0,00	0,00	0,00	KE
<b>PCP</b>	0,10	0,14	0,17	0,22	0,08	0,09	AN
<b>pentachloorbenzeen</b>	0,002	0,004	0,004	0,006	0,005	0,002	AN
pirimicarb	0,004	0,004	0,000	0,016	0,001	0,000	AN
<b>pirimifos-methyl</b>	1,26	1,10	1,58	0,71	0,89	1,23	LE
prochloraz	0,01	0,02	0,00	0,08	0,00	0,00	AN
<b>procymidon</b>	0,04	0,08	0,02	0,06	0,10	0,13	ZI
<b>propachloor</b>	0,69	0,63	0,62	0,58	1,00	0,30	KE
<b>propoxur</b>	0,01	0,01	0,011	0,011	0,001	0,000	DE
pyrazofos	0,001	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	VE
simazine	0,01	0,03	0,00	0,02	0,07	0,03	AP
<b>terbutylazine</b>	0,10	0,07	0,06	0,04	0,04	0,15	GP
<b>tetrabromobisfenol A</b>	0,03	0,04	0,04	0,07	0,01	0,04	ZI
<b>tolclofos-methyl</b>	0,04	0,16	0,02	0,21	0,33	0,08	AP
<b>triallaat</b>	0,29	0,18	0,15	0,14	0,23	0,21	WY
<b>trifluralin</b>	0,30	0,40	0,27	0,38	0,46	0,48	YE
<b>vinclozolin</b>	0,38	0,38	0,10	0,33	0,85	0,25	KE

Tabel VI.11 De atmosferische depositie van PAK en PCB naar het Nederlands oppervlaktewater en naar oppervlaktewater in Noord-Holland in het jaar 2000. De betrouwbaarheid van de in **vet** gedrukte stoffen is goed. Van de andere is de betrouwbaarheid laag.

