

0 SAMENVATTING

Voorliggend rapport omvat de uitwerking van WP 6 in het project **Evaluatie van de blootstelling aan PAK's – inventarisatiestudie**. WP 6 heeft tot doel om op basis van de in de voorgaande werkpakketten verkregen informatie een schatting te maken van de blootstelling van de Vlaamse bevolking aan PAK's in het milieu. Tevens wordt aandacht geschonken aan de blootstelling via niet-milieugerelateerde bronnen.

WP 6 maakt gebruik van de informatie uit:

- WP 1 – 2: inventaris van bestaande meetgegevens, bepaling van gidsstoffen;
- WP 4: concentratiemodellering
- WP 5: milieumetingen

Om de blootstelling te bepalen werd een conceptueel model opgesteld, dat de verschillende relevante milieuc compartimenten oplijst en de relaties tussen deze compartimenten weergeeft. Op basis van dit conceptueel model wordt een vertaling gemaakt naar een wiskundig model dat toelaat de transfers tussen milieuc compartimenten te berekenen en vervolgens de blootstelling van de mens te kwantificeren. De blootstelling via het milieu wordt besproken met betrekking tot dominante bronnen, onzekerheden en leemten. Tevens wordt een vergelijking gemaakt met niet-milieugerelateerde bronnen.

Het conceptueel model omvat volgende blootstellingswegen:

- inhalatie via lucht, buitenmilieu en binnenmilieu;
- inname via bodemdeeltjes (buitenmilieu) en stofdeeltjes (binnenmilieu);
- inname via voeding (groenten, vlees en melk; totale voeding).

Om deze blootstellingswegen te kunnen kwantificeren, was het nodig om volgende relaties te leggen:

- relatie tussen buitenlucht en binnenlucht;
- relatie tussen bodem, buitenlucht, binnenlucht en stof;
- overdracht vanuit het milieu (bodem, lucht) naar voeding.

Tevens diende aandacht besteed te worden aan de invloed van niet-milieugerelateerde bronnen.

In een eerste fase werd, op basis van de voorgestelde gidsstoffen en de beschikbare data, een selectie gemaakt van PAK's waarvoor de modellering zou uitgevoerd worden. Deze selectie omvatte: fenantreen, fluorantreen, pyreen, benzo(b)fluorantreen, benzo(k)fluorantreen, benzo(a)pyreen, indeno(1,2,3-cd)pyreen, benzo(g,h,i)peryleen en dibenzo(a,h)antracene voor de parentale PAK's; 1-nitronaftaleen, 2-nitronaftaleen, benzantron, 2-nitrofluorantreen, 1-nitropyreen en 3-nitrobenzantron voor de afgeleide PAK's.

Voor de buitenluchtconcentraties werd gebruik gemaakt van zowel de in dit project gemodelleerde immissies als van de in dit project gemeten waarden. Hiervoor werden twee aparte reeksen berekeningen opgezet. Voor de bodemconcentraties van parentale PAK's werd gebruik gemaakt van de gegevens van de databank van OVAM. Voor de afgeleide PAK's

werden schattingen gemaakt op basis van de literatuur. Hoewel de berekende buitenluchtconcentraties en de bodemconcentraties beschikbaar waren in een geografisch gedifferentieerde weergave, werden de berekeningen los van de geografische context uitgevoerd. De reden hiervoor was de waarschijnlijke scheeftrekking van de data voor bodem naar de hogere concentraties.

De relatie tussen buitenlucht en binnenlucht werd geschat op basis van literatuurdata. Theoretisch mag de verhouding tussen binnenlucht en buitenluchtconcentraties maximaal gelijk zijn aan 1, indien geen binnenhuisbronnen aanwezig zijn. Een waarde van 0,8 werd gebruikt; deze kan verder verfijnd worden zodra uit lopend onderzoek (FLIES-project, gefinancierd door LNE) Vlaamse data resulteren. Op basis van literatuurdata werd eveneens een schatting gemaakt van de relatie tussen buitenlucht en lucht in voertuigen.

Er werd getracht de relatie tussen buitenmilieu en huisstof te bepalen op basis van de literatuur. Hiervoor is evenwel onvoldoende informatie voorhanden. Indien geen binnenhuisbronnen aanwezig zijn, zou de concentratie in huisstof gelijk moeten zijn aan de concentratie in bodem vermenigvuldigd met een verdunningsfactor voor het aandeel bodem in huisstof; bijkomend zou de invloed van depositie in het binnenmilieu op het huisstof moeten bepaald kunnen worden. Wegens gebrek aan data voor Vlaanderen en de grote variatie op de buitenlandse data, werd de concentratie in huisstof gelijk gesteld aan de concentratie in bodem.

