

Energy
Princetonlaan 6
3584 CB Utrecht
Postbus 80015
3508 TA Utrecht

www.tno.nl

T +31 88 866 42 56

TNO-rapport

TNO 2019 R11581

Reistijdverdelingen en nitraatprognoses voor 15 bronnen in het KRW-meetnet Krijt-Maas op basis van metingen van tritium in 2001, 2009 en 2017

Datum 4 oktober 2019

Auteur(s) Mariëlle van Vliet
Hans Peter Broers

Exemplaarnummer

Oplage

Aantal pagina's 64(incl. bijlagen)

Aantal bijlagen 6

Opdrachtgever

Projectnaam Dateren KRW meetnet Limburg Zand-Maas

Projectnummer 060.26274

Alle rechten voorbehouden.

Niets uit deze uitgave mag worden vermenigvuldigd en/of openbaar gemaakt door middel van druk, fotokopie, microfilm of op welke andere wijze dan ook, zonder voorafgaande toestemming van TNO.

Indien dit rapport in opdracht werd uitgebracht, wordt voor de rechten en verplichtingen van opdrachtgever en opdrachtnemer verwezen naar de Algemene Voorwaarden voor opdrachten aan TNO, dan wel de betreffende terzake tussen de partijen gesloten overeenkomst.

Het ter inzage geven van het TNO-rapport aan direct belanghebbenden is toegestaan.

© 2019 TNO

Samenvatting

Het dateren van grondwater in bronnen en waarnemingsputten geeft inzicht in over de snelheid van het transport van water en stoffen in de ondergrond; daarmee vergroot dateren het inzicht in de hydrologische situatie van grondwater en bronwater. Dit rapport behandelt de datering van het bronnenmeetnet van de provincie Limburg in het grondwaterlichaam Krijt-Maas.

Bij bronnen is altijd sprake van mengwater van water van verschillende leeftijden op een plek waar convergentie van stroming optreedt. Bij het bronnenmeetnet kijken we daarom naar de leeftijdsverdeling van het mengwater, die we kunnen afleiden uit een serie tritiummetingen over langere tijd (jaren tot tientallen jaren).

De doelen van het bronnenonderzoek zijn:

- Het verkrijgen van een tritiumanalyse van de geselecteerde bronnen in het meetjaar 2017;
- Inzicht verkrijgen in de fluctuatie van de leeftijdsverdeling van de bronnen over het jaar (de dynamiek van de bronnen);
- Het schatten van de leeftijdsverdeling uit het verloop van de tritiumconcentraties in de tijd;
- Gebruiken van de leeftijdsverdeling om het waarschijnlijke verloop van de nitraat, sulfaat- en chlorideconcentraties in de tijd te reconstrueren en die reconstructie te vergelijken met de gemeten concentraties;
- Het opstellen van een prognose voor het toekomstige verloop van nitraat, sulfaat en chloride.

Bij 15 bronnen uit het KRW-bronnenmeetnet is tussen mei 2017 en februari 2018 iedere 3 maanden een monster genomen dat in het Oceanografisch Laboratorium van de Universiteit Bremen op tritium is geanalyseerd, in aanvulling op eerdere metingen in dezelfde bronnen in 2001 (Hendrix en Meinardi 2004) en 2008/2009 (Broers et al, 2009, en Broers en Van Vliet, 2018). De nieuwe tritiummetingen volgen de dalende trend in tritiumconcentraties voor elk van de onderzochte bronnen.

De 3-maandelijkse metingen uit 2017/2018 laten betrekkelijke kleine variaties zien in de tritiumconcentraties in elk van de bronnen. Deze variaties over het jaar zijn klein ten opzichte van de langjarige daling van tritium over de periode 2001 tot 2018. Korte termijnvariaties blijken daarom nauwelijks effect te hebben op de leeftijdsverdelingen zoals die uit de langjarige trend kunnen worden afgeleid.

Voor 13 van de 15 bronnen kan het verloop van tritium tussen 2001 en 2018 worden gebruikt om een reistijdverdeling af te leiden voor het mengwater dat in de bronnen uittreedt. Het verloop van de gemeten tritiumconcentraties is daarvoor vergeleken met een set van theoretische reistijdverdelingen waarin zowel de verschillende gemiddelde reistijd (MTT) en onverzadigde zone vertraging (PF) zijn gevarieerd. De tritiummetingen leveren niet altijd een eenduidige reistijdverdeling; vaak zijn er 2 modellen die het verloop in de tijd kunnen verklaren: één met een relatief hoge gemiddelde leeftijd (50-100 jaar, oud model) en één met een gemiddeld jonge leeftijd (2-30 jaar, jong model). In veel gevallen is één van de 2 afgeleide verdelingen duidelijk beter dan de ander; maar soms is de keuze duidelijk moeilijker en zijn meerdere modellen mogelijk. De keuze voor het uiteindelijke model is gemaakt door een vergelijking met de in de bronnen gemeten nitraat-, chloride- en sulfaatmetingen waarbij de mate van fit op het tritiumverloop wel steeds leidend was.

In onderstaande tabel zijn de belangrijkste resultaten samengevat. Karakteristieke reistijd is hier gedefinieerd als de som van de gemiddelde reistijd (MTT) en de onverzadigde zone vertraging (PF).

Karakteristieke reistijd	Bronnen:	Hydrogeologische setting	Verloop nitraat
12 tot 22 jaar	CPMA-002 CPMA-034 CPGE-062 CPGB-022 MPNO-001* CRGE-032*	Bronnenniveaus aan de randen van het Centraal Plateau of in de hogere delen van de droge dalen van de zuidelijke plateaus.	Hoge concentraties tussen 50 en 200 mg/l rond het jaar 2000, sindsdien dalend naar 50 tot 100 mg/l. Vaak duidelijke korte termijnvariaties in nitraatconcentraties ten gevolge van weersinvloeden.
70 tot 110 jaar	UBGE-001 CRGE-031 CRGE-033* CRGU-005 MPGE-006 VYGE-019A VYGE-058*	Bronnen in de middendelen van de droge dalen van de zuidelijke plateaus en aan de voet van de plateaus in de belangrijkste beekdalen van Zuid-Limburg.	Concentraties tussen 30 en 50 mg/l rond het jaar 2000 en sindsdien licht dalend, stabiel of licht stijgend. Korte termijnvariaties in nitraat zijn klein.

**) Bronnen die mogelijk beter met een bi-modaal model te verklaren zijn met een parallel snel en langzaam deel van het stromingssysteem*

Op basis van de afgeleide reistijdverdelingen is een reconstructie gemaakt van de nitraat-, chloride en sulfaatconcentraties, die vervolgens is vergeleken met de gemeten concentraties van de 3 stoffen. De patronen van nitraat en chloride komen voor veel van de onderzochte bronnen goed overeen met het voorkeursreistijdenmodel. De meeste onderzochte bronnen op de noordelijke plateaus worden gekenmerkt door een relatief korte reistijd, en de hoge nitraatconcentraties die in deze bronnen zijn gemeten zijn inmiddels aan het dalen. Uit de prognoses die via convolutie zijn opgesteld op basis van de reistijdmodellen blijkt dat deze concentraties tot 2027 verder zullen dalen. De meeste bronnen op de zuidelijke plateaus worden gekenmerkt door lange gemiddelde reistijd en lagere nitraatconcentraties. Op basis van de reconstructies en prognoses van nitraat op basis van de afgeleide reistijdverdelingen wordt een stabilisatie of nog iets verdere stijging verwacht. Die stabilisatie blijkt ook uit de gemeten concentraties, waarbij de concentraties bij enkele bronnen al een daling laten zien. Mogelijk is bij die bronnen (waaronder CRGE-033 en MPNO-001) sprake van een duaal stromingssysteem waarbij de concentraties nitraat in het jonge, snel toestromende water al dalen terwijl de onderstroom van uitredend water een dempend effect heeft op de snelheid van daling.

De effecten van reductie van mestgiften zijn op de noordelijke plateaus en in bronnen met relatief jong water al goed merkbaar aan de forse daling van concentraties, maar de reductie is in bronnen met een trager stromingssysteem nog minder goed herkenbaar; in die systemen zijn de concentraties van nitraat echter al lager dan in de jonge systemen en bestaan indicaties voor een verdere geleidelijke daling.

Het voorzetten van de meetspanning van het Krijt-Maas meetnet is de moeite waard en het is nuttig om de resultaten van de monitoring te verwerken in provinciale plannen. Door het blijven meten van de bronnen iedere 3 maanden ontstaat inzicht in de variatie van de nitraatconcentraties. Bij een te lage meetfrequentie is er kans dat een eventuele trend verkeerd wordt ingeschat. Aanbevolen wordt om ook het debiet van de bronnen systematisch

te gaan monitoren, om op die manier de variaties in nitraatconcentraties beter te kunnen duiden en eventuele effecten van weer- en klimaatveranderingen tijdig te onderkennen.

Daarnaast wordt aanbevolen elke 6 tot 8 jaar te blijven analyseren op tritium om op die manier de leeftijdsverdeling van de bronnen steeds beter te kunnen inperken. Daarmee zullen ook de reconstructies van het verloop van nitraatconcentraties zekerder worden, zeker voor bronnen die mogelijk deel uitmaken van een duaal stromingssysteem met een snel en een traag deel.

Inhoudsopgave

	Samenvatting	2
1	Inleiding	6
2	Datering van de bronnen in Krijt-Maas	8
2.1	Selectie en bemonstering van de bronnen	8
2.2	Tritiumanalyses.....	10
2.3	Vaststellen van de leeftijdsverdeling	10
2.4	Reconstructie en prognose van het verloop van de nitraat-, sulfaat- en chlorideconcentraties in de bronnen.....	14
3	Resultaten van de datering van de bronnen	21
3.1	Resultaten tritiumanalyses van de bronnen	21
3.2	Leeftijdsverdeling in de bronnen.....	21
3.3	Fluctuatie van de leeftijdsverdeling (seizoensvariatie) en samenhang met gemeten concentraties	22
3.4	Reconstructie en prognose van de ontwikkeling van nitraat en andere stoffen	24
3.5	Ambigue bronnen	26
3.6	Leeftijdsbepaling en prognoses zonder oudere tritiummeting.....	29
3.7	Synthese.....	30
4	Conclusies en aanbevelingen	36
4.1	Conclusies	36
4.2	Aanbevelingen	37
4.3	Vooruitblik	38
5	Referenties	40
6	Ondertekening	42
	Bijlage(n)	
	A Overzichtskaart bronnen en winningen	
	B Overzichtstabel bronnen met selectiecriteria	
	C Resultaten van de tritiumanalyses van de bronnen	
	D Model fits reistijdverdelingen op basis van het verloop van tritium concentraties	
	E Vergelijking van de gemodelleerde nitraat-, chloride- en sulfaatconcentraties met de meetdata van het RIVM en het KRW Krijt-Maas bronnenmeetnet	
	F Prognoses nitraatconcentraties 2027 en 2035	

1 Inleiding

Aanleiding

Het dateren van grondwater in bronnen en waarnemingsputten geeft inzicht in over de snelheid van het transport van water en stoffen in de ondergrond; daarmee vergroot dateren het inzicht in de hydrologische situatie van grondwater en bronwater. Door een beter systeembegrip kan op termijn vaak worden bespaard op de monitoringskosten, bijvoorbeeld door de bemonsteringsfrequentie van het meetnet op een verantwoorde manier te verlagen. Dit rapport behandelt de datering van het bronnenmeetnet van de provincie Limburg in het grondwaterlichaam Krijt-Maas, dat is opgezet voor de evaluatie van de doelen van de Kaderrichtlijn Water (KRW). De datering van het grondwatermeetnet in het grondwaterlichaam Zand-Maas wordt in een separaat rapport besproken (Kivits et al., 2019). Dateren van het bronnenmeetnet is wezenlijk anders dan het dateren van grondwater in waarnemingsputten, omdat bij bronnen altijd sprake is van menging van water van verschillende leeftijden op een plek waar convergentie van stroming optreedt, terwijl in een kort waarnemingsfilter de menging van verschillende leeftijden veel minder optreedt. Bij het bronnenmeetnet kijken we daarom naar de leeftijdsverdeling van het mengwater.

Bronnenmeetnet

In 2005 is een opzet gemaakt voor het KRW-meetprogramma Krijt-Maas dat resulteerde het huidige bronnenmeetnet (Broers et al., 2005). Dit meetnet bestaat uit 24 bronnen in het Mergelland die 4 keer per jaar worden bemonsterd door de provincie. De waarde van de al eerder opgebouwde meetreeks wordt groter als we inzicht hebben in de leeftijdsverdeling van de bronnen en nog meer als we weten hoe de leeftijdsverdeling van deze bronnen over het jaar fluctueert; op die manier krijgen we meer inzicht in de dynamiek van de bronnen. De leeftijdsverdeling kan worden afgeleid uit een serie tritiummetingen in de tijd, bij voorkeur over langere tijd (jaren tot tientallen jaren). De beschikbaarheid van oude tritiummetingen is daarbij erg nuttig. In het bronnenmeetnet zijn voor veel bronnen metingen aanwezig uit het jaar 2001 (Hendrix en Meinardi 2004), tevens zijn voor een aantal bronnen van het meetnet nog oudere metingen beschikbaar.

Vraagstelling

De Provincie Limburg heeft TNO verzocht om datering van het bronnenmeetnet met tritium uit te voeren en een bijhorende interpretatie en rapportage te maken. Deze studie zal meer inzicht leveren in oorzaken van de meerjarige trend in de concentraties van nitraat en andere stoffen in de bronnen. Ook kan beter worden ingeschat hoe deze concentraties in de toekomst zullen gaan veranderen. De resultaten kunnen worden gebruikt voor een onderbouwing voor het al dan niet behalen, op korte of langere termijn, van de KRW-doelen.

Doelen van het bronnenonderzoek zijn:

- Het verkrijgen van een tritiumanalyse van de geselecteerde bronnen in het meetjaar 2017;
- Inzicht verkrijgen in de fluctuatie van de leeftijdsverdeling van de bronnen over het jaar (de dynamiek van de bronnen);
- Het schatten van de leeftijdsverdeling uit het verloop van de tritiumconcentraties in de tijd;

- Gebruiken van de leeftijdsverdeling om het waarschijnlijke verloop van de nitraat, sulfaat- en chlorideconcentraties in de tijd te reconstrueren en die reconstructie te vergelijken met de gemeten concentraties;
- Het opstellen van een prognose voor het toekomstige verloop van nitraat, sulfaat en chloride.

Opbouw rapport

In het volgende hoofdstuk wordt de selectie en de bemonstering van de bronnen, de tritiumanalyses, de leeftijdsbepaling en de convolutie van de concentraties toegelicht. In hoofdstuk 3 worden de resultaten van de datering besproken. Hoofdstuk 4 bevat de conclusies en aanbevelingen.

2 Datering van de bronnen in Krijt-Maas

2.1 Selectie en bemonstering van de bronnen

Het water dat uittreedt in een bron is een mengsel van water van verschillende leeftijden. Daarom zijn we bij de bronnen niet geïnteresseerd in een enkele leeftijd, maar in het verloop van de verdeling van leeftijden in de mix. Voor het vaststellen van deze leeftijdsverdeling is een extensieve meetreeks van tritiumconcentraties nodig over een langere periode. Door eerder werk van Hendrix en Meinardi (2004), Broers et al. (2009) en een recent uitgevoerde studie voor RIVM (Broers en Van Vliet, 2018) zijn tritiummetingen van een 80-tal bronnen beschikbaar uit 2001 en 2008/2009. Samen met de tritiummetingen uit 2017 uit het voorliggend onderzoek is dan voldoende informatie beschikbaar om een leeftijdsverdeling te kunnen schatten. Bijlage A geeft een overzichtskaart van bronnen uit het RIVM- en Krijt-Maas meetnet en winningen in het onderzoeksgebied.

De beschikbaarheid van tritiummetingen uit 2001 en 2008/2009 is een belangrijk selectie criterium geweest bij het selecteren van de bronnen. Bij 20 van 24 bronnen uit het provinciale bronnenmeetnet zijn oude metingen beschikbaar. Andere selectiecriteria zijn een voldoende en liefst groot debiet, een aanzienlijke lengte van de (chemische) tijdreeks (tijdreeks vanaf begin jaren-90 heeft de voorkeur) en voldoende informatie over de mate van variatie in de tijd van stoffen als nitraat, chloride en sulfaat. In de selectie hebben we zowel bronnen met een stabiel chemisch regime betrokken als bronnen die door het jaar heen meer fluctuatie vertonen. Er is in beperkte mate informatie over debieten voorhanden, bijvoorbeeld uit het werk van Hendrix en Meinardi (2004). Tabel 2.1 toont de 15 geselecteerde bronnen en hoe vaak en op welke datum ze zijn bemonsterd. In Bijlage B is een overzichtstabel van alle bronnen opgenomen inclusief de selectiecriteria.

Tabel 2.1 Overzicht van de bemonsterde bronnen weergegeven met zowel provinciale naam als (indien beschikbaar) RIVM-id en hoe vaak en op welke datum de bronnen zijn bemonsterd voor het huidige onderzoek.

Provincie id	RIVM id	Aantal	Datum
CPGB-022	n.091	4	09-05-2017 22-08-2017 31-10-2017 07-02-2018
CPGE-062	n.020	4	09-05-2017 22-08-2017 02-11-2017 09-02-2018
CPMA-002	n.002	6	09-05-2017 21-06-2017 10-07-2017 22-08-2017 31-10-2017 07-02-2018
CPMA-034	n.010	4	09-05-2017 22-08-2017 31-10-2017 07-02-2018

Provincie id	RIVM id	Aantal	Datum
CRGE-031	z.027	4	10-05-2017 24-08-2017 01-11-2017 08-02-2018
CRGE-032	z.025	4	10-05-2017 24-08-2017 01-11-2017 08-02-2018
CRGE-033	z.028	4	10-05-2017 24-08-2017 01-11-2017 08-02-2018
CRGU-005	z.035	4	11-05-2017 23-08-2017 02-11-2017 08-02-2018
MPGE-006	z.039	4	11-05-2017 23-08-2017 02-11-2017 09-02-2018
MPNO-001	z.001	3	11-05-2017 23-08-2017 09-02-2018
UBEY-002		3	23-08-2017 01-11-2017 08-02-2018
UBGE-001	n.037s	4	09-05-2017 22-08-2017 02-11-2017 07-02-2018
VYGE-019A		4	10-05-2017 24-08-2017 01-11-2017 08-02-2018
VYGE-058		4	10-05-2017 24-08-2017 01-11-2017 08-02-2018
VYSI-002		3	24-08-2017 01-11-2017 08-02-2018

De bemonstering van de bronnen is in mei, augustus en oktober/november 2017 en februari 2018 uitgevoerd door de medewerkers van de Provincie Limburg. Tijdens de 4 bemonsteringsronden van het meetnet hebben zij een door TNO aangeleverde monsterfles van 1 liter gevuld voor de tritiumanalyse.

Van bron MPNO-001 (z.001) is per abuis in oktober/november 2017 geen monster genomen. Voor bron CPMA-002 (n.002) zijn juist meer monsters genomen (extra monsters uit juni en juli 2017). Het was namelijk in eerste instantie de bedoeling om deze bron gedurende een jaar maandelijks te monitoren. Voor deze beleidsmatig interessante bron zou worden nagegaan of de leeftijdsverdeling ook kan worden vastgesteld als geen eerdere tijdreeks van tritiummetingen ter beschikking is. Echter, na aanvang van de opdracht bleek dat deze bron deel uitmaakt van zowel het RIVM en als provinciale bronnenmeetnet. Daardoor zijn voor deze bron al tritiummetingen beschikbaar en is afgezien van maandelijkse bemonstering.

Daarvoor in de plaats zijn de bronnen UBEY-002 en VYSI-002 later aan de selectie toegevoegd. Hierdoor is voor deze twee bronnen geen tritiumanalyse van mei 2017 beschikbaar. Ook zijn deze bronnen niet in eerdere onderzoeken op tritium geanalyseerd, maar de bedoeling is om ze bij eventuele volgende meetrondes wel te betrekken zodat ook hier een tijdreeks wordt opgebouwd.

2.2 Tritiumanalyses

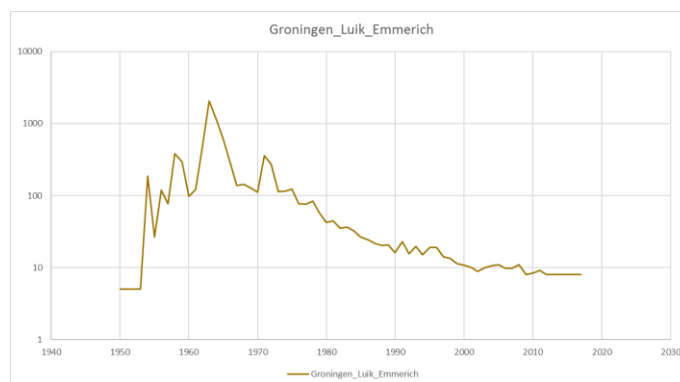
De monsters van de bronnen zijn door TNO voor de precieze bepaling van de tritiumconcentratie naar het Oceanografisch Laboratorium van de Universiteit Bremen gebracht. Doordat van alle monsters 1 liter water ter beschikking was, konden de monsters in duplo worden gemeten. Daarmee wordt de kans verkleind dat een volledig monster komt te vervallen als er iets misgaat met een van de half-duplo's tijdens de monsternamen of de analyse in het lab. De tritiumbepaling is op dezelfde manier uitgevoerd als voor het grondwatermeetnet (Kivits et al, 2019). In Bijlage B zijn de gemeten tritiumconcentraties van de monsters weergegeven.

2.3 Vaststellen van de leeftijdsverdeling

Na de tritiumanalyse zijn van de bemonsterde bronnen meerdere tritiumconcentraties beschikbaar. Alleen van de 4 bronnen die geen deel uitmaken van het RIVM-bronnenmeetnet (UBEY-002, VYGE-019A, VYGE-058 en VYSI-002) zijn geen tritiumanalyses uit 2001 en 2009 beschikbaar.

Voor 6 van 15 bronnen (CRGE-032/z.025, MPGE-006/z.039, MPNO-001/z.001, UBGE-001/n.037s, VYGE-019A en VYGE-058) is een extra tritiumanalyse uit 2008 aanwezig afkomstig van een pilotonderzoek (Broers et al., 2009).

Om op basis van de tritiummetingen een leeftijdsverdeling te kunnen afleiden is het nodig om een goede schatting te hebben van de tritiumconcentraties in de neerslag gedurende de hele infiltratieperiode van het grondwater. Zo'n reeks is verkregen door extrapolatie van de metingen van een aantal neerslagstations in Nederland, Duitsland en België. Omdat deze datareeksen niet allemaal compleet zijn en verschillende lengtes en meetperiodes hebben, is via regressie tussen de stations een zo representatief mogelijke reeks voor zuidelijk Limburg gemaakt (Figuur 2.1). De data is beschikbaar in de database van het Global Network of Isotopes in Precipitation (GNIP) en zijn voorbereid zodanig dat er een naar neerslaghoeveelheid gewogen jaarlijkse tritiumconcentratie in neerslag is gegeven.



Figuur 2.1 Inputreeks tritiumconcentraties in neerslag op basis GNIP-data (log-schaal). GNIP staat voor Global Network of Isotopes in Precipitation. Op x-as staat jaar en op y-as de tritiumconcentratie (log-schaal).