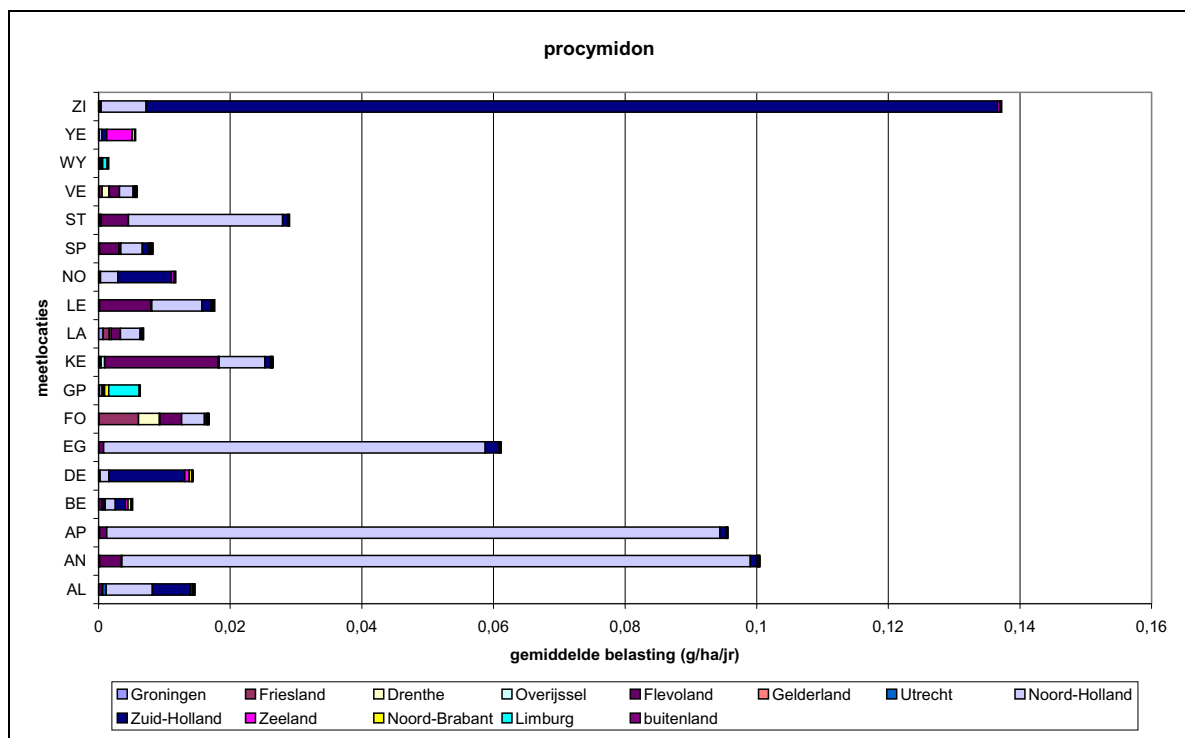
Atmosferische depositie	Nederlands gemiddelde	Gemiddelde Noord-Holland	Aalsmeer	Andijk	Anna Paulowna	Egmond	Locatie maximum Nederland
<b>PAK</b>							
acenaftteen	2,51	2,27	2,77	1,56	1,62	3,14	LA
acenaftyleen	0,19	0,12	0,20	0,08	0,07	0,12	NO
antraceen	0,64	0,26	0,29	0,18	0,28	0,27	KE
benzo[a]antraceen	0,13	0,14	0,14	0,11	0,11	0,20	EG
benzo[a]pyreen	0,21	0,19	0,24	0,14	0,14	0,25	KE
benzo[b]fluoranteen	0,49	0,45	0,42	0,39	0,33	0,67	KE
benzo[g,h,i]peryleen	0,19	0,20	0,19	0,18	0,16	0,28	EG
benzo[k]fluoranteen	0,32	0,27	0,25	0,21	0,21	0,41	KE
chryseen	0,47	0,45	0,43	0,39	0,34	0,63	NO
dibenz[a,h]antraceen	0,03	0,03	0,03	0,03	0,02	0,04	SP
fenantreen	8,65	9,08	10,39	7,14	7,69	11,10	NO
fluoranteen	3,08	3,45	3,36	2,96	2,50	4,97	EG
fluoreen	4,49	4,15	4,75	3,58	3,32	4,95	NO
indeno[1,2,3-cd]pyreen	0,17	0,18	0,15	0,16	0,14	0,26	EG
naftaleen	7,04	7,21	10,37	5,49	5,65	7,32	AL
pyreen	1,73	1,63	1,77	1,33	1,30	2,13	NO
<b>PCB</b>							
PCB-101	0,009	0,010	0,006	0,007	0,019	0,009	AP
PCB-118	0,003	0,003	0,001	0,002	0,005	0,002	AP
PCB-138	0,003	0,003	0,001	0,002	0,005	0,003	NO
PCB-153	0,004	0,003	0,001	0,002	0,004	0,005	SP
PCB-180	0,002	0,001	0,000	0,000	0,000	0,001	KE
PCB-20	0,008	0,008	0,004	0,006	0,008	0,012	NO
PCB-28	0,009	0,010	0,009	0,009	0,014	0,010	NO
PCB-35	0,001	0,001	0,001	0,001	0,000	0,002	EG
PCB-52	0,015	0,013	0,009	0,008	0,024	0,012	LA
PCB-8	0,003	0,002	0,002	0,002	0,003	0,001	NO

Tabel VI.12 De atmosferische depositie van PAK en PCB naar het Nederlands oppervlaktewater en naar oppervlaktewater in Noord-Holland in het jaar 2001. De betrouwbaarheid van de in **vet** gedrukte stoffen is goed. Van de andere is de betrouwbaarheid laag