Voor de overdracht naar voeding werd gebruik gemaakt van modellen, die op basis van stoffeigenschappen, de concentraties in ondergrondse gewassen, bovengrondse gewassen, vlees en melk voorspellen. De modellen werden zoveel als mogelijk afgetoetst aan beschikbare gegevens. Voor ondergrondse gewassen was er een systematische overschatting van meer dan 1 grootte-orde. Voor de overige transferwegen zijn de voorspellingen redelijk (min of meer binnen 1 grootte-orde), hoewel er nog vrij veel onzekerheden aan kleven. De overdracht naar vissen werd niet gemodelleerd omdat de berekende transferfactoren geen rekening houden met metabolisatie en aftoetsing niet mogelijk is.

De invloed van bereiding op de gehalten in groenten werd eveneens besproken. Wassen leidt tot significante reducties in gehalten; voor wortelgewassen leidt het schillen eveneens tot zeer belangrijke reducties; deze zijn belangrijker voor de hoogmoleculaire PAK's. Ook de verdere bereiding reduceert de gehalten voor de hoger moleculaire PAK's. Grillen, roken, roosteren, bakken en frituren leidt evenwel tot een stijging van concentraties in levensmiddelen.

De blootstelling werd berekend voor kinderen en voor volwassenen apart, gebruik makend van gemiddelde en mediane concentraties in het milieu, evenals van percentielswaarden. Blootstellingsparameters werden bepaald op basis van informatie voor Vlaanderen en op basis van beste schattingen uit de literatuur. Blootstelling via voeding werd berekend aan de hand van 2 scenario's: 1) verondersteld verbruik van 25 % groenten uit de eigen moestuin, of 2) berekende blootstelling via analysedata voor voeding in de handel en beschikbare consumptiedata. De berekeningen op basis van analysedata voor voeding in de handel was alleen mogelijk voor parentale PAK's.

Bij de berekening van de overdracht naar groenten (bovengrondse gewassen) werd vastgesteld dat de voorspelde concentraties hoofdzakelijk bepaald worden door overdracht vanuit lucht (gasfase en depositie). Opname vanuit de wortel is niet belangrijk. Resuspensie van bodemdeeltjes (alleen meegeteld voor bladgewassen) maakte 10 – 50 % van de belasting uit. In gebieden met sterk verhoogde bodemconcentraties, kan het aandeel door resuspensie hoger zijn. Nitro-PAK's vormden hierop een uitzondering, de concentraties werden bijna volledig

bepaald door de overdracht vanuit lucht. De belasting van vee wordt nauwelijks beïnvloed door inademing, maar wel door het voeder en de bodem (maximaal 35 % bij de 50-percentielberekeningen). Inname van bodemdeeltjes werd niet gecorrigeerd voor beschikbaarheid en werd mogelijk overschat.

De berekende gemiddelde blootstelling aan PAK's varieert voor kinderen van 1 – 11 ng/kg.d voor de parentale PAK's (voeding niet meegenomen). De laagste blootstelling werd berekend voor dibenzo(a,h)antracene; de laagmoleculaire PAK's fenantreen en fluoranteen vertoonden de hoogste blootstelling. De berekende 50-percentiele blootstelling varieert voor kinderen van 0,1 – 3 ng/kg.d. Dit verschil is bijna volledig te wijten aan de grote spreiding op de bodemconcentraties, waarbij de mediane waarden aanzienlijk lager liggen dan de gemiddelden. De blootstelling aan nitro-PAK's varieerde van $9 \cdot 10^{-3}$ – $3 \cdot 10^{-2}$ ng/kg.d op basis van gemiddelden en van $4 \cdot 10^{-3}$ – $1 \cdot 10^{-2}$ ng/kg.d op basis van medianen. De berekende blootstelling aan benzantron bedraagt 0,3 ng/kg.d. Bij de parentale PAK's wordt de blootstelling gedomineerd door de inname van bodemdeeltjes (90 % op basis van gemiddelden; 30 – 60 % op basis van medianen). Bij de nitro-PAK's bedraagt de inname van bodem en stof 10 – 30 % op basis van gemiddelden; op basis van 50-percentielen domineert inademing volledig. De inname via bodemdeeltjes weegt zwaarder door indien gemeten luchtconcentraties gebruikt worden omdat deze lager waren dan de gemodelleerde luchtconcentraties. Het overige deel van de blootstelling wordt ingevuld door inademing. Indien ook het verbruik van groenten uit de moestuin meegenomen werd, dan werd vastgesteld dat deze weg voor de laagmoleculaire PAK's en de nitro-PAK's de helft tot het dubbele kan bedragen van de totale blootstelling via inhalatie en inname van bodem/stof. Bij de hoogmoleculaire PAK's is de bijdrage van voeding beperkt. Indien de totale blootstelling via voeding bijgeteld wordt (producten in de handel), dan is deze bijdrage gelijk (gemiddelden in milieu) tot volledig dominant aan (medianen in milieu) inhalatie en inname bodem/stof.