Via een zogenaamd “lumped parameter model” (Maloszewski & Zuber 1996, 1998) en het principe van convolutie¹ kunnen deze concentraties worden gerelateerd aan het verloop van de tritiumconcentratie van mengwater van verschillende leeftijden zoals dat in de bronnen uittreedt. Dat verloop wordt afgeleid van de oorspronkelijke concentraties van tritium in het neerslagwater van de afgelopen 65 jaar, de bekende snelheid van radioactief verval en de gemiddelde reistijd van het water uit het mengsel van verschillende leeftijden. Het verloop van tritiumconcentraties uit het mengsel is duidelijk verschillend voor een mengsel met ouder water dan voor een mengsel met een groter aandeel jong water.

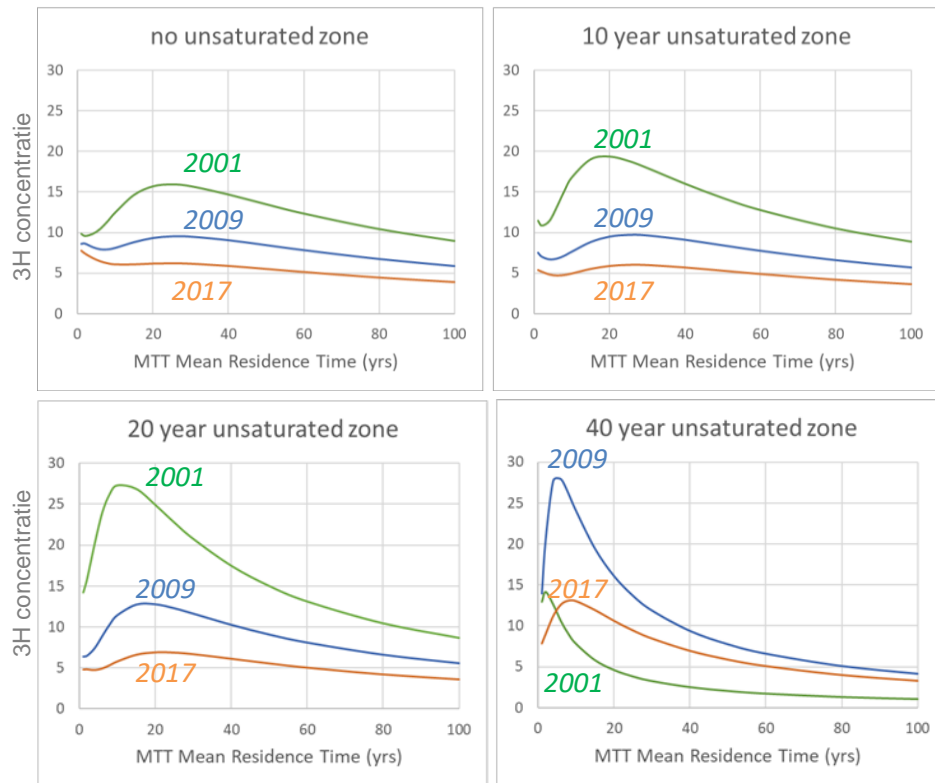
Via “trial and error” kunnen we de gemeten tritiumconcentraties in de bronnen fitten op reistijdverdelingen van verschillende kunstmatig gecreëerde mengsels. Op basis van de eerdere studie (Broers et al. 2009) is gewerkt met een combinatie van een zogenaamde exponentiële reistijdverdeling (EM-model) en een piston flow model (PF) voor het verticale transport in de onverzadigde zone. Het piston flow model beschrijft daarmee de vertraging die water ondergaat voordat het deel uit gaat maken van de stroming in de verzadigde zone; hoe dikker de onverzadigde zone, hoe groter die vertraging zal zijn. Het EM-model beschrijft de stroming in de verzadigde zone en wordt gekarakteriseerd door de Mean Travel Time (MTT). Omdat een grondwatersysteem een flux gedreven systeem is, namelijk de infiltratieflux die wordt gevoed door neerslagwater op plateaus, en het grondwatersysteem op één punt, de bron, uittreedt, is een EM-model voor veel grondwatersystemen een goede eerste benadering. Korte, ondiepe stroombanen brengen daarbij het jonge water richting de bron, terwijl diepe, lange stroombanen tegelijkertijd oud water aanleveren aan het brondebiet. De bijbehorende reistijdverdeling beschrijft die menging en kent een exponentieel verloop, en de gemiddelde reistijd kan dan worden benaderd door de formule $MTT = \text{volume} / \text{flux}$ (zie bijvoorbeeld Van Ommen 1986, Raats 1978 en Broers 2004).

We hebben een discreet aantal combinaties gemaakt van de reistijd in de onverzadigde zone (PF-vertraging = 0, 5, 10 en 20 jaar) en de gemiddelde reistijd in het EM-model (MTT = 1, 2, 4, 6, 8, 10, 15, 20, 25, 30, 40, 50, 60, 80 en 100 jaar) waarmee we feitelijk een serie van verschillende leeftijdsmengsels gegenereerd

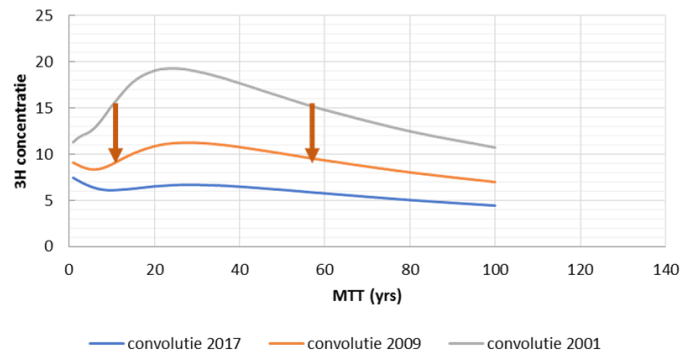
¹ Convolutie is het samenvoegen van twee (wiskundige) functies met als resultaat een nieuwe functie

hebben. Elk van deze combinaties is vervolgens geconvolveerd met de tritium-inputreeks in neerslag van Figuur 2.1.

De verschillende combinaties van MTT (Mean Travel Time) en PF (Piston Flow vertraging) geven hele verschillende tritium (^3H) veranderingen over 2001-2009-2017. Figuur 2.2 toont de MTT tegen de ^3H -concentratie voor een model zonder onverzadigde zone, en met 10, 20 en 40 jaar onverzadigde zone. Uit de figuren blijkt dat zowel de gemiddelde reistijd uit het EM-model als de onverzadigde zonevertraging uit het PF-model grote invloed hebben op het verloop en de hoogte van de tritiumconcentraties in de bron, en dat verschillende combinaties verrassend verschillend kunnen uitpakken. In Figuur 2.2 is het verloop af te leiden door een verticale lijn te bekijken bij een bepaalde waarde van de MTT. Voor een model met een MTT van 40 en geen onverzadigde zone verandert de tritiumconcentraties tussen 2001 en 2017 bijvoorbeeld van 15 TU, via 8.5 TU naar 6 TU. Maar in een geval met een MTT van 40 jaar en een onverzadigde zone vertraging van 20 jaar verandert de concentratie in dezelfde periode van 17.5 via 10 TU naar 6.5 TU. Door dit verloop met werkelijk gemeten tritiumconcentraties in de bron te vergelijken kan worden nagegaan welke combinatie van MTT en PF-vertraging die bron het best benadert. Vaak is daarbij een goede fit voor zowel een jong als een oud model beschikbaar. Dit wordt geïllustreerd In Figuur 2.3 waar de linkerpil een relatief jonge leeftijdsopbouw (MTT =10 jaar) en de rechterpil de veel oudere leeftijdsopbouw (MTT = 55 jaar) weergeeft, die allebei dezelfde ^3H verandering tussen 2001 en 2009 voortbrengen. Om deze reden zijn steeds 2 modellen geselecteerd die de ^3H metingen het best beschrijven in het jonge en het oude domein. Deze ambiguïteit zal op termijn verdwijnen als een langere reeks ^3H metingen beschikbaar komt.



Figuur 2.2 Verloop van de tritiumconcentratie van een mengsel in een bron (y-as) als functie van de gemiddelde reistijd in het EM-model (MTT) en de vertraging in de onverzadigde zone (x-as). "No unsaturated zone" betekent: er is geen vertraging van de afstroming door een piston flow component die de onverzadigde zone representeert.



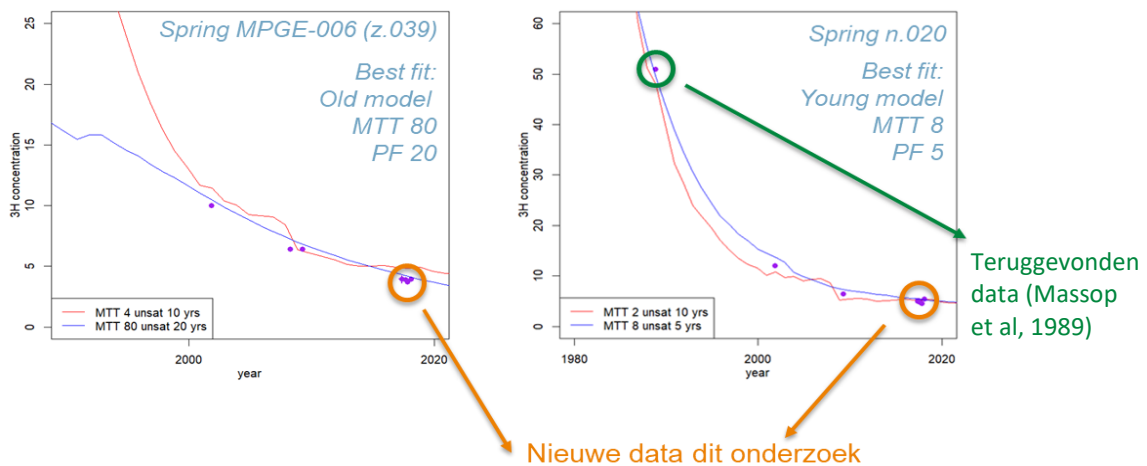
Figuur 2.3 Twee modellen die de afname van ^3H van ca. 15 naar 9 TU tussen 2001 en 2009 kunnen verklaren; een leeftijdsopbouw met een MTT van 10 jaar en een leeftijdsopbouw met een MTT van 56 jaar.

Na het maken van deze artificiële reistijd-mengreeks zijn de gemeten tritiumconcentraties in de bronnen vergeleken met het verloop van die tritiumconcentraties bij verschillende MTT's en onverzadigde zone reistijden. De nieuwste tritiummetingen uit 2017 zijn daarbij per bron gemiddeld en in een tijdreeks met de waarnemingen uit 2001, 2008 en 2009 opgenomen. Door die tijdreeks te vergelijken met het gegenereerde verloop uit de leeftijdsmengsels kan voor elke bron telkens het beste jonge model (lage MTT) en oude model (hoog

MTT) gekozen worden. Figuur 2.4 toont het beste oude en jonge model voor bron MPGE-006 (links) en bron CPGE-062 (rechts). De oranje cirkels geven aan welke nieuwe tritiumdata in dit onderzoek zijn verzameld.

Voor bron MPGE-006 geeft het oude model (blauwe lijn met MTT 80, unsat 20 jaar) de beste fit, maar kan op basis van de tritiumdata ook een jong model met MTT=4 en PF 10 niet worden uitgesloten.

Voor bron CPGE-062 is de beste fit een jong model (rode lijn, MTT8, unsat 5) en kan een ouder model wel worden uitgesloten, omdat het de gemeten data niet kan fitten. In Figuur 2.4 zijn daarom 2 jonge modellen getoond, waarbij het rode model net iets beter presteert dan het blauwe. Voor deze bron hebben we een oude tritiummeting uit 1988 teruggevonden afkomstig uit het afstudeeronderzoek van TNO-collega Ronald Vernes (Massop et al., 1989). Deze meting is weergegeven met een groene cirkel in rechter figuur en hebben we ook gebruikt voor de nieuwe tritiummodellering.



Figuur 2.4 De twee modellen die de ^3H concentraties in bron MPGE-006 (z.039) en CPGE-062 (n.020) het best voorspellen: voor bron MPGE-006 is één model in het jonge bereik (rood) en één in het oude bereik (blauw) beschikbaar. Bron CPGE-062 kan alleen door een jong model worden gepresenteerd, waarbij 2 (jonge) best-fit mogelijkheden zijn getoond.

Op gelijke wijze is de leeftijdsverdeling afgeleid voor alle 13 bronnen waarvoor naast de nieuwe tritiummetingen ook metingen uit 2001, 2008 of 2009 beschikbaar waren. In veel gevallen is één van de 2 afgeleide verdelingen duidelijk beter dan de ander; maar soms is de keuze duidelijk moeilijker en zijn meerdere modellen mogelijk. De keuze voor het uiteindelijke model is gemaakt door een vergelijking met de gemeten nitraat-, chloride- en sulfaatmetingen (zie paragraaf 2.4 en 3.5), maar daarbij was de mate van fit van het ^3H convolutiemodel wel steeds leidend. De tabel met de afgeleide leeftijdsverdelingen wordt besproken in paragraaf 3.2.

2.4 Reconstructie en prognose van het verloop van de nitraat-, sulfaat- en chlorideconcentraties in de bronnen

2.4.1 Uitspoeling van nitraat, sulfaat en chloride uit de bodem

Als de reistijdverdeling van een bron is geschat, dan kan het verloop van de concentraties van nitraat, chloride en sulfaat in de bronnen worden

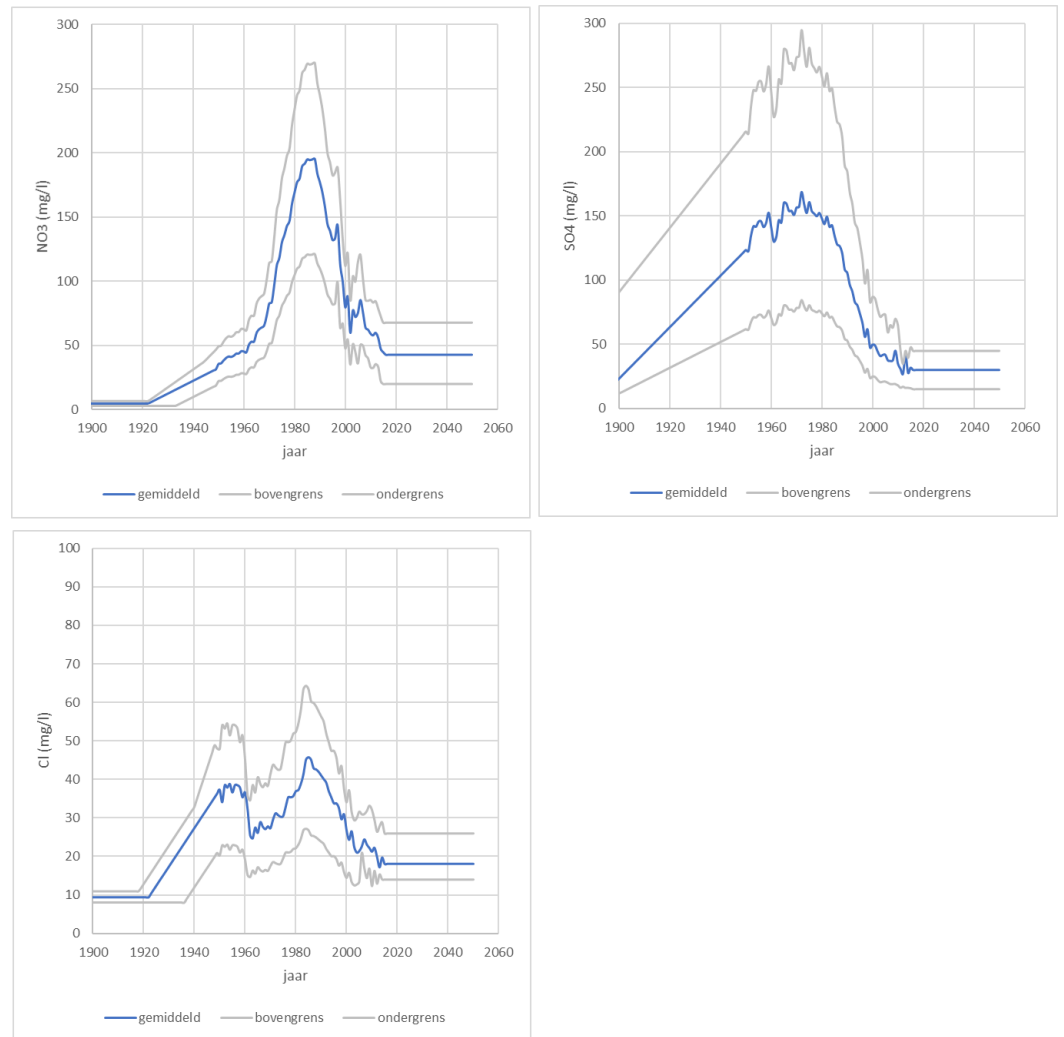
gereconstrueerd, mits de concentraties van het uit de bodem uitspoelende nitraat, sulfaat en chloride in de grondwateraanvulling bekend zijn. Om daarvan een zo goed mogelijke inschatting te maken hebben we gegevens gebruikt uit de bodemvochtmetingen uit het provinciale bodemvochtmeetnet (BVM) en uit het Landelijk Meetnet Effecten Mestbeleid (LMM). Voor de periode voor 1990 zijn die schattingen aangevuld met gegevens uit een boekhouding van stoffen die via mest en kunstmest zijn ingebracht, met een correctie voor gewasopname (Broers & Van der Grift 2004, Visser et al. 2009). Het bij elkaar brengen van die gegevens is beschreven in Bijlage B van Broers en Van Vliet (2018). Voor nitraat zijn de gegevens veel eenduidiger dan voor chloride en sulfaat doordat de gegevens uit LMM en BVM duidelijk beter overeenstemmen. De uiteindelijk gebruikte input van nitraat, chloride en sulfaat is weergegeven in Figuur 2.5 voor de noordelijke plateaus en Figuur 2.6 voor de zuidelijke plateaus.

Voor nitraat is er een duidelijke piek in 1985 en een relatief snelle afname nadien, die samenhangt met het gevoerde mestbeleid, de Mestwet van 1985 en de Nitraatrichtlijn in 1991. Voor sulfaat zijn de Limburgse data niet consistent tussen BVM en LMM en is er een ruime betrouwbaarheidsband genomen om de meest waarschijnlijke gemiddelde waarden. De onderste betrouwbaarheidsband van sulfaat is daarbij gelijk aan de sulfaatbelasting zoals die in Visser et al. (2009) voor Brabant is beschreven; uit het LMM en het bodemvochtmeetnet bleek echter dat in Limburg duidelijk hogere sulfaatconcentraties voorkomen in het bodemvocht. De gemiddelde curve geeft daarbij de meest waarschijnlijke waarden weer, de bovengrens is vooral gebaseerd op de BVM-metingen, maar de stellige indruk bestaat dat die een overschatting van de sulfaatconcentraties geven door de gebruikte schudmethode. Dit is in overeenstemming met onderzoek waarin de verschillende meetmethoden zijn vergeleken (mond. med. Fraters, 2018). De bovengrens uit Figuur 2.5 en Figuur 2.6 is daarmee waarschijnlijk onrealistisch, maar ook beide andere curves zijn relatief onzeker voor sulfaat, niet zozeer qua vorm, maar wel qua hoogte van concentraties. De sulfaatpiek ligt iets eerder dan de nitraatpiek, wat samenhangt met de afname in atmosferische depositie uit luchtverontreiniging sinds ca. 1975. Omdat mest ook een aandeel heeft in de sulfaatbelasting blijven de concentraties hoog tot 1985 en nemen ze daarna samen met nitraat af, ook ten gevolge van verdere afname van SO_x in de atmosferische depositie. Omdat de sulfaatinput zo onzeker is en de concentraties tussen bouwland en gras/maisland nauwelijks verschillen zijn de curves voor de noordelijke en zuidelijke plateaus gelijk gehouden.

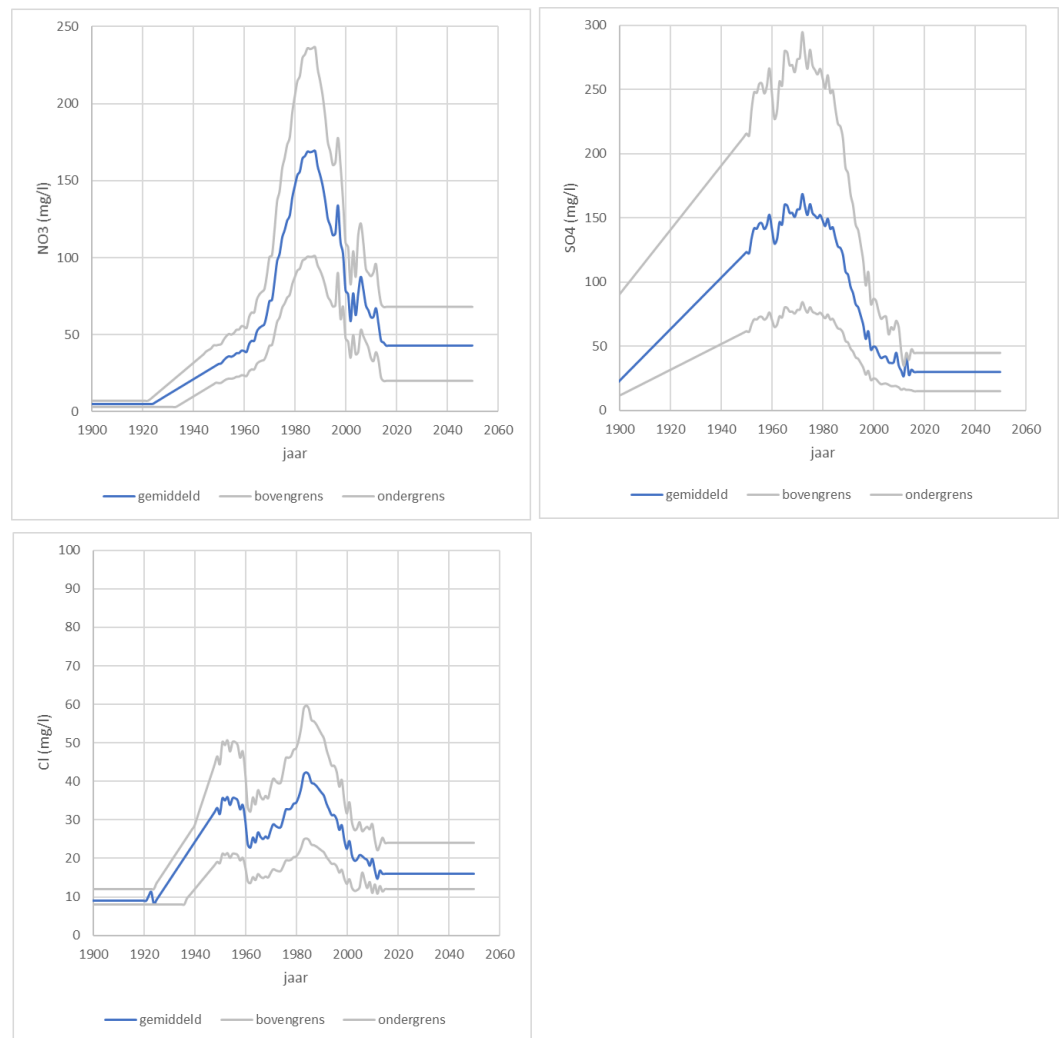
Chloride heeft een soort dubbele piek die waarschijnlijk samenhangt met het beëindigen van bemesting met Kalizout als kunstmest (KCl) rond 1960. Omdat ook dierlijke mest chloride bevat, neemt chloride daarna toe tot 1985 en sindsdien af. Voor sulfaat en chloride zijn deze patronen echter minder eenduidig dan voor nitraat, maar ze geven wel een indruk van de hoogte van de concentraties die recent water aan de bronnen kan leveren. Lage chlorideconcentraties in de orde van grootte van 10 mg/l zijn daarbij een indicatie voor water dat duidelijk ouder is dan de mestpiek van 1940-2000 of van water dat niet onder landbouwpercelen is geïnfilteerd, maar in bijvoorbeeld bosgebieden.