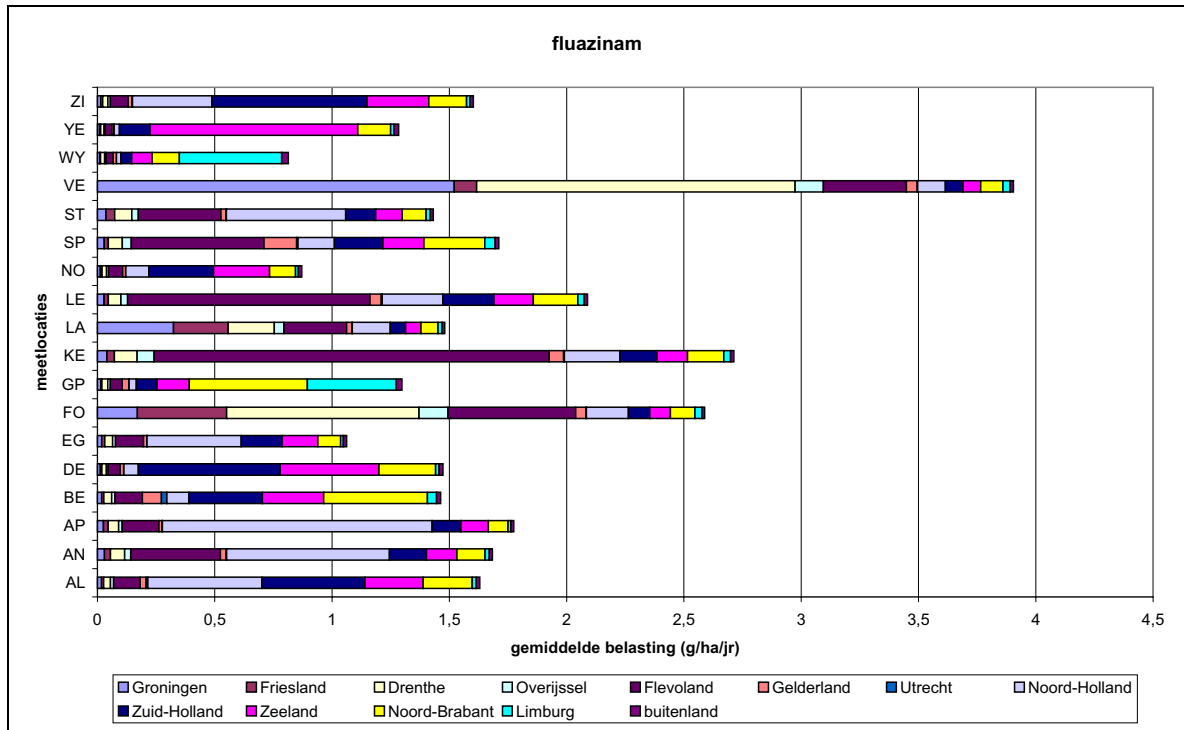
Atmosferische depositie	Nederlands gemiddelde	Gemiddelde Noord-Holland	Aalsmeer	Andijk	Anna Paulowna	Egmond	Locatie maximum Nederland
<b>PAK</b>							
acenaftteen	1,60	1,74	1,94	1,06	1,73	2,24	EG
acenaftyleen	0,16	0,17	0,34	0,13	0,12	0,07	NO
antraceen	0,18	0,16	0,16	0,09	0,20	0,19	NO
benzo[a]antraceen	0,08	0,08	0,08	0,07	0,07	0,09	EG
benzo[a]pyreen	0,12	0,13	0,16	0,11	0,13	0,11	AL
benzo[b]fluoranteen	0,33	0,36	0,48	0,31	0,32	0,33	AL
benzo[g,h,i]peryleen	0,13	0,15	0,20	0,13	0,14	0,13	AL
benzo[k]fluoranteen	0,23	0,27	0,35	0,22	0,25	0,25	AL
chryseen	0,23	0,21	0,21	0,19	0,20	0,25	EG
dibenz[a,h]antraceen	0,03	0,04	0,03	0,04	0,05	0,03	AP
fenantreen	7,38	8,06	9,52	5,51	7,94	9,28	NO
fluoranteen	2,68	3,27	3,54	1,96	3,21	4,39	EG
fluoreen	3,44	3,31	4,00	2,53	2,96	3,75	NO
indeno[1,2,3-cd]pyreen	0,13	0,14	0,18	0,12	0,12	0,13	AL
naftaleen	6,34	7,09	11,29	5,24	5,82	6,01	AL
pyreen	1,44	1,51	1,56	0,90	1,64	1,93	NO
<b>PCB</b>							
PCB-101	0,002	0,002	0,001	0,003	0,001	0,001	LA
PCB-118	0,005	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	LE
PCB-138	0,002	0,001	0,001	0,004	0,001	0,000	KE
PCB-153	0,003	0,002	0,002	0,003	0,002	0,000	KE
PCB-180	0,001	0,001	0,001	0,005	0,000	0,000	AN
PCB-20	0,006	0,005	0,009	0,005	0,003	0,004	LA
PCB-28	0,006	0,003	0,008	0,002	0,000	0,001	LA
PCB-35	0,001	0,001	0,002	0,001	0,002	0,000	AL
PCB-52	0,006	0,004	0,003	0,006	0,004	0,002	KE
PCB-8	0,002	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	NO

## Bijlage VII Bijdrage van de verschillende provincies en het buitenland aan de deposities op de meetlocaties

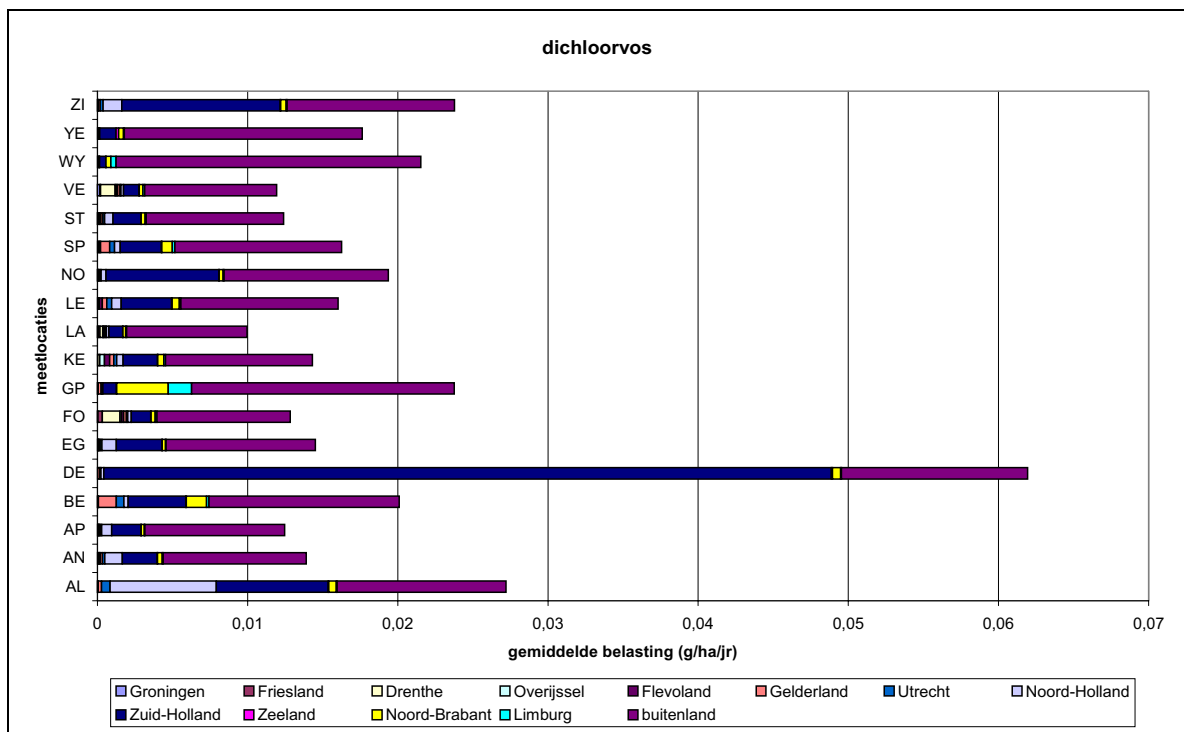
Figuur VII.1 tot en met Figuur VII.5 laten deze bijdragen zien voor de pesticiden *procymidon*, *fluaznam*, *dichloorvos* en *chloorthalonil* en voor de PAK *benzo(a)pyreen*. Uit de figuren blijkt dat het grootste aandeel van de depositie op de meetlocaties uit de eigen provincie afkomstig is. Behalve voor *dichloorvos* en *benzo(a)pyreen* is de bijdrage vanuit het buitenland op de depositie op de meetlocaties klein.