Voor de periode na 2015 zijn de concentraties van nitraat, sulfaat en chloride gelijkgesteld aan die uit 2015. Dat geeft mogelijk een overschatting in de concentraties in de bronnen nadien, omdat de belasting in het zeer recente

verleden en in toekomst mogelijk verder is afgenomen of afneemt. Daarmee hebben we dus een vrij conservatieve schatting gemaakt, maar zijn we tegelijkertijd ook niet overdreven optimistisch. Het stemt in grote lijnen overeen met de waarneming dat de concentraties nitraat niet significant meer afnemen onder droge landbouwgronden in het Zand-Maas grondwaterlichaam (Kivits et al. 2019).



Figuur 2.5 Inschatting van de uitspoeling van nitraat, sulfaat en chloride uit de bodemzone voor de noordelijke plateaus in Zuid-Limburg, zoals gebaseerd op metingen uit het BVM, het LMM en uit historische gegevens over mestgebruik. Voor de periode na 2015 is verondersteld dat de concentraties gelijk blijven. De betrouwbaarheidsbanden zijn afgeleid uit een regressie tussen de inputreeks van Brabant (Visser et al. 2009) en de onder- en bovengrens van de BVM/LMM-data (zie bijlage B van Broers en Van Vliet, 2018).



Figuur 2.6 Inschatting van de uitspoeling van nitraat, sulfaat en chloride uit de bodemzone voor de zuidelijke plateaus in Zuid-Limburg, zoals gebaseerd op metingen uit het BVM, het LMM en uit historische gegevens over mestgebruik. Voor de periode na heden is verondersteld dat de concentraties gelijk blijven. De betrouwbaarheidsbanden zijn afgeleid uit een regressie tussen de inputreeks van Brabant (Visser et al. 2009) en de onder- en bovengrens van de BVM/LMM-data (zie bijlage B van Broers en Van Vliet 2018).

2.4.2

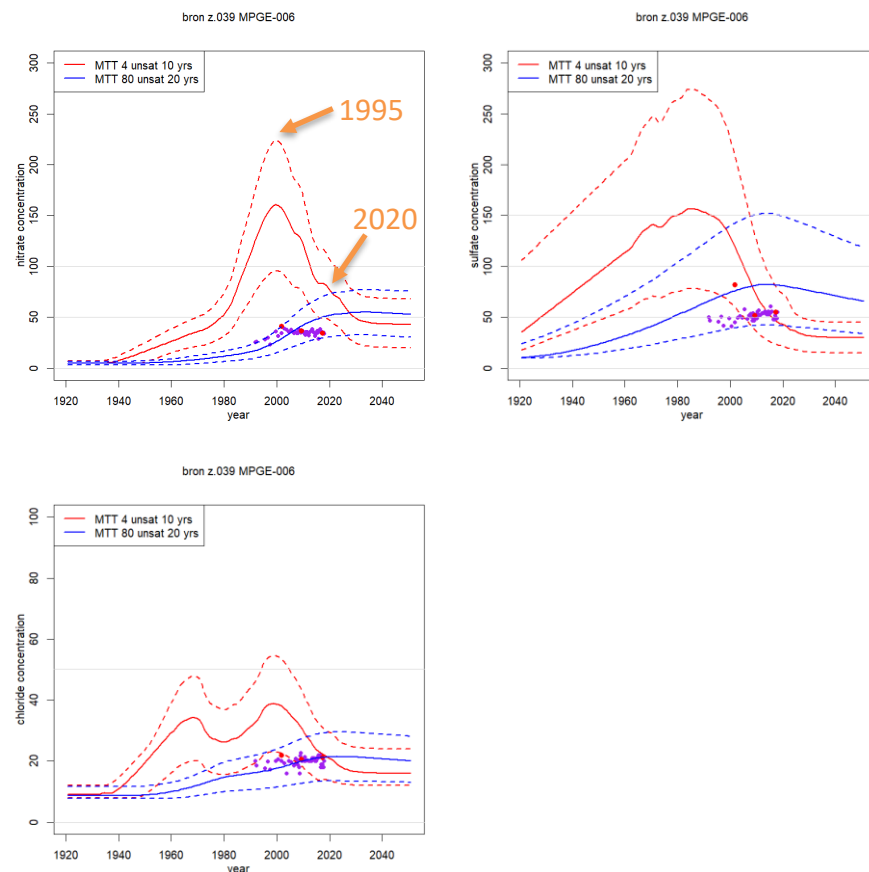
Reconstructie van het verloop van nitraat, sulfaat en chloride in de bronnen

Door de uitspoelingsconcentraties uit paragraaf 2.4.1 te convolueren met de afgeleide reistijdverdelingen per bron (meestal één in het jonge, en één in het oudere bereik) kunnen we een reconstructie maken van de concentraties nitraat, sulfaat en chloride die in de bronnen kunnen zijn opgetreden, en voor het eerst een verantwoorde prognose van het mogelijk verdere verloop. Deze reconstructies hebben we vergeleken met de werkelijk gemeten concentraties nitraat, chloride en sulfaat in de bronnen (zie Figuur 2.7).

Alle bronnen maken deel uit van het KRW-meetnet Krijt-Maas (Broers et al. 2005), waardoor een lange tijdreeks beschikbaar is. Deze data beslaan meestal de periode 1990 tot 2018. Voor een aantal bronnen zijn ook gegevens aanwezig van

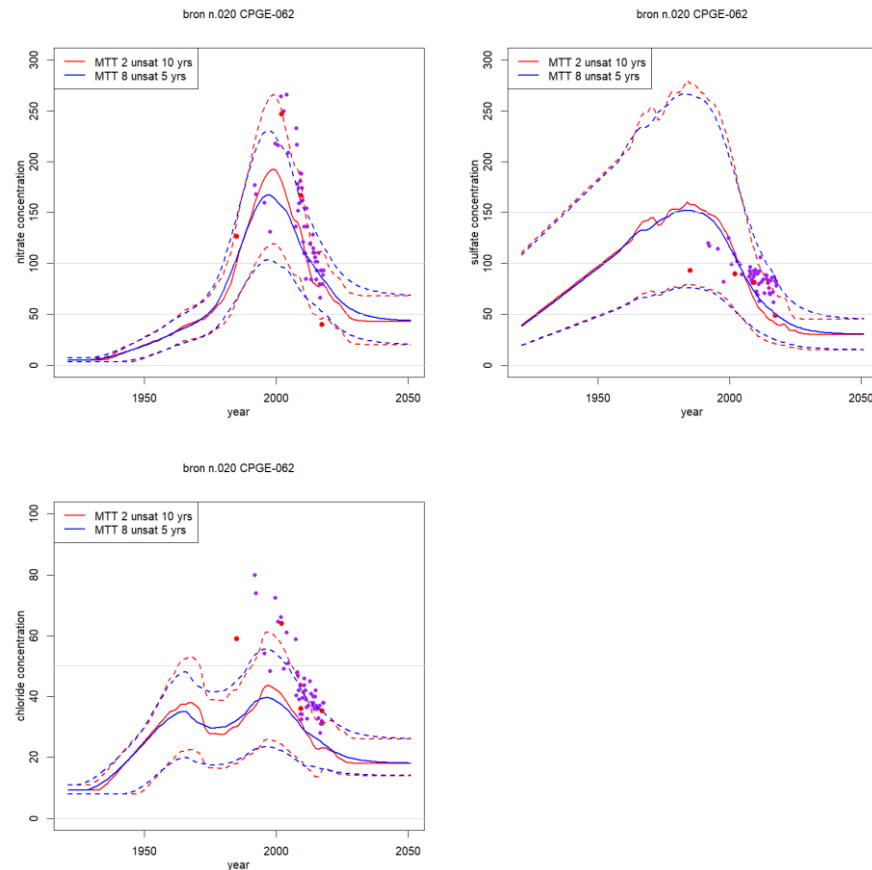
RIVM-onderzoeken uit 1984 (Hendrix, 1985), 2001 (Hendrix en Meinardi, 2004), 2009 (RIVM in voorbereiding) en 2017 (RIVM in voorbereiding).

Figuur 2.7 toont als voorbeeld het resultaat van de reconstructie en de gemeten concentraties voor nitraat, sulfaat en chloride van bron MPGE-006 (z.039). Het beste tritiummodel uit Figuur 2.4 was het oude model en de blauwe lijn in Figuur 2.7 representeert de reconstructie die daarmee is gemaakt. De reconstructie met dit model geeft een langzame stijging van concentraties te zien waarbij de piekconcentratie pas in 2020 wordt bereikt. De reconstructie op basis van het minder goede jonge model uit Figuur 2.4 is weergegeven in rood en geeft een hoge nitraatconcentratiepiek rond 1995. Dit model wordt duidelijk niet ondersteund door de gemeten nitraatconcentraties. In deze bron worden zeer gematigde nitraatconcentraties gemeten, die meer in overeenstemming zijn met de reconstructie op basis van het oude model. Ook de sulfaat- en chlorideconcentraties zijn nog licht aan het stijgen, wat redelijk wordt beschreven door de reconstructie met het oude model.



Figuur 2.7 Vergelijking van de gemodelleerde nitraat-, chloride- en sulfaatconcentraties met de meetdata van het RIVM (rood) en het KRW-bronnenmeetnet (paars) voor bron MPGE-006 (z.039). De stippellijnen geven de betrouwbaarheidsbanden van de modellen gebaseerd op de onzekerheid over de uitspoeling van nitraat, sulfaat en chloride in het Limburgse bodemvochtmeetnet en het LMM (Broers en Van Vliet, 2018). Best ^3H fit is het oude model (blauw).

Figuur 2.8 geeft de reconstructie en gemeten resultaten voor bron CPGE-062 (n.020) weer. Bij deze bron is alleen een goede fit mogelijk voor een jong model. Daarom geeft in dit geval zowel de rode als de blauwe lijn de fit van een passend jong model weer met net iets afwijkende MTT en PF-waarden. De nitraatconcentraties in deze bron zijn hoog en laten een duidelijk dalende trend zien. Ook de sulfaat- en chlorideconcentraties in deze bron zijn aan het dalen. Het verloop van de gemeten concentraties wordt door de reconstructie van beide jonge modellen ondersteund, waardoor de modelreconstructie kan worden gebruikt voor een prognose van de concentraties in 2017 en 2035.



Figuur 2.8 Vergelijking van de gemodelleerde nitraat-, chloride- en sulfaatconcentraties met de meetdata van het RIVM (rood) en het KRW-bronnenmeetnet (paars) voor bron CPGE-062 (n.020). De stippellijnen geven de betrouwbaarheidsbanden van de modellen gebaseerd op de onzekerheid over de uitspoeling van nitraat, sulfaat en chloride in het Limburgse bodemvochtmeetnet en het LMM (Broers en Van Vliet, 2018). Beste 3H fit is het rode jonge model.

3 Resultaten van de datering van de bronnen

3.1 Resultaten tritiumanalyses van de bronnen

In Bijlage C zijn alle resultaten van tritiumanalyses van de bronnen opgenomen. Bij de analyse is tevens de 'error' gegeven. Deze geeft een indruk van de precisie van de meting.

3.2 Leeftijdsverdeling in de bronnen

Voor elk van de bronnen is het gemeten verloop van de tritiumconcentraties vergeleken met alle mogelijke reistijdmodellen volgens de methodiek die is beschreven in paragraaf 2.3. In Bijlage D zijn per bron de modellen die de data het best benaderen weergegeven. Voor 11 van de onderzochte bronnen zijn er twee mogelijke reistijdverdelingen: een 'jong' model in rood en een 'oud' model in blauw (zie bijlage D voor alle fits). Voor de bronnen CPGE-062 en CPGB-022 voldoet alleen een jong model, wat voor bron CPGB-022 ook wordt ondersteund door een oude meting uit het jaar 1984. De resultaten zijn samengevat in Tabel 3.1, waarbij het voorkeursmodel cursief vet is weergegeven. Het voorkeursmodel is zowel bepaald door de goodness-of-fit van het tritiummodel als door de mate waarin het model de nitraat-, sulfaat en chlorideconcentraties representeert (zie paragraaf 3.4).

Bron CRGE-033 is bijzonder, omdat er een extra meting beschikbaar is uit 1984 die niet op de 2 best-fit modellen past die in Tabel 3.1 zijn samengevat (zie alternatieve modellen in bijlage D). Omdat niet helemaal zeker is dat deze meting echt bij de huidige bron hoort, en op deze plaats ook de winplaats Landeus was gelegen, laten we dit alternatieve model voorlopig buiten beschouwing.

Voor de bronnen UBEY-002 en VYSI-002 kan geen leeftijdsverdeling worden gemodelleerd, omdat we bij deze bronnen niet beschikken over een oudere tritiummeting. In paragraaf 3.5 doen we voor deze bronnen wel een inschatting van de leeftijdsverdeling.

Tabel 3.1 Overzichtstabel van de beste leeftijdsmodellen per bron. In de kolommen MTT en PF zijn de mean travel time (MTT) en de piston flow vertraging (PF) gegeven voor het best fit jonge model en het best-fit oude model. Waarden in cursief, vet met grijs achtergrond kleur geven het model aan dat voor deze bron als beste schatting van de reistijdverdeling wordt gezien.

Bronnaam	RIVM naam	Best fit jong model		Best fit oud model	
		MTT (yrs)	PF (yrs)	MTT (yrs)	PF (yrs)
CPMA-002	n.002	8	5	60	20
CPMA-034	n.010	8	5	60	20
CPGE-062	n.020	2	10	-	-
UBGE-001	n.037s	4	10	80	10
CPGB-022	n.091	2	20	-	-
MPNO-001	z.001	8	10	60	20
CRGE-032	z.025	8	10	50	5
CRGE-031	z.027	6	10	60	20
CRGE-033	z.028	6	10	60	10
CRGU-005	z.035	4	10	80	20
MPGE-006	z.039	4	10	80	20
VYGE-019A		1	20	100	10
VYGE-058		6	10	80	20

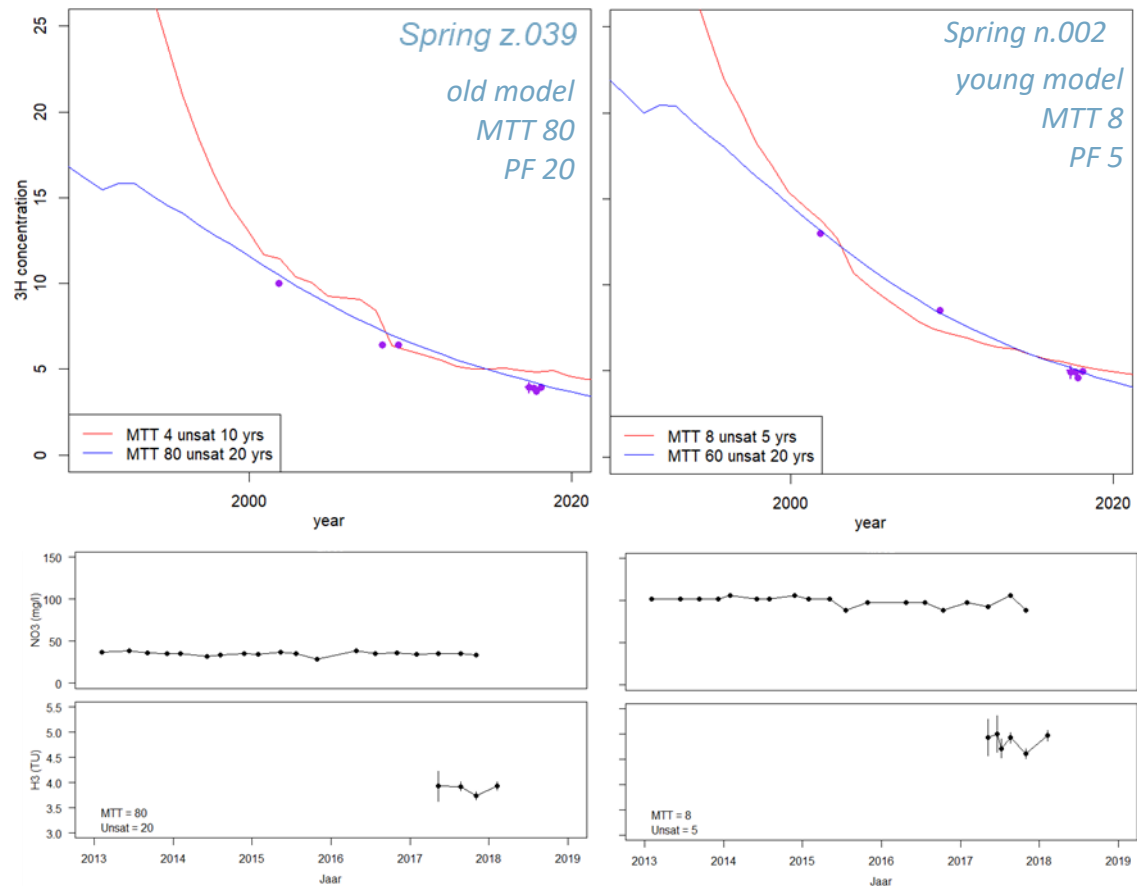
3.3 Meerwaarde van de nieuwe 2017 metingen

Met het beschikbaar komen van de tritiumconcentraties uit 2017 kan de leeftijdsverdeling voor de in tabel 3.1 opgenomen bronnen beter worden geschat dan in de eerdere studie die TNO heeft uitgevoerd in opdracht van RIVM (Broers en Van Vliet, 2018). Bij 10 bronnen wordt het in Broers & Van Vliet (2018) afgeleide leeftijdsmodel min of meer bevestigd in deze studie; de extra meting in 2017 bevestigt daar het gekozen leeftijdsmodel. Voor drie bronnen hebben de nieuwe tritiummetingen uit 2017 echter geleid tot een keuze van een ander model. Voor bron UBGE-001 (n.037s) werd in Broers en Van Vliet (2018) een jong model gekozen en nu juist een oud model. Met het beschikbaar komen van de metingen uit 2017, geeft het oude model nu de beste fit van de tritiumconcentraties. Voor de bronnen MPNO-001 (z.001) en CRGE-032 (z.025) leek eerst een oud, maar is nu juist een jong model het meest geschikt. Voor CRGE-032 (z.025) wordt de keuze voor een jong model mede onderbouwd door de fluctuatie in de driemaandelijks gemeten tritiumconcentraties (paragraaf 3.4). Voor bron MPNO-001 is de keuze voor het jonge model in overeenstemming met het gemeten verloop van nitraat (zie paragrafen 3.5 en 3.6).

3.4 Fluctuatie van de leeftijdsverdeling (seizoensvariatie) en samenhang met gemeten concentraties

Eén van de vragen uit dit onderzoek was of we opeenvolgende tritiummetingen met een grote tussenpoos van 6 tot 10 jaar wel kunnen gebruiken voor dit type onderzoek naar leeftijdsverdelingen. Daarom hebben we bronnen in dit onderzoek

vier keer in een jaar bemonsterd en de variatie van de tritiumconcentraties in de tijd bestudeerd. Uit de evaluatie blijkt dat in vrijwel alle bronnen de lange termijn trend in tritiumconcentraties dominant is over de seizoensvariaties, zodat we kunnen concluderen dat de werkwijze zoals in dit rapport gebruikt, verantwoord is. Dit wordt geïllustreerd in Figuur 3.1. Bron z.039 is daarbij een voorbeeld van een bron met weinig seizoensvariatie, zowel wat betreft nitraatverloop als qua verloop van tritium. Uit de figuur linksboven blijkt dat de seizoensvariatie van tritium over 2017 veel kleiner is dan de lange termijn trend over 2001 tot 2017. De nitraat- en tritiummetingen van bron n.002 (rechter figuren van Figuur 3.1) laten een ander beeld zien; typisch hogere tritium en grotere variatie van tritium en nitraat in deze bron met jong water. Maar ook bij deze bron is de trend in tritium tussen 2001 en 2017 veel groter dan de seizoensvariatie, zodat hetzelfde tritiummodel ook was gekozen als er slechts één van deze 6 metingen over de periode 2017-2018 beschikbaar was geweest. Dat de variaties in nitraat- en tritiumconcentraties in de bron met jong water (n.002) minder zijn gedempt in vergelijking met de bron met oud water (z.039) is logisch. Bij een bron met oud water wordt water over een groter bereik gemengd, dat automatisch ook tot een grotere demping leidt. De meetgegevens suggereren daarmee dat de korte termijn variatie (seizoensvariatie) is gesuperponeerd op de langjarige trend maar die trend niet zodanig verstoren dat het de keuze voor het leeftijdsmodel zou beïnvloeden. Op basis hiervan concluderen we dat het voldoende is om de bronnen één keer in ca 6 tot 8 jaar te analyseren op tritium. Daarmee wordt een goed inzicht verkregen in de lange termijn trend van het verval van tritium en kunnen de leeftijdsverdelingen goed worden geschat.



Figuur 3.1 Het beste oude en jonge tritiummodel voor bron z.039 (linksboven) en n.002 (rechtsboven) en de gemeten nitraat- en tritiumconcentraties in deze bronnen (resp. linksonder en rechtsonder).

3.5 Reconstructie en prognose van de ontwikkeling van nitraat en andere stoffen

Volgens de methodiek die is beschreven in paragraaf 2.4.2 hebben we de best-fit tritiummodellen gebruikt om een reconstructie te maken van de nitraat-, sulfaat- en chlorideconcentraties van de bronnen. De resultaten daarvan zijn weergegeven in bijlage E. Hierin zijn figuren opgenomen met de vergelijking van de gemodelleerde nitraat-, chloride- en sulfaatconcentraties met de meetdata van het RIVM- en het KRW-bronnenmeetnet.

Op basis van het meest waarschijnlijke leeftijdsverdelingsmodel per bron geven we in Tabel 3.2 ook een prognose van de nitraatconcentratie in 2027 (de toetsingsdatum voor de KRW). In bijlage F wordt de prognose ook voor het jaar 2035 gegeven. In Tabel 3.2 wordt zowel de prognose op basis van het midden van het model (doorgetrokken lijn van figuren bijlage E), en de bijbehorende range (stippellijn van figuren bijlage E), als de prognose op basis van 'expert judgment' gegeven. De prognose op basis van 'expert judgment' komt niet altijd overeen met de prognose volgens het beste model. Bij de bronnen waar hiervan sprake is, liggen de nitraatconcentraties vaak in een lager bereik dan het midden van de

beste modelfit. In de kolom 'oordeel nitraat fit' wordt toegelicht hoe de nitraatconcentraties op het beste model passen.

Zoals uit Tabel 3.1 blijkt hebben de noordelijke bronnen rond het Centraal Plateau (CPMA-002, CPMA-034, CPGE-062 en CPGB-022) een kleinere gemiddelde reistijd. Volgens het midden van het model is in 3 van deze 4 bronnen de nitraatconcentratie in 2027 nog boven 50 mg/l. Op basis van 'expert judgment' hebben deze bronnen in 2027 ook concentraties boven 50 mg/l, maar dalen in 2035 deze naar concentraties onder 50 mg/l. Behalve bij bron CPMA-034, hier lijkt een minder sterke daling plaats te vinden dan het model voorspelt en is de nitraatconcentratie rond 70 mg/l in 2035.

Bij de tevens noordelijk gelegen bron UBGE-001 past het oude model beter; deze bron ligt ook veel dieper in het dal. In deze bron stijgen de concentraties nog licht en de prognose is dat de concentraties de komende jaren zullen stabiliseren.

Voor de bronnen in de middendelen van de droge dalen van de zuidelijke plateaus en aan de voet van de plateaus in de belangrijkste beekdalen van Zuid-Limburg voldoet vaak een oud model met een gemiddelde reistijd van 60 tot 100 jaar. Op basis van 'expert judgment' liggen de nitraatconcentraties in alle gevallen onder de 50 mg/l. De concentraties zullen volgens de modellen stabiliseren of licht dalen.

Voor de bronnen MPNO-001 en CRGE-032, die zijn gelegen in de hogere delen van de droge dalen van de zuidelijke plateaus, lijkt het 'jonge' model beter te voldoen. Dit wordt ondersteund door de hogere nitraatconcentraties rond het jaar 2000 (ca. 80 respectievelijk 70 mg/l), die inmiddels duidelijk aan het dalen zijn. Die daling loopt goed in lijn met de daling van de reconstructie met het "jonge" model. In beide gevallen volgen de gemeten nitraatconcentraties de reconstructie heel mooi, maar wel in het lage bereik van die reconstructie.

Tabel 3.2 Overzichtstabel van de gekozen voorkeursleeftijdsmoellen per bron en de prognose van nitraat. In de kolommen MTT en Unsat zijn de jonge en oude modellen resp. met rode en blauwe kleur weergegeven. In de drie (sub)kolommen onder 'Prognose nitraat 2027' is de prognose van de nitraatconcentratie gegeven van het midden van het model, de range van het model en de prognoses op basis van expert judgment. Concentraties in groen voldoen aan de nitraatnorm van 50 mg/l norm, die in rood blijven daarboven. Trend 2017-2027 geeft de richting (daling, stijging of stabilisatie) van de ontwikkeling tussen 2017 en 2027 weer.

Bronnaam	RIVM naam	MTT (yrs)	Unsat (yrs)	Prognose nitraat 2027			Oordeel nitraat fit	Trend 2017-2027
				Midden Model	Range model	Expert judgment		
CPMA-002	n.002	8	5	60	(20-85)	60		↘
CPMA-034	n.010	8	5	60	(30-85)	70	Minder sterke daling dan model voorspelt	→
CPGE-062	n.020	2	10	50	(25-75)	40		↘
UBGE-001	n.037s	80	10	65	(35-85)	45	Nitraat in lage bereik van het model	→
CPGB-022	n.091	2	20	80	(45-110)	65		↘
MPNO-001	z.001	8	10	70	(40-100)	40	Nitraat in lage bereik van het model, binair model mogelijk	↘
CRGE-032	z.025	8	10	70	(40-100)	30	Nitraat in lage bereik van het model, binair model mogelijk	↘
CRGE-031	z.027	60	20	65	(40-90)	35	Snellere afname nitraat dan model voorspelt	→
CRGE-033	z.028	60	10	65	(40-90)	35	Nitraat in lage bereik van het model, binair model mogelijk	↘
CRGU-005	z.035	80	20	55	(30-75)	25	Snellere afname nitraat dan model voorspelt	↘
MPGE-006	z.039	80	20	55	(35-75)	40	Eerder stabiel dan model voorspelt	→
UBEY-002						25	Laag 3H geeft indicatie voor oud water	↘
VYGE-019A		100	10	45	(30-65)	35		→
VYGE-058		80	20	55	(30-75)	45	Snellere afname nitraat dan model voorspelt	→
VYSI-002						10	Laag nitraat wijst op infiltratie in bosgebied	→

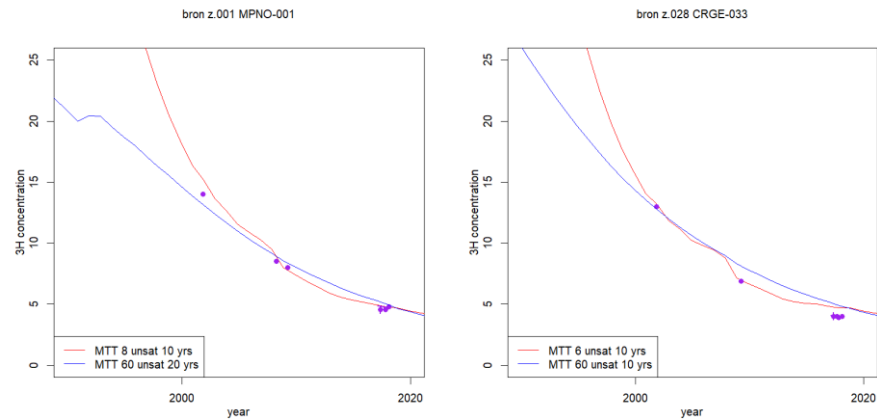
3.6 Ambigue bronnen

Voor sommige bronnen is het lastig om een keuze voor het jonge of oude model te maken. Dit komt omdat de bronnen een dubbel signaal geven.

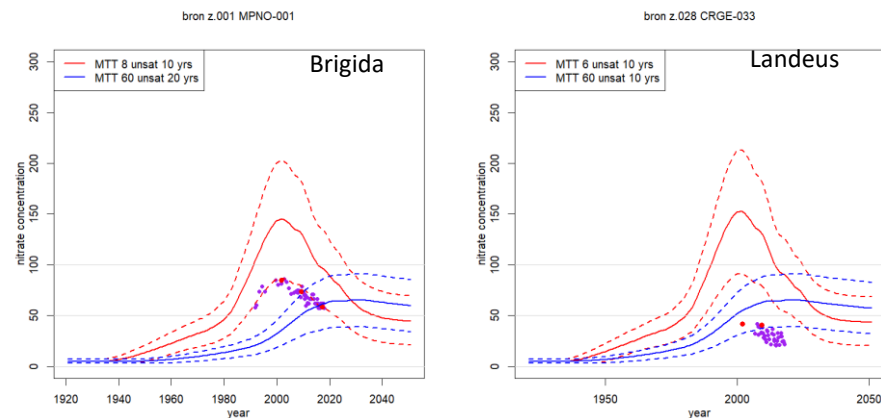
Twee voorbeelden van 'lastige' bronnen zijn MPNO-001 (z.001, Brigida) en CRGE-033 (z.028, Landeus). Voor beide geldt dat de tritiummodellen niet goed passen op de tritiummetingen (zie Figuur 3.2). Vervolgens zien we in de convolutie met de nitraatmeetgegevens dat de data ook niet heel goed fitten (zie Figuur 3.3). Voor de Brigidabron (MPNO-001/z.001) liggen de meetdata op de onderste betrouwbaarheidsband van het gekozen jonge model, maar volgen die trend wel heel precies. Op basis hiervan kiezen we toch voor het model met de lagere MTT en jonger water. Maar mogelijk wordt die jonge component bijgemengd met een oude nitraatloze component die niet uitwisselt met dit jongere water.

Bij de Landeus (CRGE-033/z.028) liggen de meetdata deels buiten de onderste betrouwbaarheidsband van het gekozen oude model, maar vertonen wel een duidelijk neergaande trend die niet in overeenstemming is met het oudere model.

Mogelijk speelt hier een rol dat bron z.038 op het terrein ligt van de oude waterwinning de Landeus die uit een gecapteerde bron tapte. Het zou de moeite waard zijn om na te gaan hoe de nitraatontwikkeling in het gecapteerde water zich verhoudt met de gegevens die bekend zijn uit het Limburgse bronnenmeetnet.

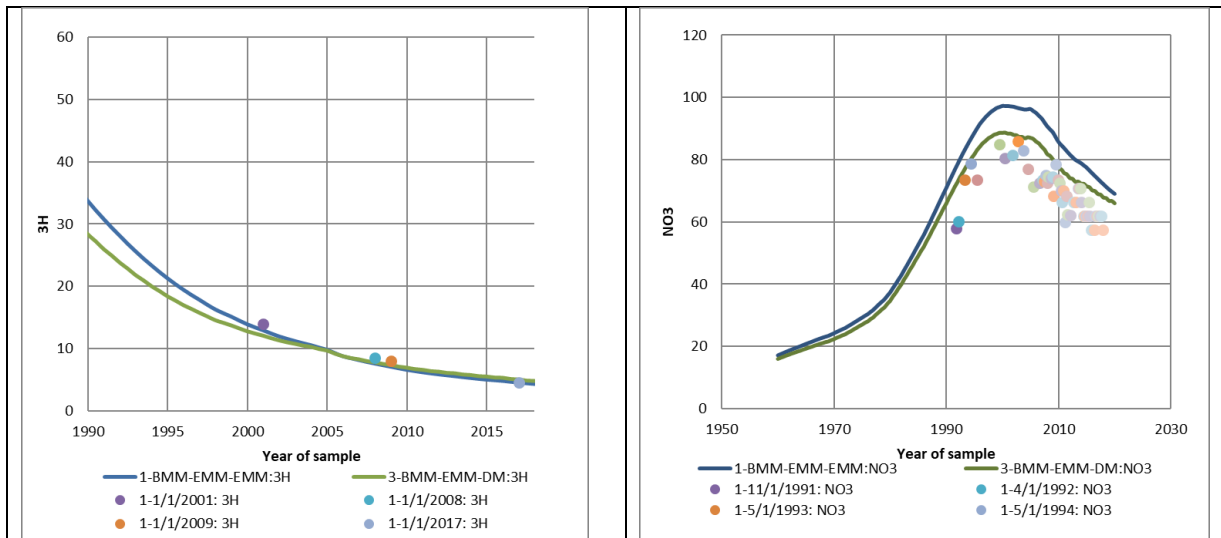


Figuur 3.2 Het beste oude en jonge tritiummodel voor bron MPNO-001 (z.001) en CRGE-033 (z.028).



Figuur 3.3 De beste oude (blauw) en jonge (rood) modellen die de ^3H concentraties in bron MPNO-001 (z.001) en CRGE-033 (z.028) het best voorspellen. De rode en paarse stippen geven de nitraatmetingen in de bron van resp. RIVM en Provincie Limburg.

Voor dit type bronnen zou in de toekomst een binair mixing model kunnen worden opgesteld, waarbij de bron gevoed wordt door twee grondwatersystemen die parallel aan elkaar de bron voeden (e.g. Jurgens et al. 2012). Extra tritiummetingen zullen op termijn helpen bij het beter begrijpen van deze systemen en helpen om de prognoses te verbeteren. Figuur 3.4 geeft een idee van de modellering van zo'n systeem met een binair mixing model. De hoeveelheid data, die we tot nu toe ter beschikking hebben, laten feitelijk nog te veel vrijheidsgraden om een dergelijk model geldigheid toe te kennen. Het geeft echter wel een indruk van de mogelijke toekomstige modellering indien we meer tritiummetingen ter beschikking hebben die het aantal vrijheidsgraden beperkt.



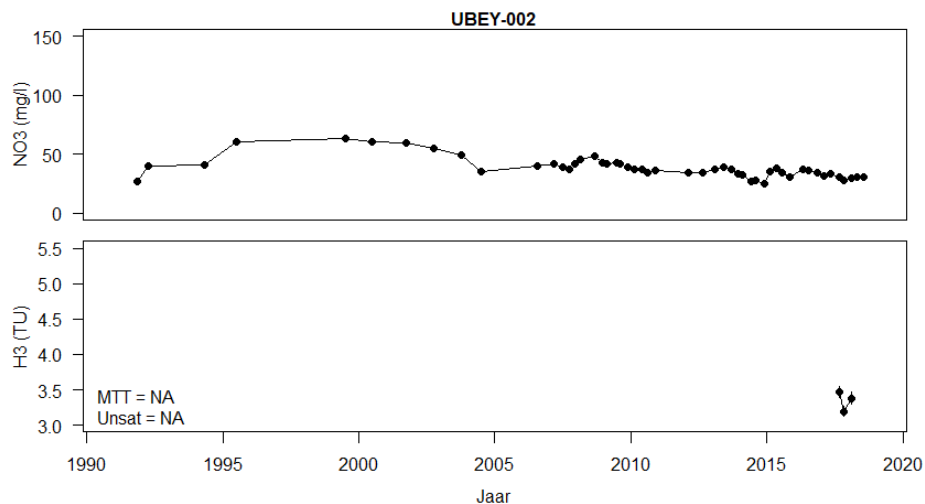
Figuur 3.4 Eerste opzetje van een modellering van de tritiumconcentraties (links) en nitraatconcentraties (rechts) in de Brigida-bron (MPNO-001) met een binair mixing model. In zo'n model zijn 2 stromingssystemen parallel aanwezig. Eén van die parallele systemen heeft relatief jong water en bepaalt in dit voorbeeld 50% van de flow (MTT=11, PF =7), het parallele systeem heeft relatief oud water en bepaalt de andere 50% van de flow (MTT = 120 (blauw), MTT=100 (groen), PF=0).

3.7 Leeftijdsbepaling en prognoses zonder oudere tritiummeting

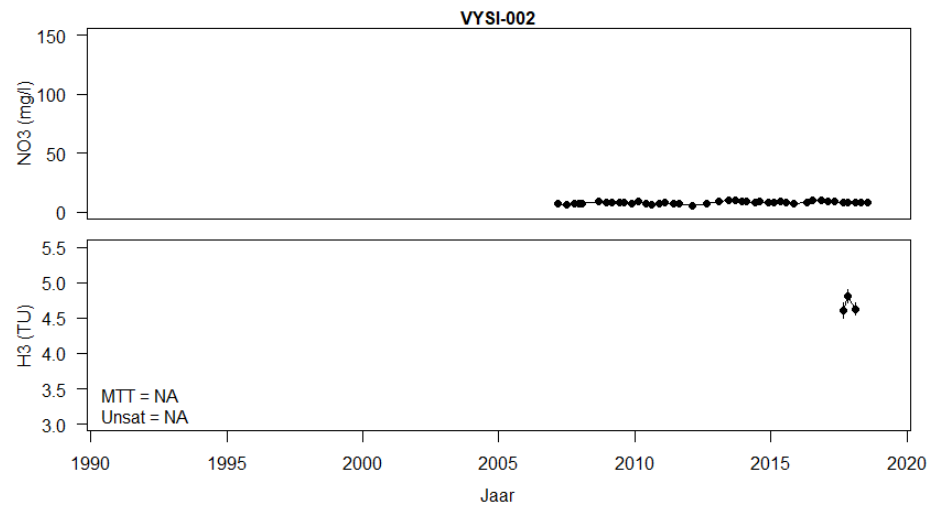
Figuur 3.5 en Figuur 3.6 geven de nitraat- en tritiumconcentraties vanaf 2013 van respectievelijk bron UBEY-002 en VYSI-002 weer. Zoals hierboven aangegeven, is het niet mogelijk om een nitraatprognose te modelleren, omdat het verloop van tritium in de tijd onbekend is. Echter, het is wel mogelijk een uitspraak te doen over de te verwachten nitraatconcentratie aan de hand van de gemeten nitraat- en tritiumconcentraties.

Bron UBEY-002 heeft hoogstwaarschijnlijk oud water waarvan de nitraatconcentraties sinds 2003 onder de norm van 50 mg/l liggen. De tritiumconcentraties die in 2017 zijn gemeten zijn zo laag, dat het water van deze bron een grote component oud water moet hebben. Tritiumconcentraties < 3.5 TU in een bron komen in alle andere onderzochte gevallen alleen voor in water met een gemiddelde reistijd (MTT) van 80 jaar en meer. De nitraatconcentraties in deze bron fluctueren, maar laten in grote lijn een voortgaande daling zien (zie Figuur 3.5).

Voor bron VYSI-002 (zie Figuur 3.6) blijkt dat de nitraatconcentratie al gedurende de hele meetperiode (2013-heden) ver onder de norm van 50 mg/l ligt. De hogere tritiumconcentratie in deze bron maakt een goede inschatting van de leeftijd onmogelijk, totdat over een periode weer nieuwe tritiumconcentraties worden bepaald. Waarschijnlijk zal de nitraatconcentratie ook in 2027 en 2035 niet boven de norm van 50 mg/l komen, omdat wij inschatten dat het water van deze bron grotendeels afkomstig is uit het bovenliggende bosgebied.



Figuur 3.5 Overzicht van de nitraatconcentratie (mg/l) en tritiumconcentratie (TU) van bron UBEY-002.



Figuur 3.6 Overzicht van de nitraatconcentratie (mg/l) en tritiumconcentratie (TU) van bron VYSI-002.

3.8 Synthese

Voor de bronnen die in onze studie zijn onderzocht zijn nu minimaal 3 tritiummetingen in de tijd beschikbaar, meestal in de jaren 2001, 2009 en 2017. Voor deze bronnen is uit het verloop van tritium een reistijdverdeling afgeleid voor het mengwater dat in de bronnen uittreedt. Het verloop van de gemeten tritiumconcentraties is daarvoor vergeleken met een set van theoretische reistijdverdelingen waarin zowel de verschillende gemiddelde reistijd (MTT) en onverzadigde zone vertraging (PF) zijn gevarieerd. De tritiummetingen leveren niet altijd een eenduidige reistijdverdeling; vaak zijn er 2 modellen die het verloop in de tijd kunnen verklaren: één met een relatief hoge gemiddelde leeftijd (50-100 jaar, oud model) en één met een gemiddeld jonge leeftijd (2-30 jaar, jong model). In veel gevallen is één van de 2 afgeleide verdelingen duidelijk beter dan de ander; maar soms is de keuze duidelijk moeilijker en zijn meerdere modellen mogelijk. De keuze voor het uiteindelijke model is gemaakt door een vergelijking met de in de bronnen gemeten nitraat-, chloride- en sulfaatmetingen waarbij de mate van fit op het tritiumverloop wel steeds leidend was.

In onderstaande Tabel 3.3 zijn de belangrijkste resultaten samengevat. Karakteristieke reistijd is hier gedefinieerd als de som van de gemiddelde reistijd (MTT) en de onverzadigde zone vertraging (PF). In Tabel 3.3 en Figuur 3.7 is onderscheid gemaakt tussen bronnen met een relatief jong water (karakteristieke reistijd < 25 jaar) en bronnen met relatief oud water (70-110 jaar). Het is toeval dat deze 13 bronnen een karakteristieke reistijd van < 25 jaar of > 70 jaar hebben. Voor een deel van de bronnen uit het RIVM-meetnet ligt de karakteristieke reistijd tussen ca 25-27 jaar hebben (Broers en Van Vliet, 2018).

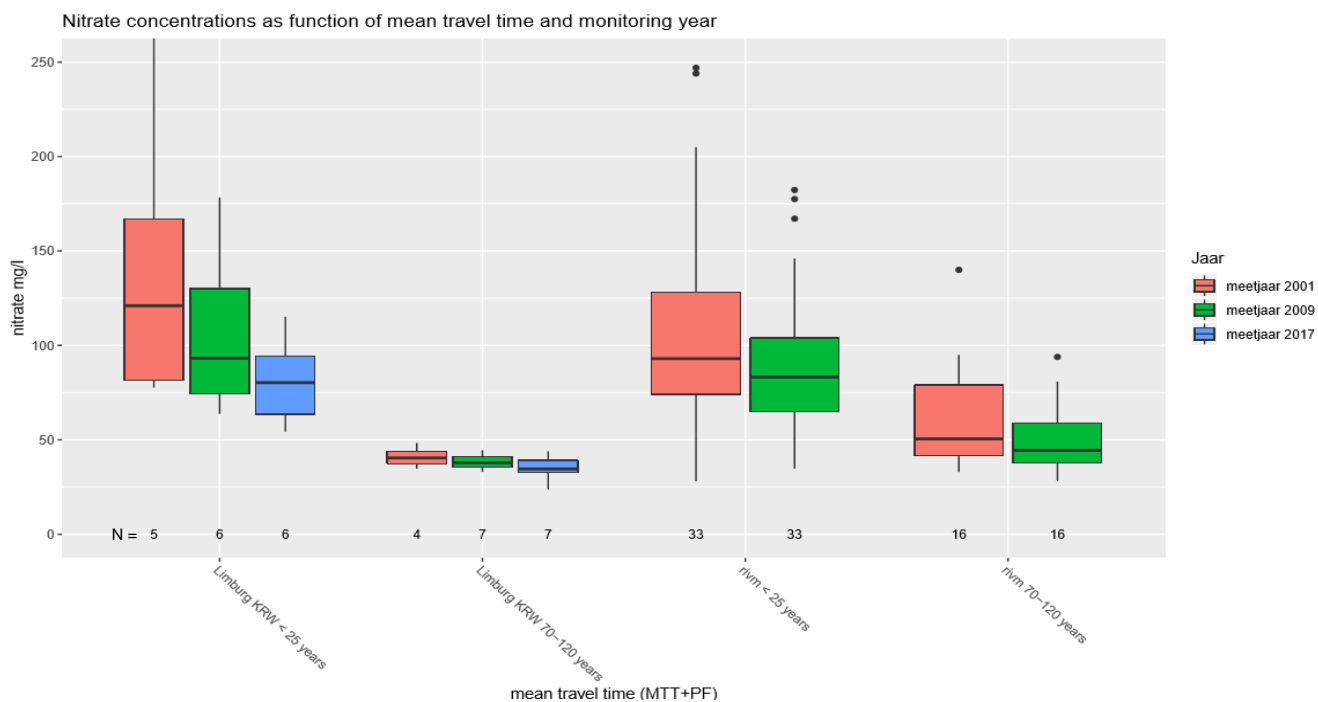
Tabel 3.3 Overzichtstabel van de reistijden in de onderzochte bronnen in relatie tot de hydrogeologische setting en het verloop van nitraat

Karakteristieke reistijd	Bronnen	Hydrogeologische setting	Verloop nitraat
12 tot 22 jaar	CPMA-002 CPMA-034 CPGE-062 CPGB-022 MPNO-001* CRGE-032*	Bronnenniveaus aan de randen van het Centraal Plateau of in de hogere delen van de droge dalen van de zuidelijke plateaus.	Hoge concentraties tussen 50 en 200 mg/l rond het jaar 2000, sindsdien dalend naar 50 tot 100 mg/l. Vaak duidelijke korte termijnvariaties in nitraatconcentraties ten gevolge van weersinvloeden.
70 tot 110 jaar	UBGE-001 CRGE-031 CRGE-033* CRGU-005 MPGE-006 VYGE-019A VYGE-058*	Bronnen in de middendelen van de droge dalen van de zuidelijke plateaus en aan de voet van de plateaus in de belangrijkste beekdalen van Zuid-Limburg.	Concentraties tussen 30 en 50 mg/l rond het jaar 2000 en sindsdien licht dalend, stabiel of licht stijgend. Korte termijnvariaties in nitraat zijn klein.