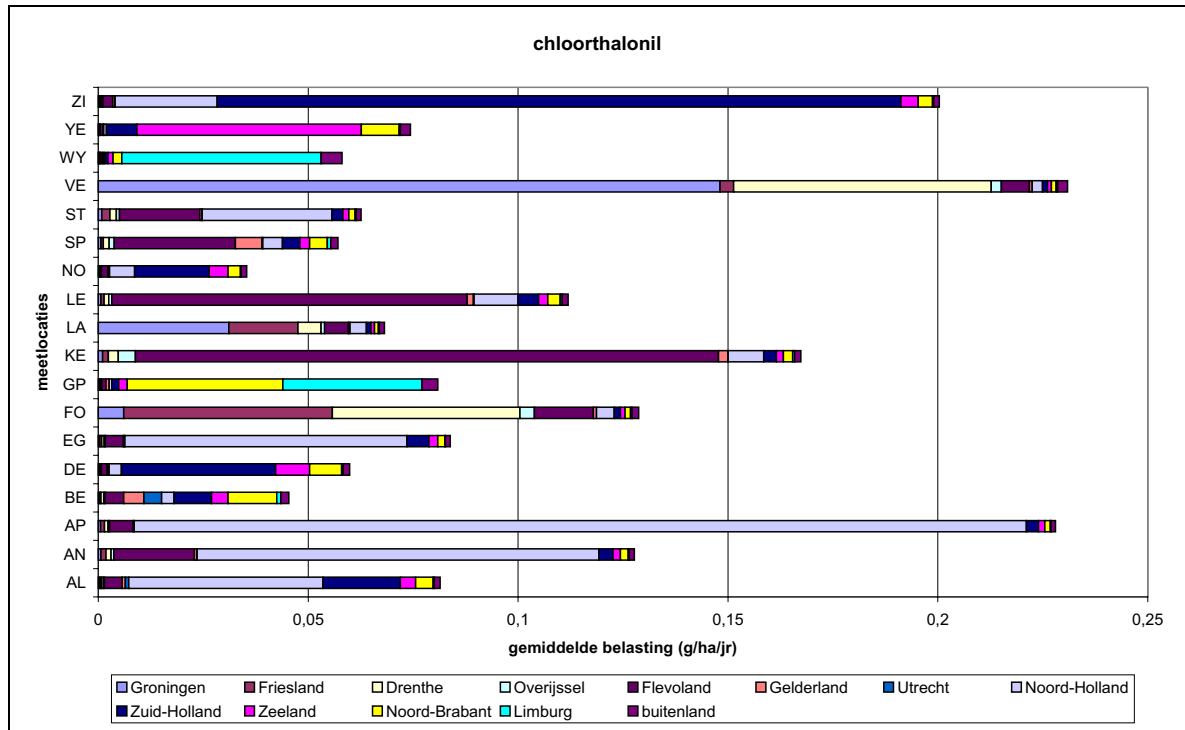
Figuur VII.1 Bijdragen van emissies van procymidon per provincie en vanuit het buitenland op de gemiddelde belasting op de meetlocaties (g/ha).



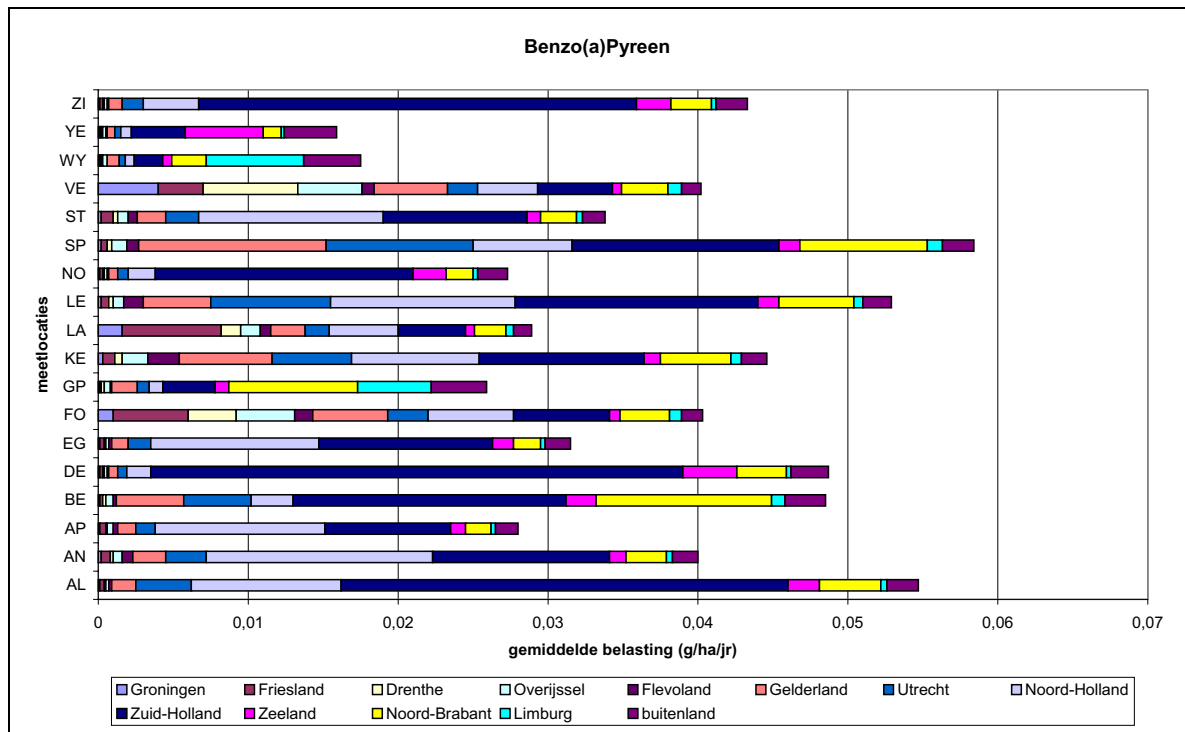
Figuur VII.2 Bijdragen van emissies van fluazinaam per provincie en vanuit het buitenland op de gemiddelde belasting op de meetlocaties (g/ha).