**) Bronnen die mogelijk beter met een bimodaal model te verklaren zijn met een parallel snel en langzaam deel van het stromingssysteem*

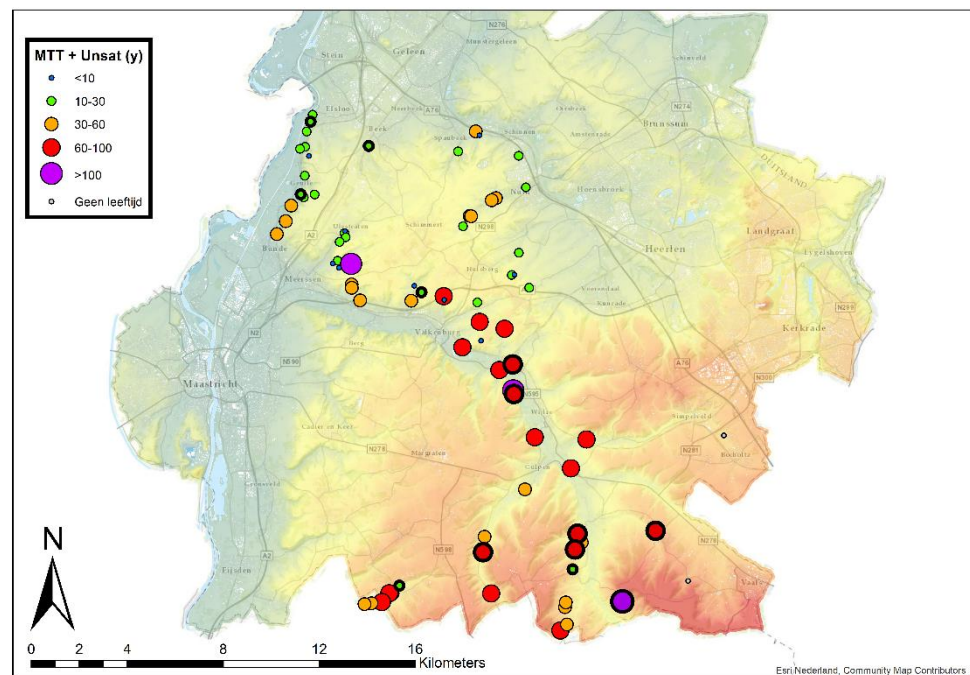
In Figuur 3.7 is de ontwikkeling van de nitraatconcentraties gevisualiseerd die in Tabel 3.3 beknopt wordt beschreven. In die bronnen met een karakteristieke reistijd < 25 jaar dalen de concentraties duidelijk tussen de meetjaren 2001 en 2017, maar blijven de concentraties gemiddeld nog wel duidelijk boven de 50 mg/l. De tweede set boxen laat de concentraties zien die in bronnen met oude water worden gemeten (karakteristieke reistijd 70-110 jaar). In die bronnen liggen de concentraties duidelijk lager en de metingen laten zien dat de concentraties gemiddeld geleidelijk verder gedaald zijn tussen 2001 en 2017. De onderverdeling op basis van karakteristieke reistijd helpt dus nadrukkelijk om dit patroon zichtbaar te maken. Op basis van de prognoses met de reistijdverdelingen zouden we voor de bronnen met ouder water feitelijk nog een stabilisatie of iets verdere stijging verwachten; in de metingen wordt dat echter niet ondersteund. Dit bleek al eerder bij de bespreking van Tabel 3.2; de 'expert judgment' gaf daar lagere concentraties te zien dan het blind volgen van het beste reistijdmodel.

Ter referentie zijn ook de bronnen getoond uit de eerdere studie voor het RIVM (Broers en Van Vliet, 2018). Ook die bronnen zijn ingedeeld volgens de reistijdverdelingen en ook voor die set zijn de concentraties hoger in de bronnen met jonger water en dalen ze tussen 2001 en 2019. Voor 2017 hebben we de data nog niet beschikbaar. Grosso modo bevestigen die gegevens de conclusies uit de huidige studie. Dat er een grotere spreiding in nitraatconcentraties te zien is, is mogelijk het gevolg van een minder goede afbakening van de reistijdenverdelingen. Immers, die dataset is gebaseerd op slechts 2 rondes met tritiummetingen (2001 en 2009). Inmiddels zijn deze bronnen opnieuw gedateerd, maar de interpretatie van die gegevens moet nog plaats vinden bij het schrijven van dit rapport. Op termijn kan deze figuur dus worden aangevuld met een scherpere leeftjidsverdeling en data uit 2017 voor alle bronnen uit de uitgebreidere RIVM-dataset.



Figuur 3.7 Overzicht van de nitraatconcentratie (mg/l) voor de onderzochte bronnen uit het KRW-meetnet (linker 2 sets) en de 80 bronnen uit de eerdere studie voor het RIVM (rechter 2 sets). In de Figuur is onderscheid gemaakt tussen de karakteristieke reistijd (MTT+PF): de eerste 3 boxplots tonen de concentraties in bronnen met een karakteristieke reistijd < 25 jaar, de 3 volgende boxplots de bronnen met een karakteristieke reistijd tussen 70 en 110 jaar. De kleuren geven de meetjaren 2001, 2009 en 2017 aan. De getallen onder boxplots geven het aantal metingen weer. Voor de RIVM bronnensets hebben we de nitraatdata uit 2017 op dit moment nog niet beschikbaar.

Figuur 3.8 toont de reistijdverdelingen van de bronnen op kaart, waarbij de resultaten van voorliggend onderzoek zijn aangevuld met de resultaten van het RIVM-onderzoek (Broers en Van Vliet, 2018). Ook in dit figuur is de gemiddelde reistijdverdeling (MTT) opgeteld bij de onverzadigde zone reistijd (PF). Het is goed zichtbaar dat, zoals eerder benoemd, de noordelijke bronnen rond het Centraal Plateau een kleinere gemiddelde reistijd hebben dan de bronnen op de zuidelijke plateau's en bronnen aan de voet van de grote beekdalen. Op deze zuidelijke plateaus is de gemiddelde reistijd 60-100 jaar. Opgemerkt moet worden dat de reistijdverdelingen uit de huidige studie duidelijk zijn aangescherpt (zwart omlijnd in Figuur 3.8) ten opzichte van de eerdere studie, en de verwachting is dat een aantal reistijdverdelingen uit de andere bronnen nog zal wijzigen na interpretatie van de tritiummetingen uit 2018 die nog beschikbaar gaan komen.



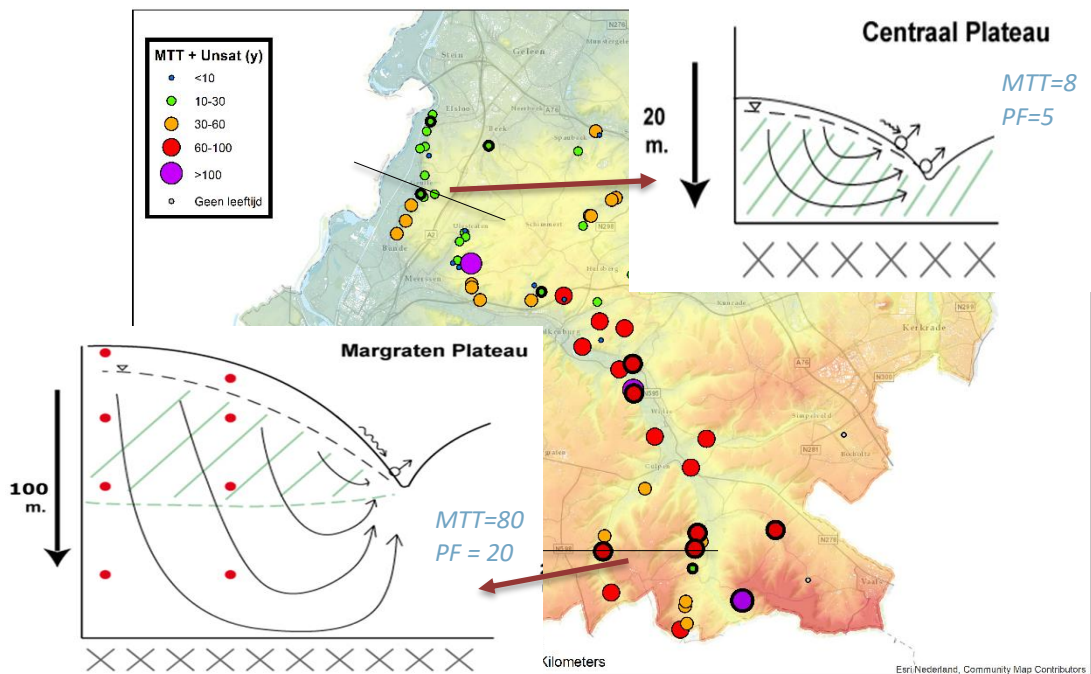
Figuur 3.8 Overzicht van alle gemodelleerde reistijdverdelingen (MTT + PF) voor de bronnen uit het RIVM-onderzoek (Broers en Van Vliet, 2018) en voorliggend onderzoek. De punten met een dikke zwarte rand zijn de bronnen die in het kader van het voorliggend onderzoek bemonsterd zijn en waarvan de reistijdverdelingen zijn aangescherpt.

Met behulp van de doorsnedes van Centraal Plateau en Margraten Plateau, die in Figuur 3.9 op de kaart met reistijdverdelingen zijn geprojecteerd, is de lagere gemiddelde reistijd van de noordelijke bronnen en de hogere reistijd op zuidelijke plateau's te begrijpen en daarmee ook de verschillen in nitraatconcentraties die in deze bronnen worden aangetroffen.

Het Margraten Plateau is een aanzienlijk dikker systeem dan het Centraal Plateau. De kalksteenpakketten zijn plaatselijk meer dan 100 m dik en mogelijk worden ook de onderliggende diepere zanden van de Formatie van Vaals nog doorstroomd. De gemiddelde reistijd in die systemen is vaak in de orde van grootte van 80 jaar of meer. Dat betekent, bij een exponentiele leeftijdsverdeling, dat het systeem voor een groot deel ook water bevat dat ouder is dan die 80 jaar. Dat water is nog

onbeïnvloed door de landbouwontwikkeling van de laatste 60 jaar en bevat om die reden nauwelijks nitraat. Het gevolg is dus dat dit systeem niet “vol” zit met nitraat en dat het bronwater een mengvorm is tussen oud, onbeïnvloed water en nitraatrijk water uit het ondiepere deel van het pakket. Deze verdunning leidt enerzijds tot lagere nitraatconcentraties en anderzijds tot het langzaam oplopen van de nitraatconcentraties.

Op het Centraal Plateau zijn de doorstroomde aquifers dunner (< 30 m) en bestaan ze uit zand en grind van de Formatie van Beegden en eventueel uit zandige delen van de Formaties van Breda en Rupel. In die systemen is de gemiddelde reistijd vaak kleiner dan 20 tot 30 jaar, waardoor die grondwatersystemen in de loop van de afgelopen 60 jaar “vol” zijn geraakt met nitraat. Het gevolg daarvan is dat er geen verdunning is van het nitraatrijke water, maar ook dat de inmiddels ingetreden reductie van stikstofgiften nu al leidt tot een daling van nitraatconcentraties.



Figuur 3.9 Dwarsdoorsnede door Margraten plateau en Centraal plateau met op de achtergrond alle gemodelleerde reistijdverdelingen (MTT + Unsat).

Uit Tabel 3.3 bleek al dat de meeste onderzochte bronnen op de Noordelijke plateaus (CPMA-002, CPMA-034, CPGE-062, CPGB-022) worden gekenmerkt door een relatief korte reistijd, en de hoge nitraatconcentraties die in deze bronnen zijn gemeten zijn inmiddels aan het dalen. Uit de prognoses die via convolutie zijn opgesteld op basis van de reistijdmodellen blijkt dat deze concentraties tot 2027 verder zullen dalen. De meeste bronnen op de zuidelijke plateaus (CRGE-031, CRGE-033, CRGU-005, MPGE-006, UBEY-002, en VYGE-019A, VYGE-058) worden gekenmerkt door lange gemiddelde reistijd en lagere nitraatconcentraties. Op basis van de reconstructies en prognoses van nitraat op basis van de afgeleide reistijdverdelingen wordt een stabilisatie of een zeer geleidelijke toename van nitraatconcentraties in die bronnen verwacht. Die stabilisatie blijkt ook uit de gemeten concentraties, waarbij de concentraties bij enkele bronnen al een daling

laten zien. Mogelijk is bij die bronnen (waaronder CRGE-033 en MPNO-001) sprake van een duaal stromingssysteem waarbij de concentraties nitraat in het jonge, snel toestromende water al dalen terwijl de onderstroom van uittredend water een dempend effect heeft op de snelheid van daling.

Samenvattend zijn de effecten van reductie van mestgiften op de noordelijke plateaus en in bronnen met relatief jong water dus al goed merkbaar aan de forse daling van concentraties, maar is in bronnen met een trager stromingssysteem nog minder goed merkbaar; in die systemen zijn de concentraties van nitraat echter al lager dan in de jonge systemen en bestaan indicaties voor een verdere geleidelijke daling.

4 Conclusies en aanbevelingen

4.1 Conclusies

Leeftijdsverdelingen

Met behulp van een serie van tritiummetingen in de tijd is de reistijdverdeling van een bron af te leiden. In 2017 zijn nieuwe tritiummetingen gedaan. De nieuwe tritiummetingen volgen de dalende trend in tritiumconcentraties voor elk van de onderzochte bronnen.

Voor 13 van de 15 bronnen kan het verloop van tritium tussen 2001 en 2018 worden gebruikt om een reistijdverdeling af te leiden voor het mengwater dat in de bronnen uittreedt. De reistijdverdeling bestaat uit een deel verticale reistijd door de onverzadigde zone en een deel gecombineerde verticale en horizontale reistijd door de verzadigde zone.

De tritiummetingen leveren niet altijd een eenduidige reistijdverdeling; vaak zijn er 2 modellen die het verloop in de tijd kunnen verklaren: één met een relatief hoge gemiddelde leeftijd (50-100 jaar, oud model) en één met een gemiddeld jonge leeftijd (2-30 jaar, jong model). In veel gevallen is één van de 2 afgeleide verdelingen duidelijk beter dan de ander; maar soms is de keuze duidelijk moeilijker en zijn meerdere modellen mogelijk. Voor sommige bronnen, bijvoorbeeld MPNO-001 (z.001, Brigida) en CRGE-033 (z.028, Landeus), wordt een dubbel signaal gevonden. Mogelijk is hier sprake van een 'binair mixing model'.

De keuze voor het uiteindelijke model is gemaakt door een vergelijking met de in de bronnen gemeten nitraat-, chloride- en sulfaatmetingen waarbij de mate van fit op het tritiumverloop wel steeds leidend was.

Fluctuatie van de leeftijdsverdeling (seizoensvariatie) en samenhang met gemeten concentraties

Voor het vast stellen of tritiummetingen met een grote tussenpoos van 6 tot 10 jaar bruikbaar zijn voor het verantwoord afleiden van een leeftijdsverdeling, zijn de bronnen vier keer in een jaar geanalyseerd op tritium. Hieruit blijkt dat in vrijwel alle bronnen de lange termijn trend in tritiumconcentraties dominant is over de seizoensvariatie. De seizoensvariatie is minder belangrijk. Indien slechts één in plaats van meerdere tritiummetingen over het jaar beschikbaar waren geweest, dan hadden we uiteindelijk toch hetzelfde tritiummodel gekozen. Eén keer per 6 tot 8 jaar tritium analyseren in de bronnen is daarom voldoende om op een verantwoorde wijze de leeftijdsverdeling af te leiden.

Reconstructie en prognoses concentraties

Op basis van de afgeleide reistijdverdelingen is een reconstructie gemaakt van de nitraat-, chloride en sulfaatconcentraties, die vervolgens is vergeleken met de gemeten concentraties van de 3 stoffen. De patronen van nitraat en chloride komen voor veel van de onderzochte bronnen goed overeen met het voorkeursreistijdenmodel.

De meeste onderzochte bronnen op de noordelijke plateaus worden gekenmerkt door een relatief korte reistijd, en de hoge nitraatconcentraties die in deze bronnen

zijn gemeten zijn inmiddels aan het dalen. Uit de prognoses blijkt dat deze concentraties tot 2027 verder zullen dalen.

De meeste bronnen op de zuidelijke plateaus worden gekenmerkt door lange gemiddelde reistijd en lagere nitraatconcentraties. Op basis van de prognoses met de reistijdverdelingen zouden we voor de bronnen met ouder water feitelijk nog een stabilisatie of iets verdere stijging verwachten; in de metingen wordt dat echter niet altijd ondersteund en wordt soms ook een lichte daling gevonden. Mogelijk is bij die bronnen (waaronder CRGE-033 en MPNO-001) sprake van een duaal stromingssysteem waarbij de concentraties nitraat in het jonge, snel toestromende water al dalen terwijl de onderstroom van uittreidend water een dempend effect heeft op de snelheid van daling.

De effecten van de effecten van reductie van mestgiften is op de noordelijke plateaus en in bronnen met relatief jong water al goed merkbaar aan de forse daling van concentraties, maar de reductie is in bronnen met een trager stromingssysteem nog minder goed herkenbaar; in die systemen zijn de concentraties van nitraat echter al lager dan in de jonge systemen en bestaan indicaties voor een verdere geleidelijke daling.

Vergelijking met bronnenonderzoek in buitenland

Opvallend ten opzichte van bronnenonderzoek in het buitenland, zoals dat bijvoorbeeld wordt uitgevoerd door onze partners in het EU Horizon2020 project GeoERA-RESOURCE, is dat in Nederland niet structureel debietmetingen van de bronnen worden uitgevoerd. Hierdoor kunnen we de fluctuaties in tritium en nitraat niet relateren aan weers- en klimaatomstandigheden, waardoor effecten van opeenvolgende droge zomers nu niet goed in beeld worden gebracht. Weliswaar is uit ouder onderzoek van de WUR vaak wel enig inzicht in het hydrologisch regime van enkele bronnen beschikbaar, maar het verloop van brondebieten wordt niet systematisch bijgehouden.

4.2 Aanbevelingen

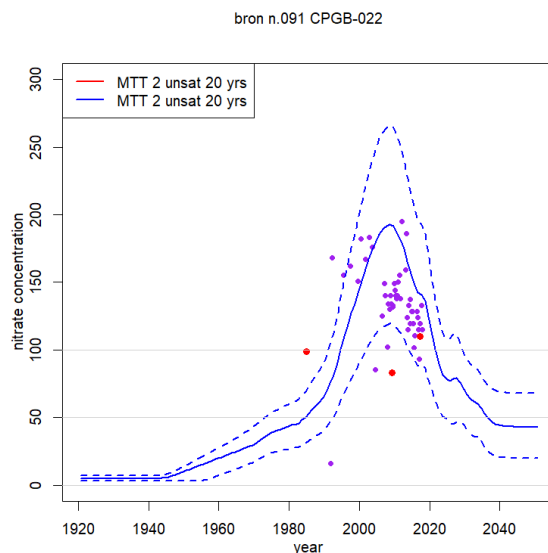
Voortzetten meetinspanning Krijt-Maas meetnet

Het voortzetten van de meetinspanning van het Krijt-Maas meetnet is de moeite waard en het is nuttig om de resultaten van de monitoring te verwerken in provinciale (water)plannen.

Door het blijven meten van de bronnen iedere 3 maanden ontstaat inzicht in de variatie van de nitraatconcentraties. Als de variatie groot is en er wordt slechts één keer in het jaar gemeten, dan is de kans groot dat de trend verkeerd wordt ingeschat. Figuur 4.1 toont de vergelijking van de gemodelleerde nitraat-, concentratie met de meetdata van het RIVM (rood) en het KRW-bronnenmeetnet (paars) voor bron CPGB-022. Bij deze bron is de variatie in de nitraatconcentratie groot. De RIVM-metingen liggen allemaal rond 100 mg/l, terwijl in de metingen van de Provincie zichtbaar is dat ook concentraties tot bijna 200 mg/l voorkomen. Indien alleen de RIVM-metingen beschikbaar zouden zijn, zou een geheel ander beeld van het verloop van de nitraatconcentratie ontstaan.

Bronnen waarvan de concentraties niet veel variëren (zoals CRGE-031/z.027, MPGE-006/z.039, VYSI-002), zouden in principe iets minder vaak kunnen worden bemonsterd. We bevelen echter aan om eerst in te zetten op systematische debietmetingen, zodat inzicht wordt verkregen in de relatie tussen de fluctuatie in

tritium en nitraat met de weers- en klimaatomstandigheden. Als die relaties eenmaal goed zijn vastgelegd, kunnen de metingen aan de waterkwaliteit worden geoptimaliseerd qua meetfrequenties.



Figuur 4.1 Voorbeeld van grote variatie van de nitraatconcentratie voor bron CPGB-022 (n.091). Blauwe lijn geeft de reconstructie en prognose van de nitraatconcentratie, rode bolletjes = gemeten nitraatconcentraties door RIVM, paarse bolletjes door Provincie Limburg. Voor deze bron is overigens slechts 1 model mogelijk (jonge model/rode lijn en oud model/blauwe lijn geven hetzelfde model weer en zijn over elkaar heen geplott).

Aanvullende tritiummetingen

Daarnaast bevelen we aan om de bronnen 1x per 6 tot 8 jaar te blijven analyseren op tritium. Met meer tritiummetingen kunnen we de reistijdverdeling scherper afbakenen en zullen ook de reconstructies van het verloop van nitraatconcentraties zekerder worden. Zeker voor een aantal bronnen (CPMA-002/n.002, CPMA-034/n.010, MPNO-001/z.001 (Brigida) en CRGE-033/z.028 (Landeus), waarbij de keuze voor het beste tritiummodel nu nog minder duidelijk te maken is. Deze ambiguïteit zal naar verwachting op termijn verdwijnen als een langere reeks ^3H metingen beschikbaar komt.

4.3 Vooruitblik

Aanvullende tritiummetingen

In 2018 heeft RIVM de 80 Limburgse bronnen uit het eerdere onderzoek (zie Broers en van Vliet 2018) opnieuw bemonsterd, waarbij ook weer een monster voor de analyse op tritium is genomen. TNO heeft deze monsters in opdracht van RIVM verstuurd naar Oceanografisch Laboratorium van de Universiteit Bremen. In 2020 zullen deze gegevens hoogstwaarschijnlijk worden verwerkt. Het bronnenmeetnet van het RIVM omvat ook de meeste bronnen uit het provinciale KRW Krijt-Maas meetnet, waardoor ook voor de provinciale bronnen een nieuwe tritiummeting beschikbaar komt. Naar verwachting liggen de nieuwe tritium-metingen van de in het RIVM-onderzoek betrokken bronnen, dicht bij de hier gerapporteerde waarden.

Het RIVM-onderzoek levert juist voor de andere bronnen, waar sinds 2009 niet meer is bemonsterd op tritium, een grote meerwaarde en een mogelijke aanscherping van het leeftijdsmodel. Analyse van deze gegevens zal ook naar verwachting het inzicht vergroten van de bronnen uit het provinciale bronnenmeetnet.

Nemen van maatregelen

Hoewel het aan de provincie is om de keuze te maken waar maatregelen in te zetten, kunnen we daar in het algemeen wel een richting aan geven.

Bij bronnen waar de nitraatnorm nu wordt overschreden en de reistijd kort is, kan het snelst winst worden behaald door reductie van mestgiften of de introductie van andere stoffen in de bodem. Tegelijkertijd is het ook goed om na te gaan waar de reistijd lang is en de norm ook na 2035 (nog) wordt overschreden. Daar kunnen 'nu' maatregelen nodig zijn om uiteindelijk de normwaarden te gaan bereiken.

Hierbij moet wel worden opgemerkt dat voor het bepalen van nitraatprognoses in dit onderzoek de nitraatinput na 2015 gelijk is gesteld aan de input van 2015. Dat komt overeen met de recente bevinding dat de nitraatuitspoeling lijkt te stabiliseren (zie bijvoorbeeld Kivits et al. 2019). Indien de input van nitraat in de loop der tijd verandert, zal ook de nitraatvoorspelling veranderen.

5 Referenties

- Broers, H.P. (2004). The spatial distribution of groundwater age for different geohydrological situations in the Netherlands: implications for groundwater quality monitoring at the regional scale. *J. Hydrol.* 299, 84–106.
<https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2004.04.023>
- Broers, H.P. & B. van der Grift (2004). Regional monitoring of temporal changes in groundwater quality. *Journal of Hydrology* 296:192-220.
- Broers, H.P., P. Schippers (Grontmij), R. Stuurman, F.C. van Geer en G. van Oyen (2005). Opzet van het KRW-meetnet grondwater voor het stroomgebied Zand-Maas, rapport NITG 05-176-A, TNO, Utrecht.
- Broers, H.P., A. Visser, J. Klein en M. Verheul (2009). Vaststellen van trends en trendomkering in grondwater ten behoeve van de KRW. Resultaten van de datering onder landbouwgebieden op droge zandgrond in het grondwaterlichaam Zand-Maas, rapport 2009-U-R81132, Deltares, Utrecht.
- Broers, H.P. en M.E. van Vliet (2018). Dateringsonderzoek bronnen en bronbeken Zuid-Limburg. Prognose van de nitraatconcentraties in Limburgse bronnen voor het KRW-jaar 2027, rapport TNO 2018 R10421, TNO, Utrecht.
- Hendrix, W.P.A.M. (1985). Het grondwater van het centraal plateau (Zuid-Limburg). Geografisch instituut der rijksuniversiteit Utrecht.
- Hendrix, W.P.A.M. en C.R. Meinardi (2004). Bronnen en bronbeken van Zuid-Limburg. RIVM-rapport 500003003/2004.
- Jurgens, B. C., Böhlke, J. K., & Eberts, S. M. (2012). TracerLPM (Version 1): An Excel® workbook for interpreting groundwater age distributions from environmental tracer data, United States Geological Survey Techniques and Methods Report 4-F3, 60. Reston, Virginia, USA, 72p.
- Kivits, T.E., H.P. Broers en M.E. van Vliet (2019). Dateren van grondwater van KRW-meetnet Zand-Maas, inzicht in de toestand en trends van 12 indicatoren van de grondwaterkwaliteit, TNO-rapport 2019 R11224, TNO, Utrecht
- Raats, P.A.C. (1978). Convective Transport of Solutes by Steady State Flows I. General Theory. *Agric. Water Manag.* 1, 201–218.
- Van Ommen, H.C., 1986. Influence of diffuse sources of contamination on the quality of outflowing groundwater including non-equilibrium adsorption and decomposition. *J. J* 88, 79–95
- Maloszewski, P., & Zuber, A. (1996). Lumped parameter models for the interpretation of environmental tracer data (No. IAEA-TECDOC--910).

Małozewski, P., & Zuber, A. (1998). A general lumped parameter model for the interpretation of tracer data and transit time calculation in hydrologic systems](*Journal of Hydrology* 179 (1996) 1-21) Comments. *Journal of Hydrology*, 204(1-4), 297-300.

Massop, H., van der Meulen, R.J., Vernes, R. & Westerweele, E.-L. (1989). Een hydrogeologische studie van het Plateau van Schimmert, Zuid-Limburg (afstudeerthesis, Landbouwniversiteit Wageningen). Wageningen: Landbouwniversiteit Wageningen, Vakgroep Bodemkunde en Geologie.

Visser, A. H.P. Broers, R. Heerdink and M.F.P. Bierkens (2009) Trends in pollutant concentrations in relation to time of recharge and reactive transport at the groundwater body scale. *Journal of Hydrology*, 369:427-439.

6 Ondertekening

Naam en paraaf tweede lezer



T.E. Kivits

Ondertekening



Drs. M.E. van Vliet
Auteur

Autorisatie vrijgave



Dr. M.J. van der Meulen
Research manager

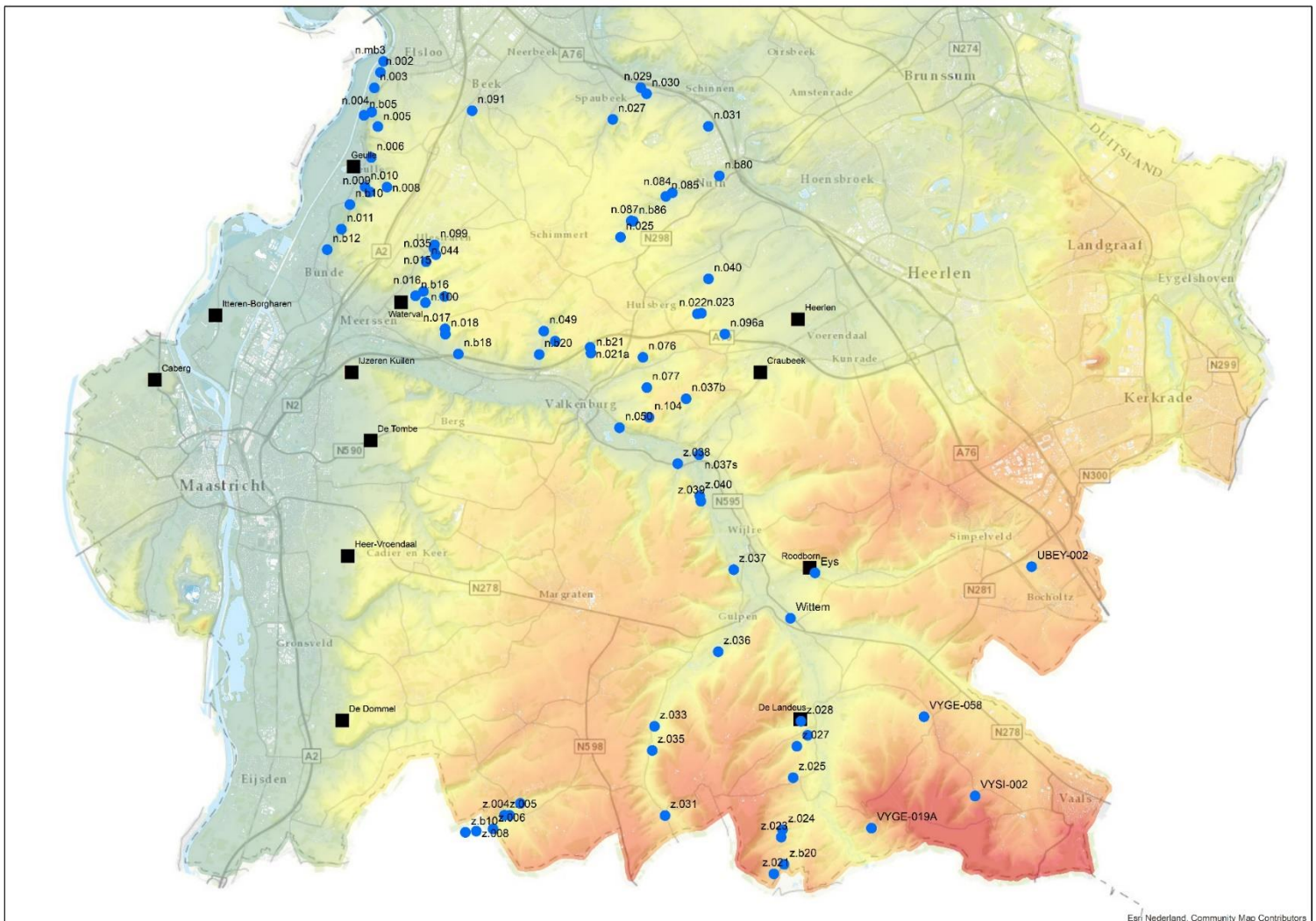
A Overzichtskaart bronnen en winningen

Overzicht van de bronnen uit het RIVM-meetnet en KRW Krijt-Maas meetnet. Tevens zijn de winningen in dit gebied weergegeven.

Legenda:

Blauwe bolletjes = bronnen

Zwarte vierkantjes = winningen



B Overzichtstabel bronnen met selectiecriteria

Bronnaam provincie	Bronnaam RIVM	tritium 2001	tritium 2008	Debiet (l/s)	Opmerking bij data Meinardi	tijdreeks lengte	Concentraties	Keuze	Opmerking	Selectie
CPMA-034	n.010	13	-	0.2	Relatief lage 3H en Cl	sinds 1991	NO3 schommelt tussen 75-95 mg/l, SO4 60-70, Relatief lage 3H en Cl	++	Bunderbos	j
CPMA-002	n.002	13	-	5	cl ~35 mg/l	sinds 2001	NO3 125-140 mg/l, heel licht gradueel daling, geen seizoensvariatie	++	Bunderbos (maandelijks)	j
CPGB-022	n.091	15	-		45 mg/l Cl	sinds 1992	Zeer hoge NO3 (125-200 mg/l), SO4 dalend naar 100 (trend), variaties in kwaliteit vrij groot	++		j
CPGB-026	n.026?	14	-	0.01	40 mg/l Cl	sinds 1999	Nitraat daalt van 150 naar 75 mg/l, sulfaat 75 mg/l	+-		n
CPGB-081A	n.086	-	-	0.1		sinds 1992	Vrij grote variatie 100-150 mg/l NO3, seizoensvariatie	+-	Vervallen sinds 2010	n
CPGE-062	n.020	11.5	-	0.8	62 mg/l Cl	sinds 1992	Zeer hoge NO3 (250 mg/l), grote schommeling dalend naar 150. SO4 rond 100.	++		j
UBGE-001	n.037	10,5	6.2	23	25 mg/l CL	sinds 1997	Erg mooi constant. 40 mg/l NO3 stabiel	+++		j
MPGE-006	z.039	10	6.44	5	21 mg/l Cl	sinds 1992	35 mg/l NO3 constant, weinig variatie, 50 mg/l SO4	++		j
MPGE-001	z.037	9	-	12	21 mg/l Cl	sinds 2007	NO3 40 mg/l constant, SO4 50 mg/l, weinig variatie	+-		n
MPGU-011	z.033	-	-					geen krw	Bron maakt geen onderdeel uit van krw-bronnen	n
CRGU-005	z.035	9.5	-	0.8	17 mg/l Cl	sinds 1992	40 mg/l NO3 REVERSAL, 40 mg/l SO4	+		j
CRGE-033	z.028	12	-	10		sinds 2007	Van 40 naar 30 mg/l NO3 dalend, 60 mg/l SO4, wel variatie nitraat aanzienlijk	++		j
CRGE-031	z.027	12	-	0.8	14 mg/l Cl	sinds 1992	Langere reeksen, reversal 40 mg/l, SO4 50 mg/l, een zekere variatie	++		j
CRGE-032	z.025	14	8.14	0.75	16 mg/l Cl	sinds 2007	NO3 75 mg/l variaties, SO4 50 mg/l en heel constant	++		j
MPGU-007	z.031	13	-	0.2		sinds 2007	NO3 rond 50 mg/l veel variatie, SO4 < 50 mg/l	+-		n
MPNO-001	z.001		8.53	23.8		sinds 1984		+++	Brigida, langste tijdreeks	j
MPNO-002	z.005	13	-	1.5		sinds 2007	NO3 45 mg/l constant, SO4 heel constant 50 mg/l	+-		j
VYGE-019A		-	6.2			sinds 1992	NO3 40 mg/l, veel variatie van max 15 mg/l, SO4 25 mg/l	++	Vaals	j
VYGE-058		-	7.33			sinds 1992	Reversal 50 mg/l max, beetje variabel	++		j
UBGE-002		-	6.75			sinds 2013	25 mg/l Cl, 60 mg/l SO4. Gedateerd door Ate, niet door Meinardi	+-	Kasteel Wittem, groot debiet, korte reeks	j

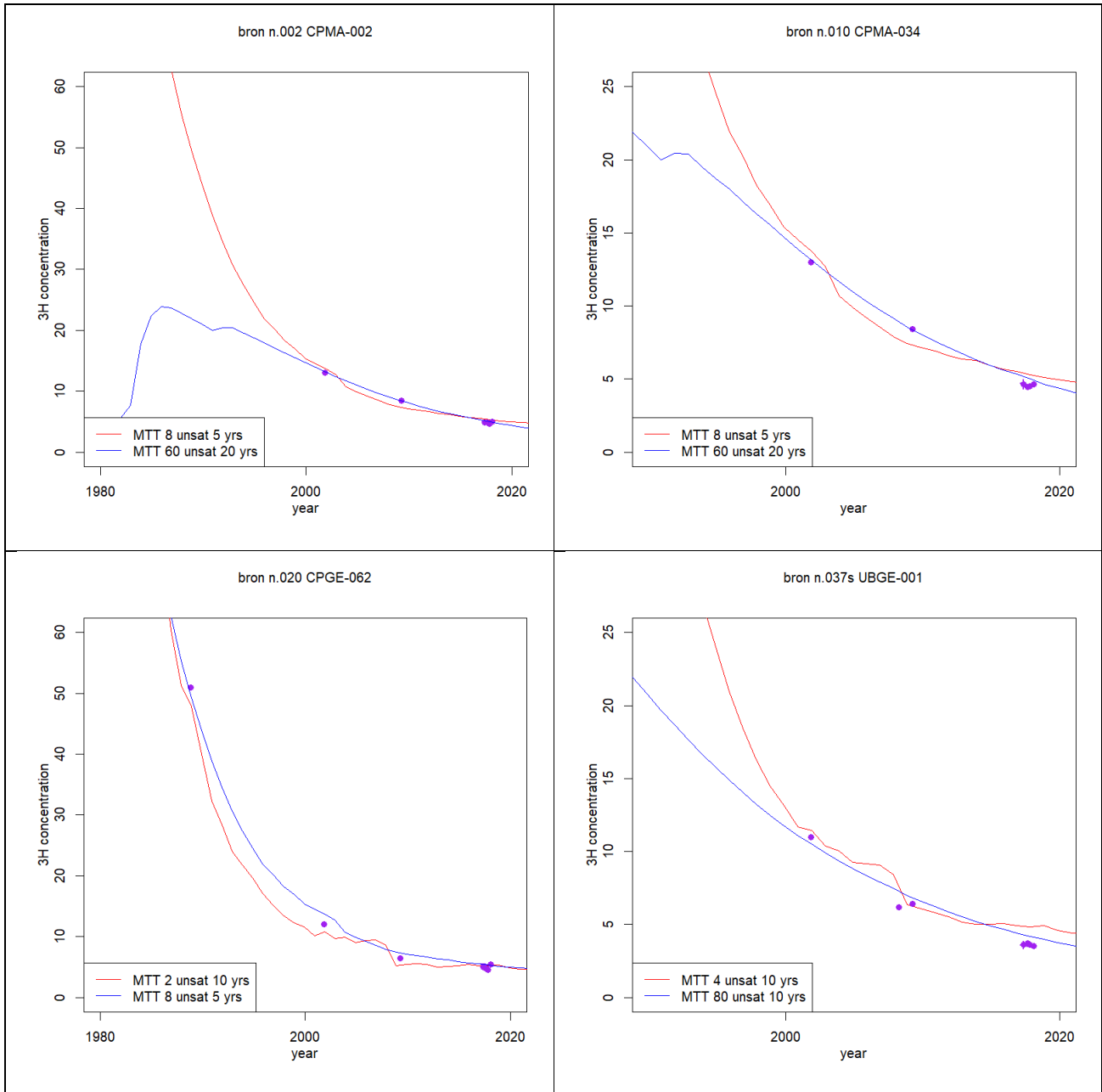
C Resultaten van de tritiumanalyses van de bronnen

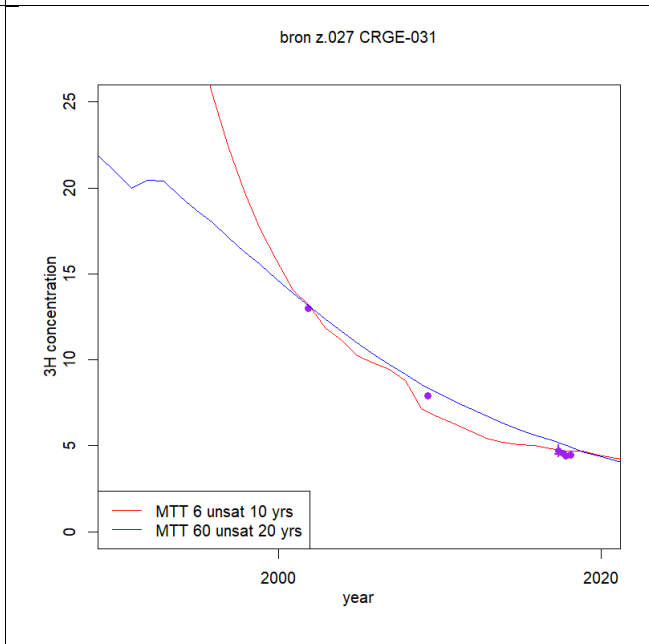
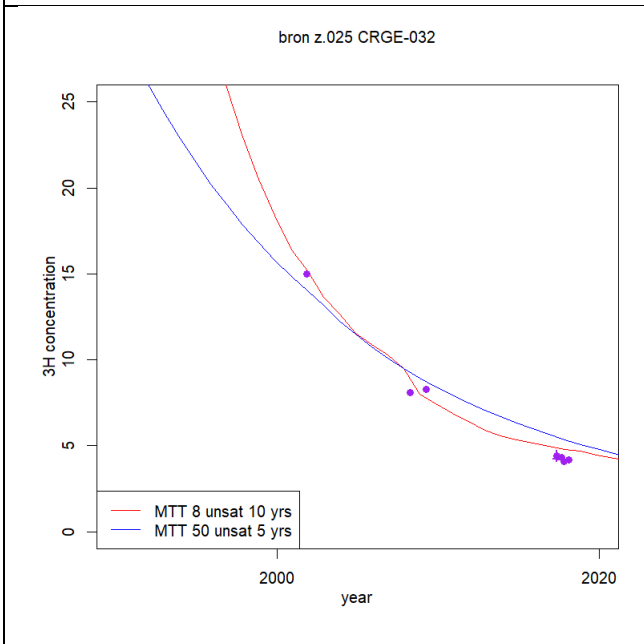
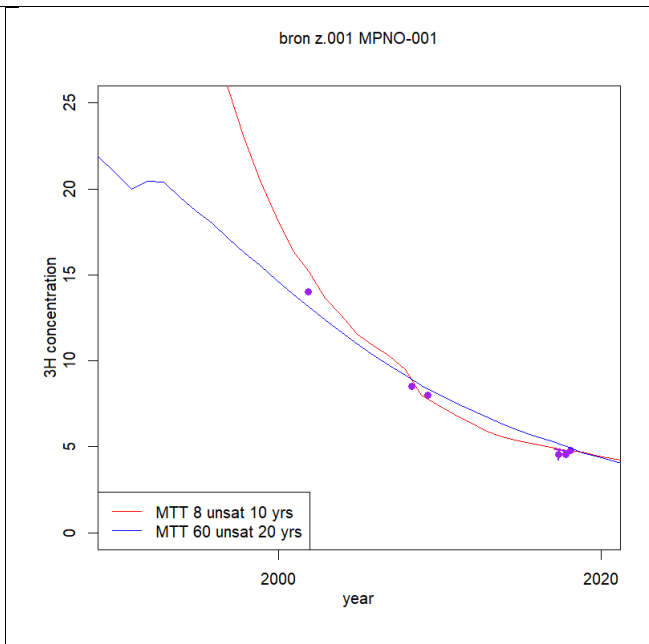
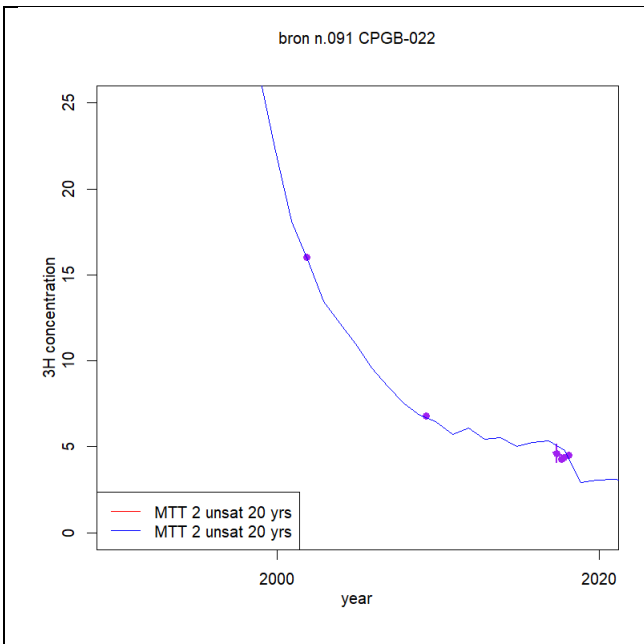
Onderstaande tabel geeft een overzicht van de gemeten tritiumconcentraties in Tritium Units in de bronnen, die in 2017 en 2018 zijn bemonsterd door de provincie. Naast de naam van de bron en het resultaat van de tritiumanalyse is tevens de 'error' gegeven. Deze geeft een indruk van de precisie van de meting.