Figuur VII.3 Bijdragen van emissies van dichloorvos per provincie en vanuit het buitenland op de gemiddelde belasting op de meetlocaties (g/ha).



Figuur VII.4 Bijdragen van emissies van chloorthalonil per provincie en vanuit het buitenland op de gemiddelde belasting op de meetlocaties (g/ha).



Figuur VII.5 Bijdragen van emissies van Benzo(a)Pyreen per provincie en vanuit het buitenland op de gemiddelde belasting op de meetlocaties (g/ha).





## Bijlage VIII De concentratie van enkele polaire pesticiden in neerslag

Tabel VIII.1 De concentratie van enkele polaire pesticiden in neerslag van een beperkt aantal locaties. Achtereenvolgens staan vermeld de stofnaam, de datum waarop de monsternamen werden gestopt (vier weken daarvoor werd deze gestart), en de concentratie van de stof in ng/l.

Stof	Datum	Andijk	Delft	Fochteloerveen	Wynandsrade
isoproturon	29-03-00	34	37	28	130
	25-04-00	41	60	geen monster	geen monster
	24-05-00	< 20	< 20	< 20	22
	21-06-00	< 20	< 20	28	130
	16-08-00	< 10	< 10	< 10	< 10
	13-09-00	< 10	< 10	< 10	< 10
diuron	29-3-00	< 15	< 15	< 15	< 15
	25-4-00	< 15	32	geen monster	geen monster
	24-5-00	25	< 15	< 15	24
	21-6-00	< 15	18	< 15	< 20
	16-8-00	< 7	< 7	< 7	< 7
	13-9-00	< 7	< 7	< 7	< 7
metoxuron	16-08-00	7	14	< 10	< 10
metabromuron	24-05-00	< 20	< 20	< 20	51
	21-06-00	51	< 20	< 20	< 25
pencycuron	24-05-00	47	27		
carbendazim	29-03-00	< 25			
	21-06-00	< 45			
	16-08-00	< 40			
	13-09-00	< 40			
chloridazon	25-04-00	31			
metamitron	24-05-00	60			



## Bijlage IX De atmosferische depositie van pesticiden vergeleken met het gebruik van de werkzame stof in Nederland

De tabel laat zien dat er een groot verschil bestaat tussen de verschillende stoffen. Extreme waarden ontstaan door bijdragen van het buitenland en onjuistheden in de geschatte emissie of de depositie.

Tabel IX.1 De depositie op het oppervlaktewater in Nederland en de Nederlandse bodem in het jaar 2000 vergeleken met het gebruik in het jaar 2000. Gebaseerd op de resultaten van deze studie en gegevens van het CBS voor 1998.

	Totale depositie naar oppervlaktewater als percentage van het verbruik in 2000	Totale depositie naar bodem als % van het verbruik in 2000
2,4-D	0,09	0,56
atrazine	0,04	0,30
bentazon	0,01	0,08
captan	0,02	0,07
chloorfenvinfos	0,10	0,29
chloorprofam	2,16	7,69
chloorpyriphos-methyl	0,16	0,59
chloorthalonil	0,04	0,12
diazinon	0,10	0,86
dichlobenil	151,81	59,64
dichloorvos	7,90	39,36
dimethoat	0,04	0,26
DNOC	26,71	166,26
ethofumesate	0,03	0,20
ethyl-parathion	0,01	0,05
fluazinam	0,02	0,10
fluroxypyr	0,17	0,54
kresoxim-methyl	0,92	5,10
lindaan	1,41	5,86
MCPA	0,05	0,32
MCPP	0,04	0,26
methiocarb	0,00	0,00
metolachloor	0,05	0,31
mevinvos	0,11	0,21
pirimicarb	0,01	0,05
pirimiphos-methyl	0,47	0,12
prochloraz	0,01	0,09
procymidon	0,70	2,64
propachloor	1,86	4,92
propoxur	8,67	44,29
pyrazofos	0,15	0,48
simazine	0,13	0,47
terbutylazine	0,06	0,46
tolclofos-methyl	0,14	0,68
triallaat	5,57	9,58
vinclozolin	0,69	3,17
<b>mediaan</b>	<b>0,11</b>	<b>0,46</b>