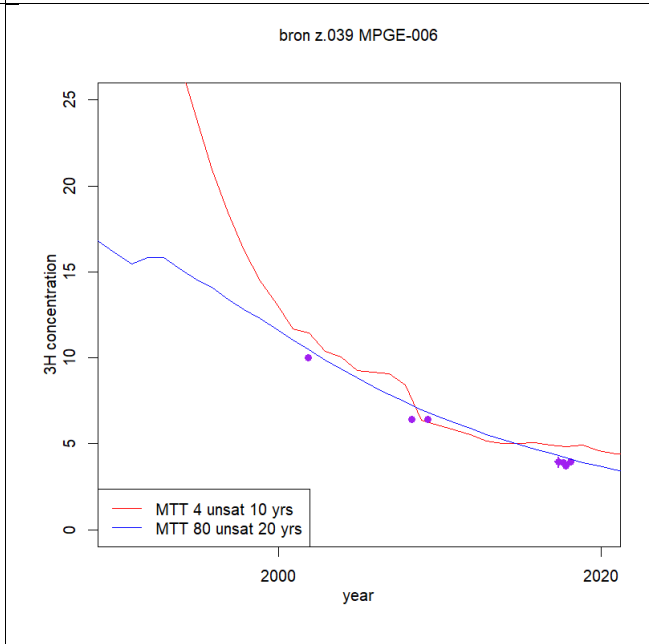
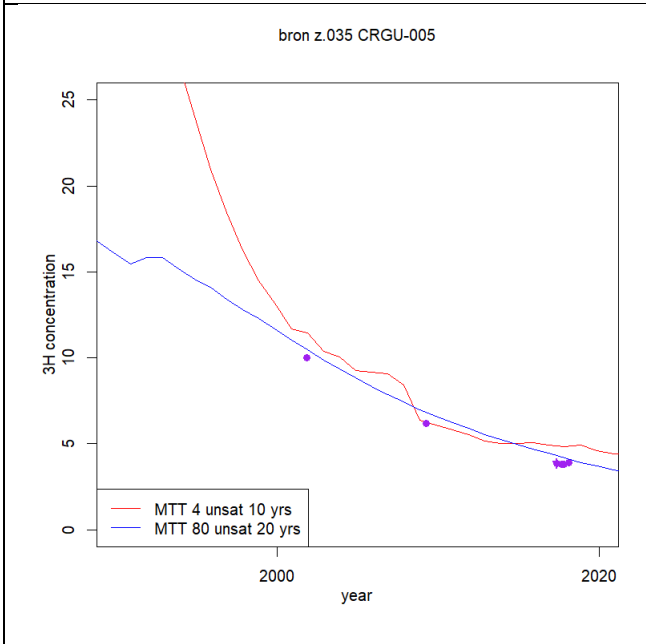
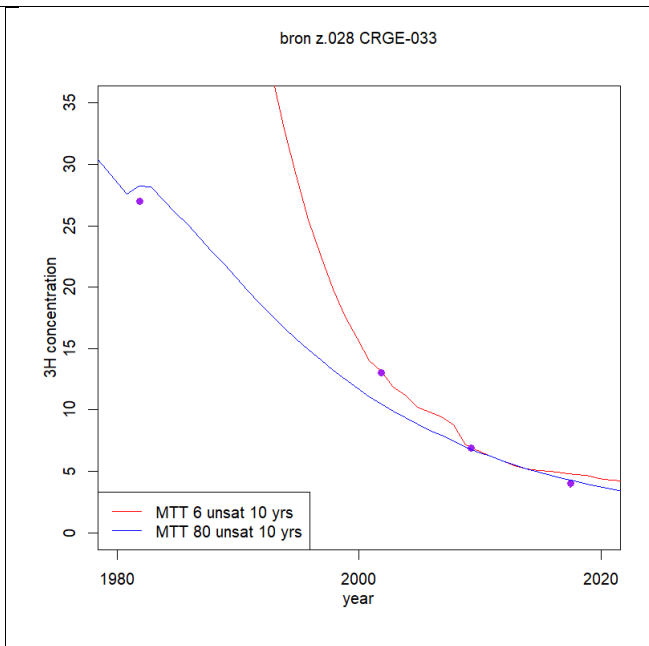
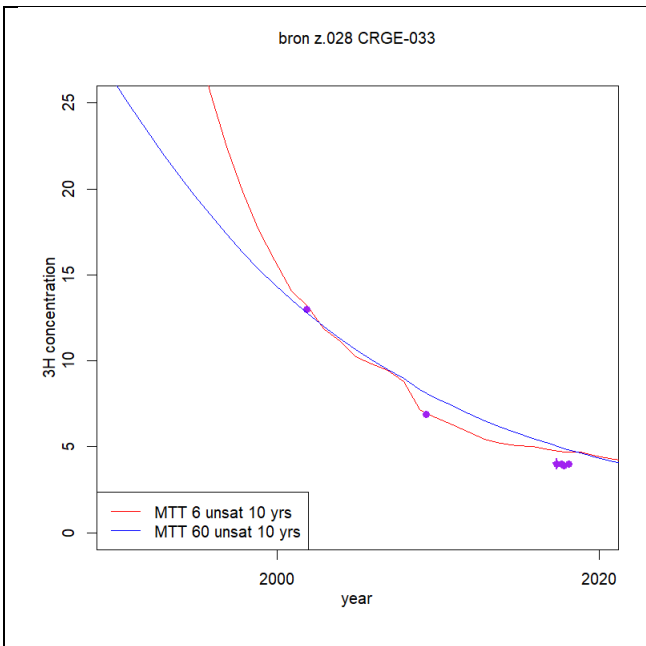
Bronnaam	RIVM-naam	Bemonsteringsdatum	³ H (TU)	Error (TU)
CPMA-002	n.002	9-5-2017	4.9	0.4
CPMA-002	n.002	21-6-2017	5	0.4
CPMA-002	n.002	10-7-2017	4.7	0.2
CPMA-002	n.002	22-8-2017	4.9	0.1
CPMA-002	n.002	31-10-2017	4.6	0.1
CPMA-002	n.002	7-2-2018	5.0	0.1
CPMA-034	n.010	9-5-2017	4.6	0.3
CPMA-034	n.010	22-8-2017	4.4	0.2
CPMA-034	n.010	31-10-2017	4.5	0.1
CPMA-034	n.010	7-2-2018	4.6	0.1
CPGE-062	n.020	9-5-2017	5.0	0.4
CPGE-062	n.020	22-8-2017	4.7	0.1
CPGE-062	n.020	2-11-2017	4.5	0.1
CPGE-062	n.020	9-2-2018	5.5	0.1
UBGE-001	n.037s	9-5-2017	3.6	0.3
UBGE-001	n.037s	22-8-2017	3.7	0.1
UBGE-001	n.037s	2-11-2017	3.6	0.1
UBGE-001	n.037s	7-2-2018	3.5	0.1
CPGB-022	n.091	9-5-2017	4.6	0.5
CPGB-022	n.091	22-8-2017	4.3	0.1
CPGB-022	n.091	31-10-2017	4.4	0.1
CPGB-022	n.091	7-2-2018	4.5	0.2
MPNO-001	z.001	11-5-2017	4.6	0.3
MPNO-001	z.001	23-8-2017	4.5	0.1
MPNO-001	z.001	9-2-2018	4.8	0.1
CRGE-032	z.025	10-5-2017	4.4	0.3
CRGE-032	z.025	24-8-2017	4.3	0.1
CRGE-032	z.025	1-11-2017	4.1	0.1
CRGE-032	z.025	8-2-2018	4.2	0.1
CRGE-031	z.027	10-5-2017	4.7	0.3
CRGE-031	z.027	24-8-2017	4.6	0.1
CRGE-031	z.027	1-11-2017	4.4	0.1
CRGE-031	z.027	8-2-2018	4.5	0.1

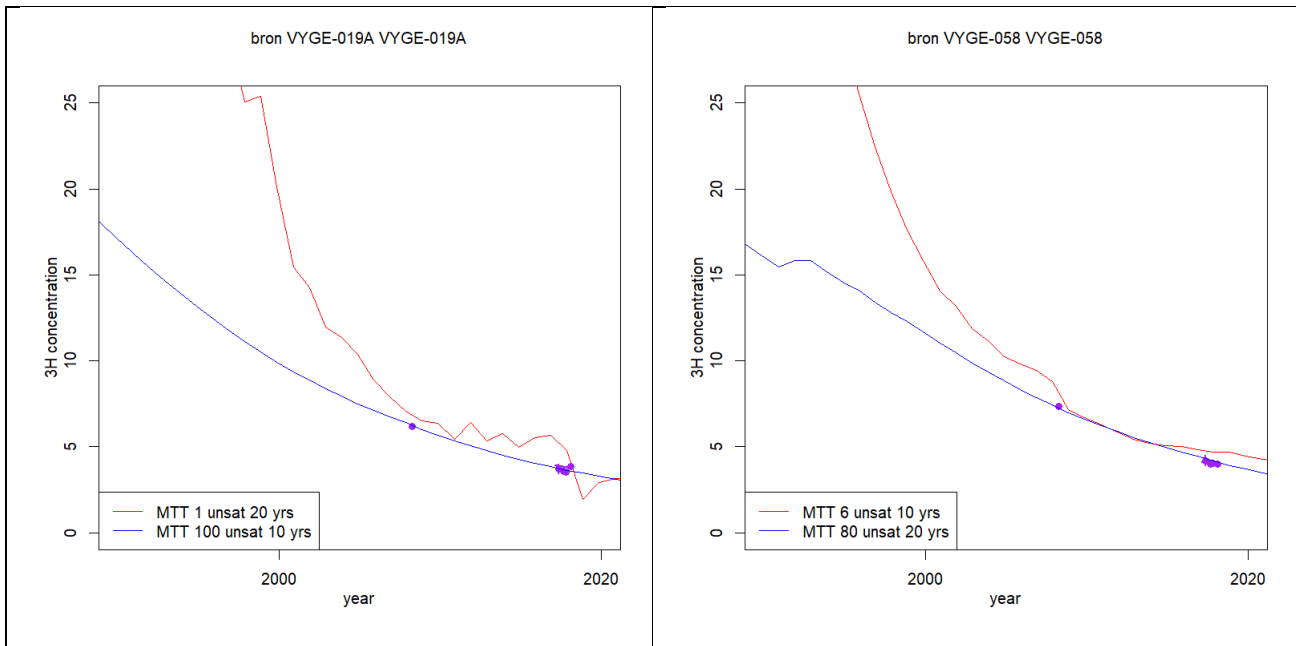
Bronnaam	RIVM-naam	Bemonsteringsdatum	³ H (TU)	Error (TU)
CRGE-033	z.028	10-5-2017	4.0	0.3
CRGE-033	z.028	24-8-2017	4.0	0.1
CRGE-033	z.028	1-11-2017	3.9	0.1
CRGE-033	z.028	8-2-2018	4.0	0.1
CRGU-005	z.035	11-5-2017	3.9	0.3
CRGU-005	z.035	23-8-2017	3.8	0.1
CRGU-005	z.035	2-11-2017	3.8	0.1
CRGU-005	z.035	8-2-2018	3.9	0.1
MPGE-006	z.039	11-5-2017	3.9	0.3
MPGE-006	z.039	23-8-2017	3.9	0.1
MPGE-006	z.039	2-11-2017	3.7	0.1
MPGE-006	z.039	9-2-2018	3.9	0.1
UBEY-002		23-8-2017	3.5	0.1
UBEY-002		1-11-2017	3.2	0.1
UBEY-002		8-2-2018	3.4	0.1
VYGE-019A		10-5-2017	3.7	0.3
VYGE-019A		24-8-2017	3.6	0.1
VYGE-019A		1-11-2017	3.5	0.1
VYGE-019A		8-2-2018	3.9	0.1
VYGE-058		10-5-2017	4.2	0.3
VYGE-058		24-8-2017	4.0	0.1
VYGE-058		1-11-2017	4.0	0.1
VYGE-058		8-2-2018	4.0	0.1
VYSI-002		24-8-2017	4.6	0.1
VYSI-002		1-11-2017	4.8	0.1
VYSI-002		8-2-2018	4.6	0.1

D Model fits reistijdverdelingen op basis van het verloop van tritium concentraties



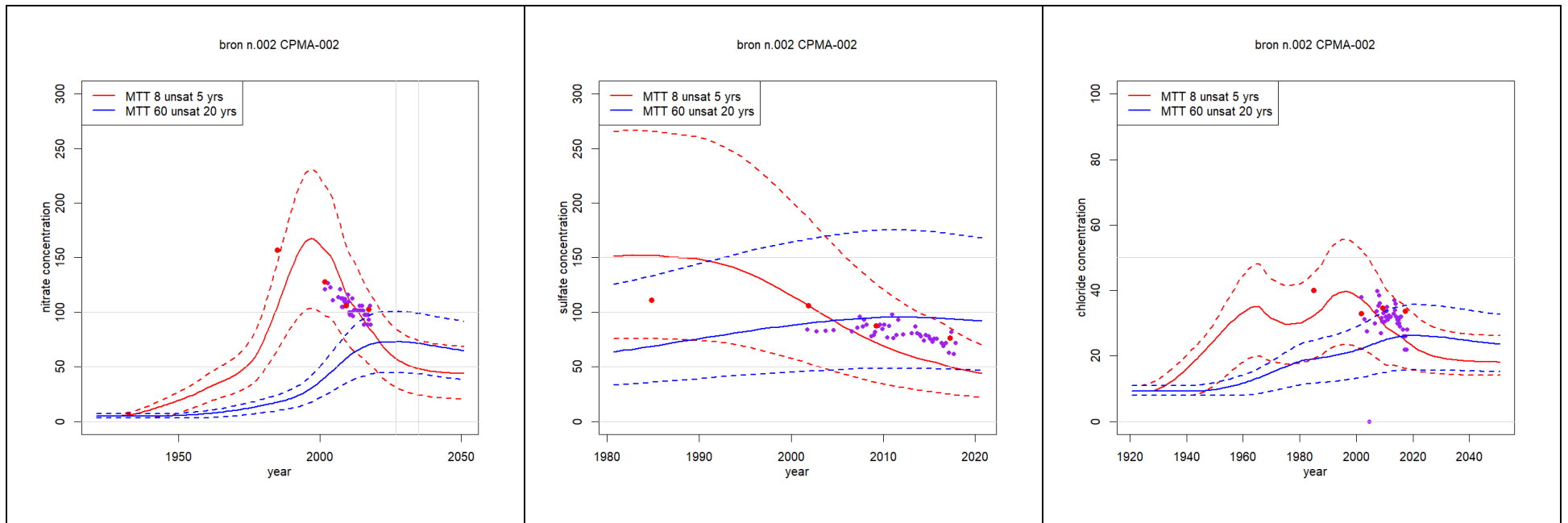


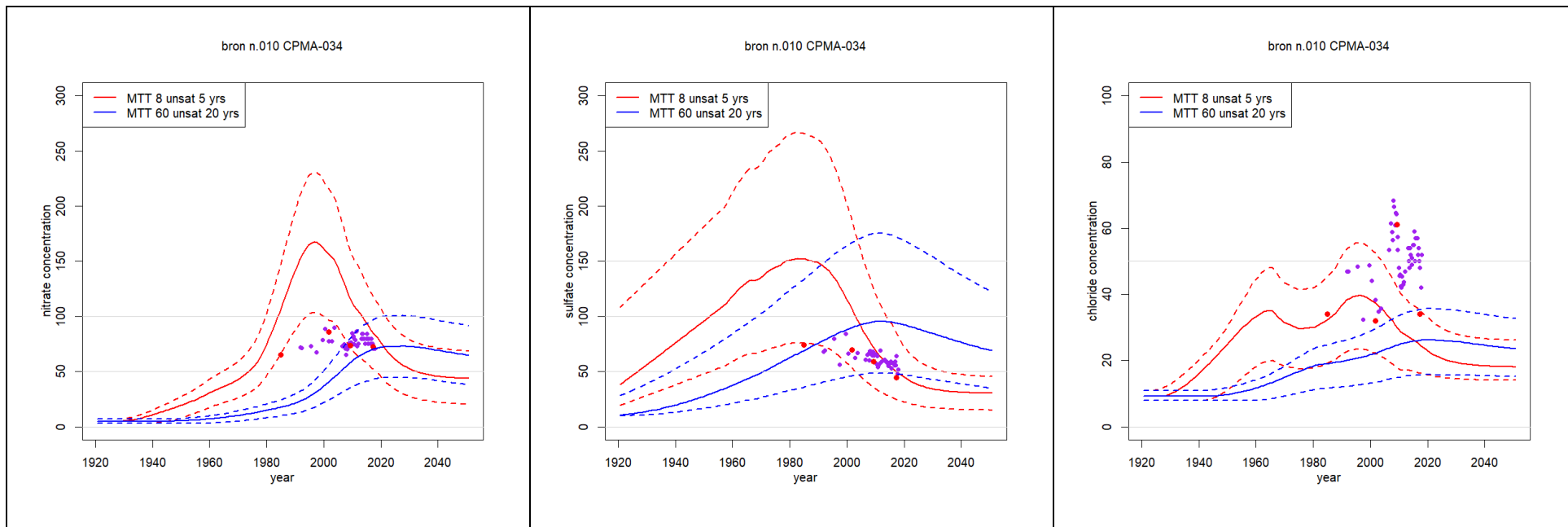


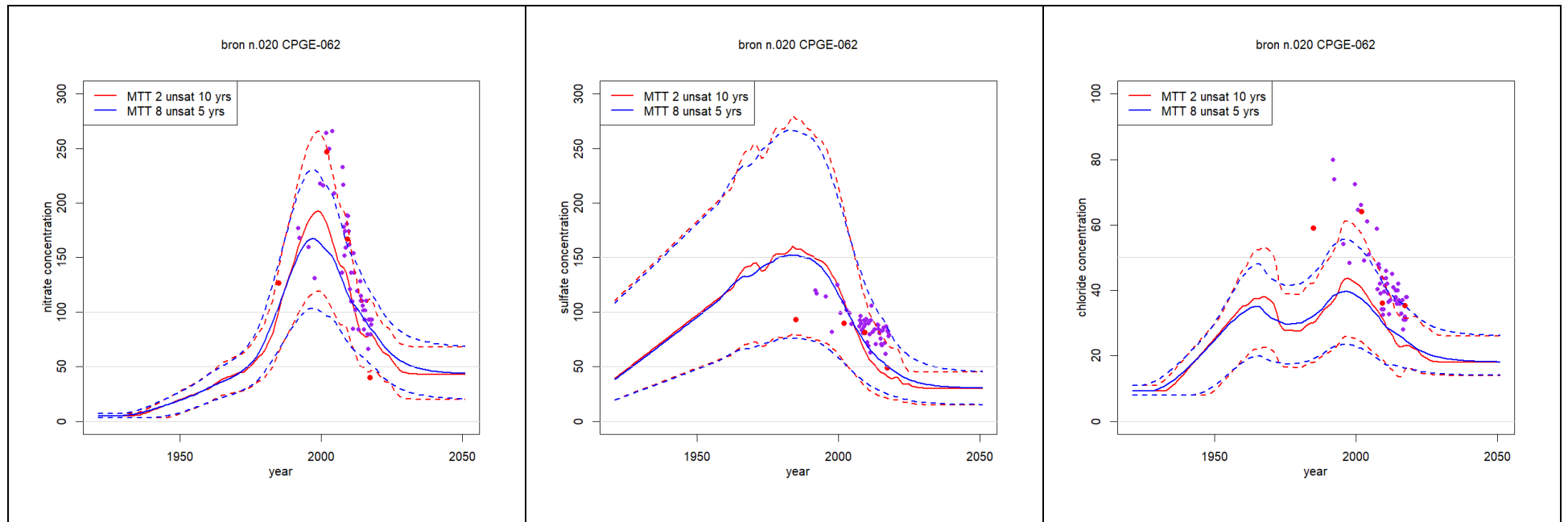


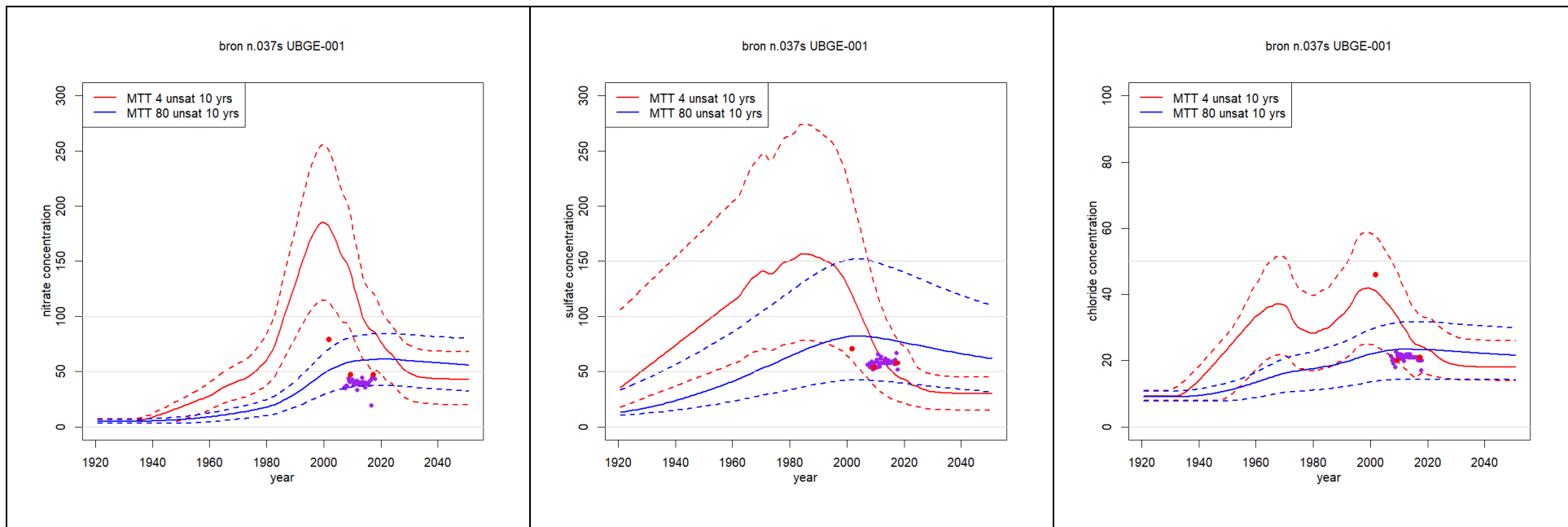
E Vergelijking van de gemodelleerde nitraat-, chloride- en sulfaatconcentraties met de meetdata van het RIVM en het KRW Krijt-Maas bronnenmeetnet

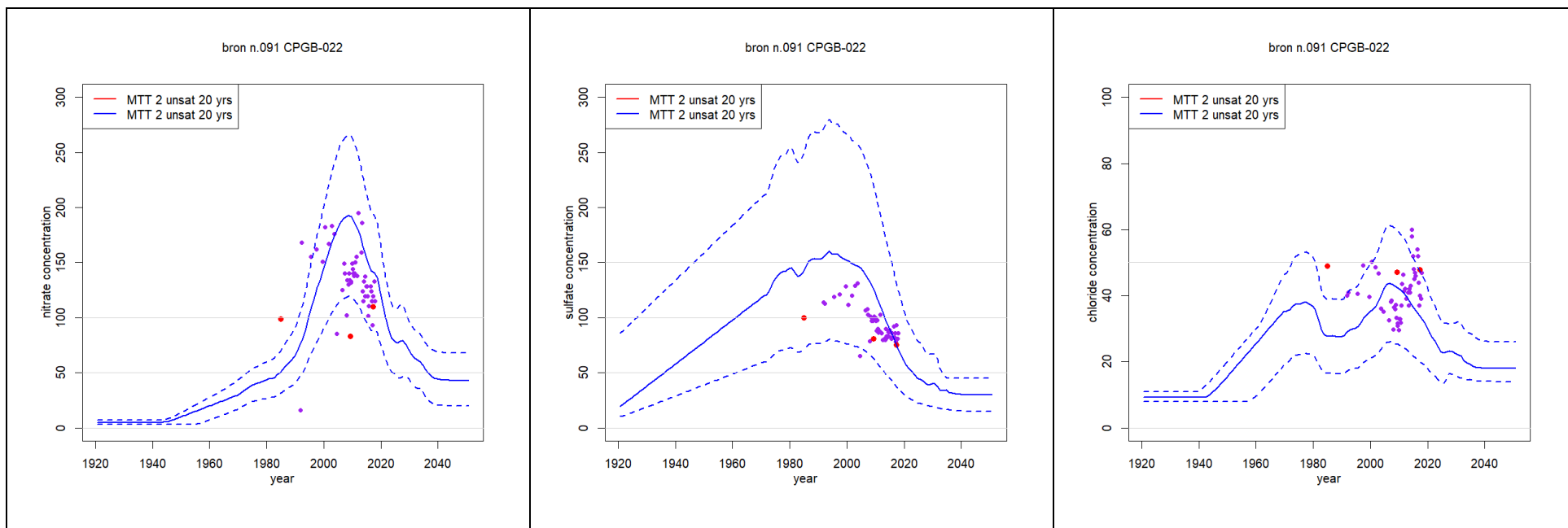
Onderstaande figuren geven per bron de vergelijking van de gemodelleerde nitraat-, chloride- en sulfaatconcentraties met de meetdata van het RIVM (rood) en het KRW-bronnenmeetnet (paars). De stippellijnen geven de betrouwbaarheidsbanden van de modellen gebaseerd op de onzekerheid over de uitspoeling van nitraat, sulfaat en chloride in het Limburgse bodemvochtmeetnet en het LMM (Broers en Van Vliet, 2018). De rode lijn is de reconstructie gemaakt met het beste jonge model. De reconstructie op basis van het beste oude model is met een blauwe lijn weergegeven.

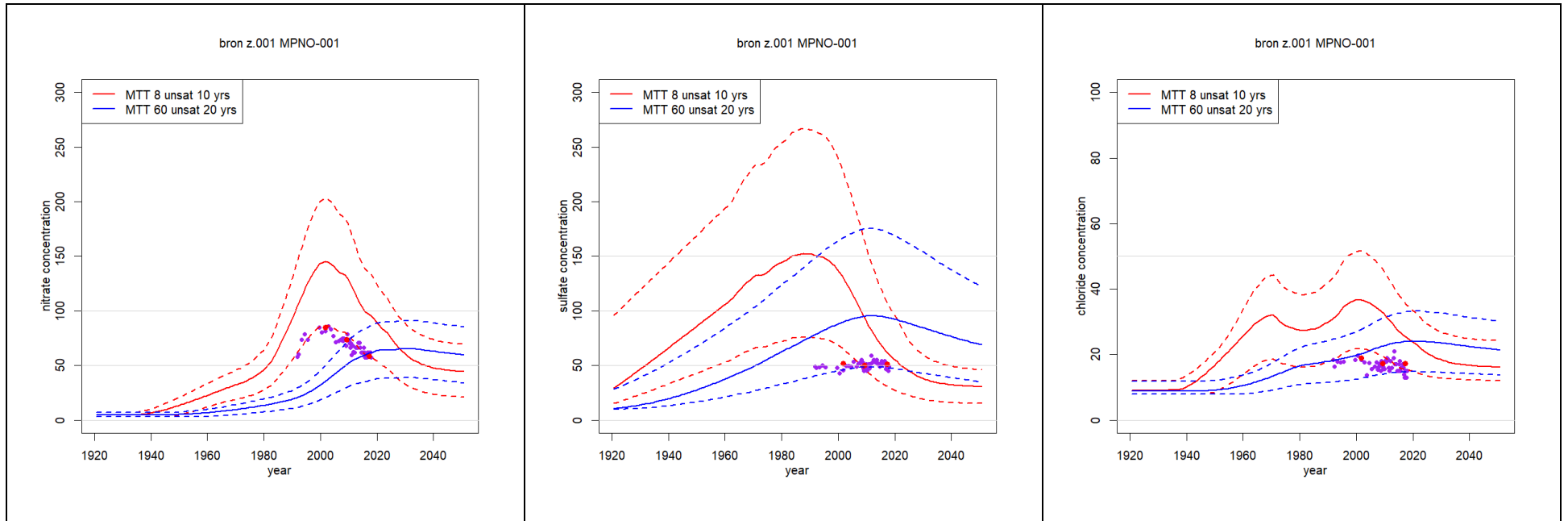


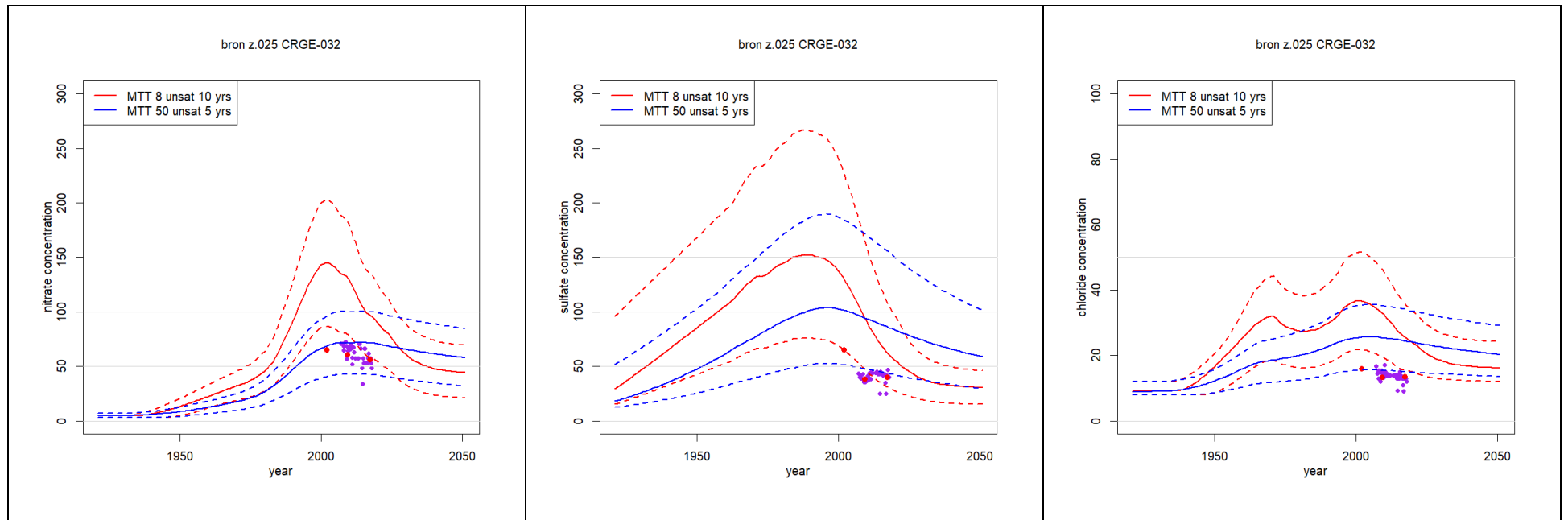


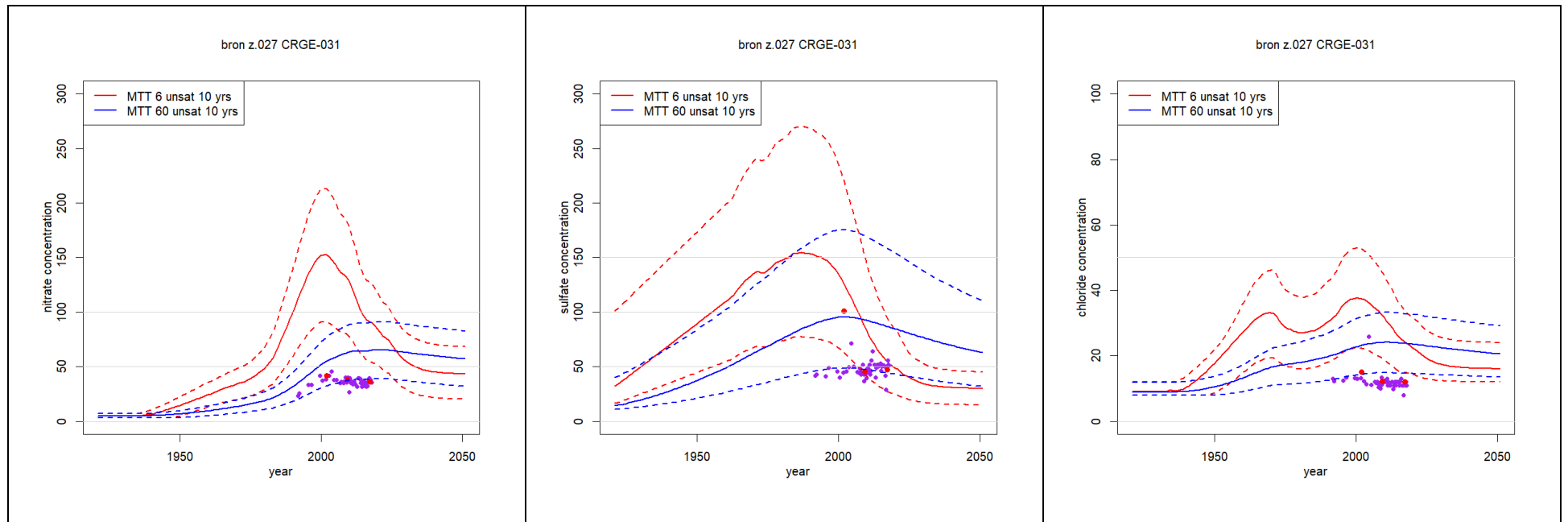


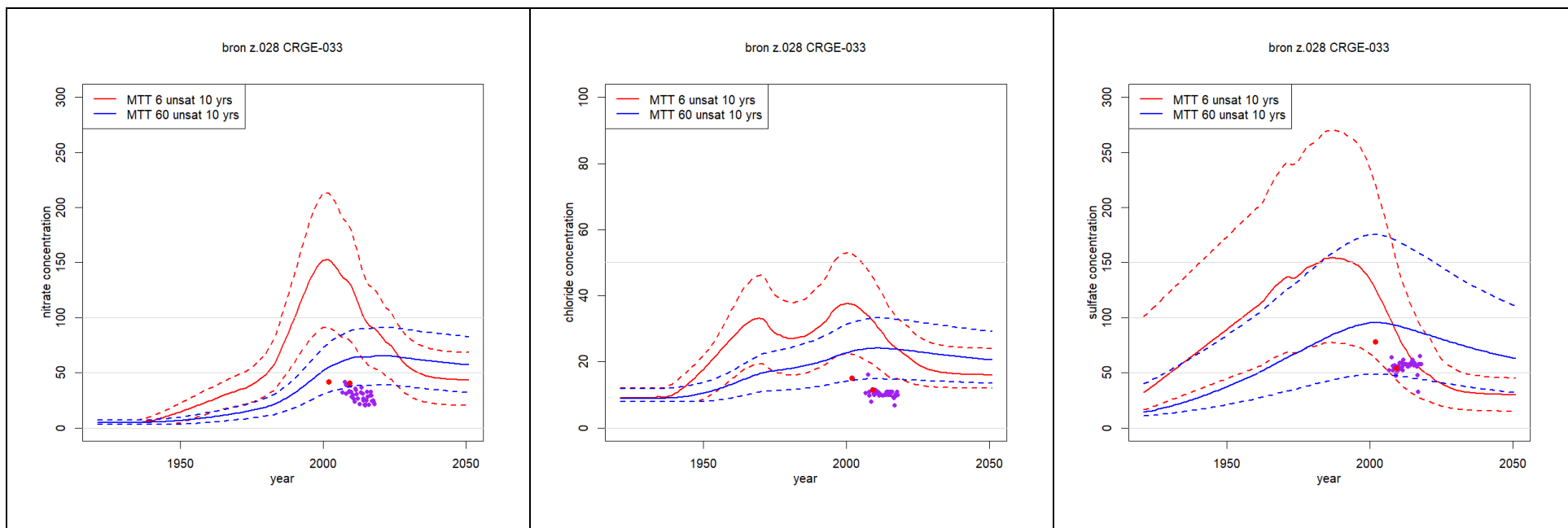


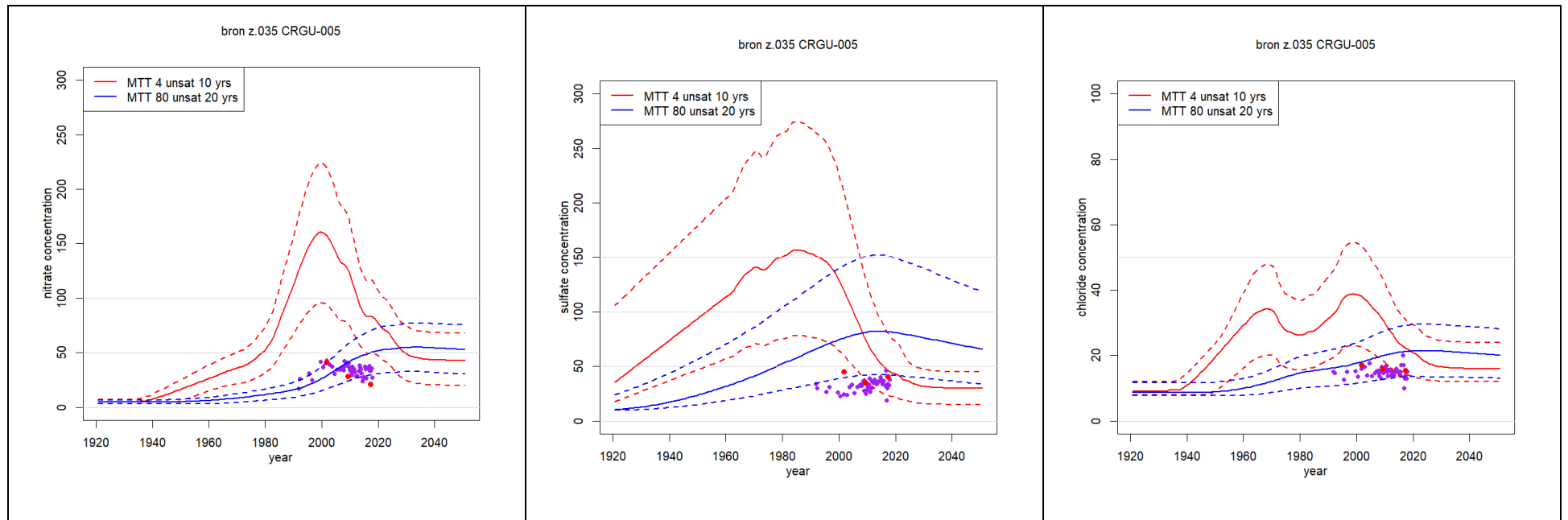


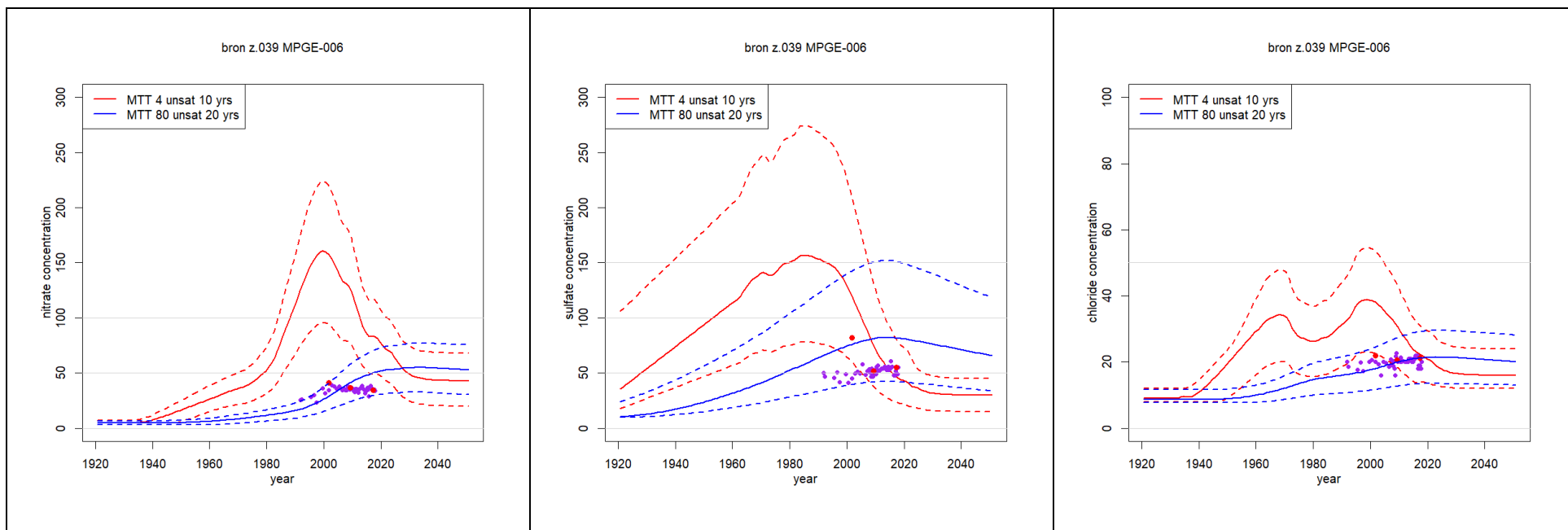


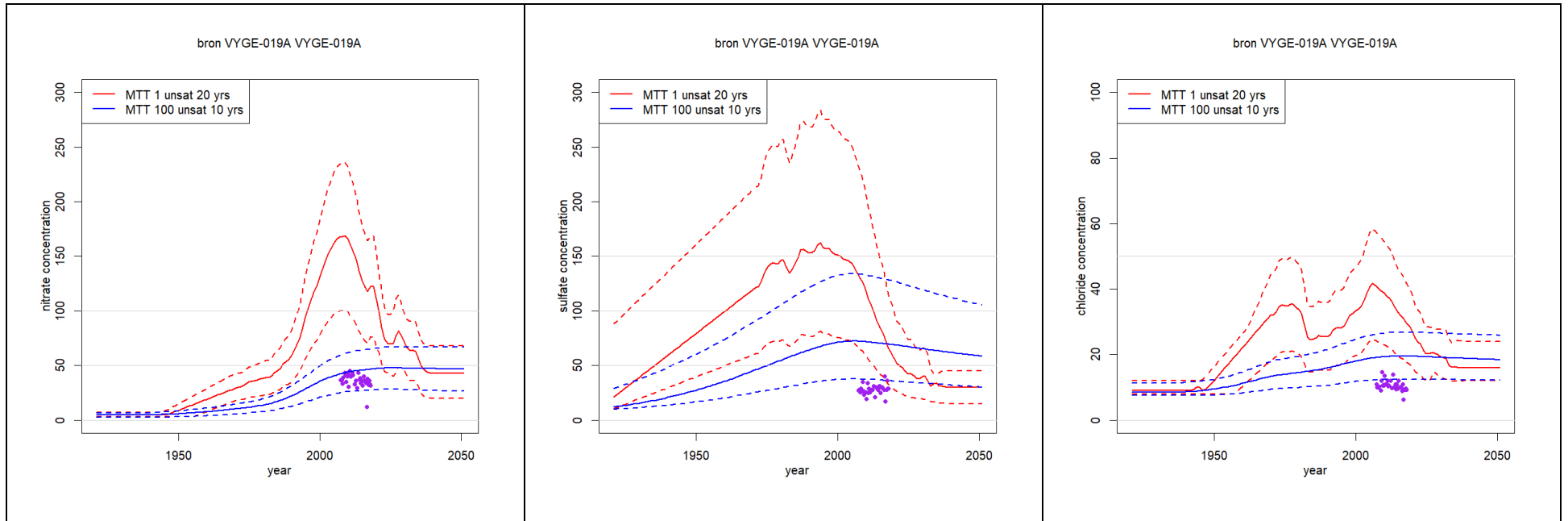


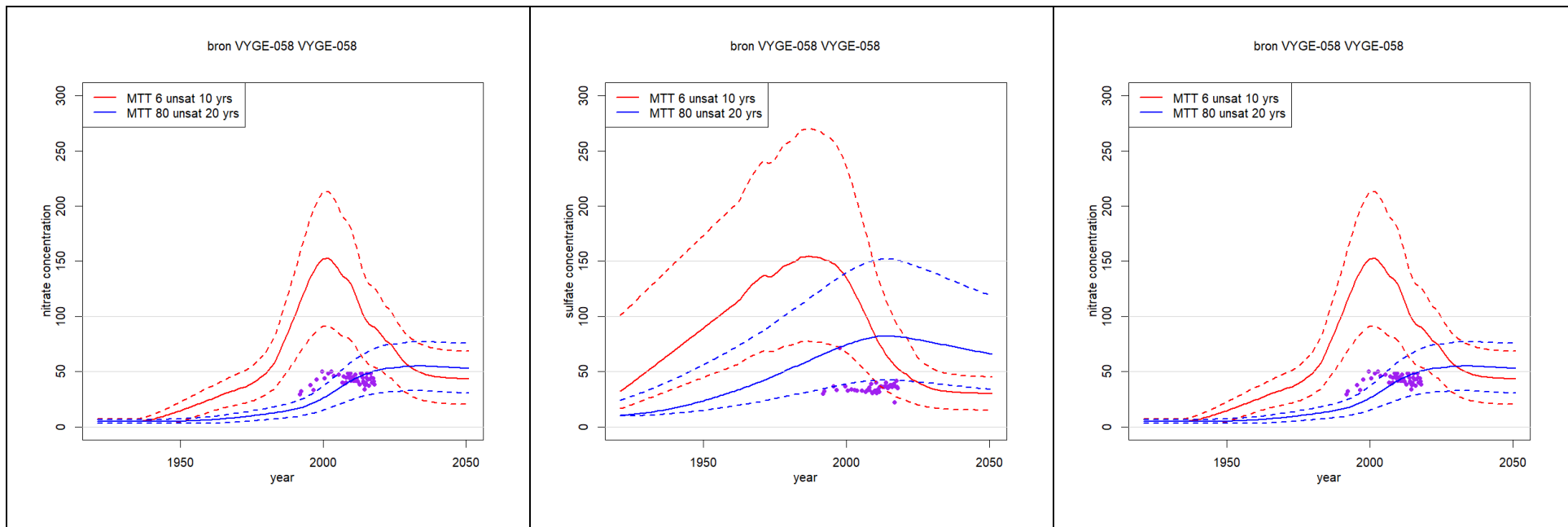












F Prognoses nitraatconcentraties 2027 en 2035

Overzichtstabel van de gekozen voorkeursleeftijdsmoellen per bron en de prognose van nitraat. In de kolommen MTT en Unsat zijn de jonge en oude modellen resp. met rode en blauwe kleur weergegeven. In de drie (sub)kolommen onder 'Prognose nitraat 2027' en 'Prognose nitraat 2035' is de prognose van de nitraatconcentratie gegeven van het midden van het model, de range van het model en de prognoses op basis van 'expert judgment'. Concentraties in groen voldoen aan de nitraatnorm van 50 mg/l norm, die in rood blijven daarboven. Trend 2017-2027 geeft de richting (daling, stijging of stabilisatie) van de ontwikkeling tussen 2017 en 2027 weer.

Bronnaam	RIVM naam	MTT (yrs)	Unsat (yrs)	Prognose 2027			Oordeel nitraat fit	Trend 2017-2027	Prognose 2035		
				Midden Model	Range Model	Expert judgment			Midden model	Range Model	Expert judgment
CPMA-002	n.002	8	5	60	(20-85)	60		↘	50	(25-75)	50
CPMA-034	n.010	8	5	60	(30-85)	70	Minder sterke daling dan model voorspelt	→	50	(25-75)	70
CPGE-062	n.020	2	10	50	(25-75)	40		↘	45	(20-70)	30
UBGE-001	n.037s	80	10	65	(35-85)	45	Nitraat in lage bereik van het model	→	60	(35-85)	45
CPGB-022	n.091	2	20	80	(45-110)	65		↘	55	(35-85)	45
MPNO-001	z.001	8	10	70	(40-100)	40	Nitraat in lage bereik van het model, binair model mogelijk	↘	50	(30-80)	30
CRGE-032	z.025	8	10	70	(40-100)	30	Nitraat in lage bereik van het model, binair model mogelijk	↘	50	(30-80)	20
CRGE-031	z.027	60	20	65	(40-90)	35	Snellere afname nitraat dan model voorspelt	→	65	(40-90)	35
CRGE-033	z.028	60	10	65	(40-90)	35	Nitraat in lage bereik van het model, binair model mogelijk	↘	60	(35-90)	30
CRGU-005	z.035	80	20	55	(30-75)	25	Snellere afname nitraat dan model voorspelt	↘	55	(35-75)	20
MPGE-006	z.039	80	20	55	(35-75)	40	Eerder stabiel dan model voorspelt	→	55	(35-75)	40
UBEY-002						25	Laag 3H geeft indicatie voor oud water	↘			20
VYGE-019A		100	10	45	(30-65)	35		→	45	(30-65)	35
VYGE-058		80	20	55	(30-75)	45	Snellere afname nitraat dan model voorspelt	→	55	(30-75)	45
VYSI-002						10	Laag nitraat wijst op infiltratie in bosgebied	→			10