De berekende gemiddelde blootstelling aan PAK's varieert voor volwassenen van 0,1 – 6 ng/kg.d voor de parentale PAK's (voeding niet meegenomen). De laagste blootstelling werd berekend voor dibenzo(a,h)antracene; de laagmoleculaire PAK fenantreen vertoonde de hoogste blootstelling. De berekende 50-percentiele blootstelling varieert voor volwassenen van 0,01 – 1 ng/kg.d. Dit verschil is bijna volledig te wijten aan de grote spreiding op de bodemconcentraties, waarbij de mediane waarden aanzienlijk lager liggen dan de gemiddelden. De berekende blootstelling aan nitro-PAK's varieert van $3 \cdot 10^{-3}$ – $2 \cdot 10^{-2}$ ng/kg.d op basis van gemiddelden en van $2 \cdot 10^{-3}$ – $1,5 \cdot 10^{-1}$ (2-nitrofluoranteen) ng/kg.d op basis van medianen. De berekende blootstelling aan benzantron bedraagt $9 \cdot 10^{-2}$ ng/kg.d. Bij de parentale PAK's is de inname van bodemdeeltjes belangrijk op basis van gemiddelden (40 - 80 % van de totale blootstelling zonder voeding); op basis van medianen daalt dit naar 0,1 – 10 % (20 – 55 % voor gemeten luchtconcentraties). Bij de nitro-PAK's bedraagt de inname van bodem en stof 0,1 – 10 % op basis van gemiddelden; op basis van 50-percentielen domineert inademing volledig. De inname via bodemdeeltjes weegt zwaarder door indien gemeten luchtconcentraties gebruikt worden omdat deze lager waren dan de gemodelleerde luchtconcentraties. Het overige deel van de blootstelling wordt ingevuld door inademing. Indien ook het verbruik van groenten uit de moestuin meegenomen werd, dan werd vastgesteld dat deze weg voor de laagmoleculaire PAK's en de nitro-PAK's de helft tot het drievoud kan bedragen van de totale blootstelling via inhalatie en inname van bodem/stof. Bij de hoogmoleculaire PAK's is de bijdrage beperkt. Indien de totale blootstelling via voeding bijgeteld wordt (producten in de handel), dan is deze bijdrage gelijk (gemiddelden in milieu) tot volledig dominant aan (medianen in milieu) inhalatie en inname bodem/stof.

Detailevaluatie van de resultaten toonde het belang aan van het binnenmilieu in de blootstelling. Ondanks de niet hoger veronderstelde concentraties, levert het binnenmilieu (vooral inademing, maar ook stofinname) een significante bijdrage omwille van de langere tijdsduur binnenshuis dan buitenshuis. Ook de blootstelling in voertuigen verdient aandacht, maar dan vooral omwille van de hoger veronderstelde concentraties ten opzichte van het buitenmilieu.

Niet-milieugerelateerde¹ bronnen van PAK-blootstelling zijn:

- bereiding van voeding (zoals grillen, bakken, frituren);
- roken;
- kookactiviteiten, verwarming, branden van wierookstokjes,...

De invloed van bereiding op de gehalten van PAK's in levensmiddelen is moeilijk in te schatten. Enerzijds zijn er de effecten als gevolg van voorbehandeling van levensmiddelen vooraleer ze op de markt gebracht worden. De impact van roken van vlees en vis wordt bijvoorbeeld duidelijk weerspiegeld in de hogere gehalten. Anderzijds zijn er de bijkomende effecten van bakken, frituren en grillen bij de verdere bereiding. De invloed hiervan op de gehalten en bijgevolg de blootstelling kon niet ingeschat worden wegens het ontbreken van gegevens.

Uit de literatuur is informatie beschikbaar over de verschillen tussen rokers- en niet-rokerswoningen met betrekking tot de gehalten in binnenlucht. De studies zijn evenwel beperkt en niet volledig consistent wat betreft de waargenomen patronen. Ruwweg werd een verhoging met 0,15 ng/m³ (of ongeveer factor 3) vastgesteld bij rokerswoningen ten opzichte van niet-rokerswoningen. Ook kookactiviteiten hebben invloed op de gehalten in de woning; er is evenwel minder informatie om een schatting te maken van de impact op het binnenmilieu; de impact is waarschijnlijk beperkter omwille van de kortere duur van emissie in vergelijking met roken. Voor huisstof is het nauwelijks mogelijk om schattingen te maken van het effect van binnenhuisbronnen op de gehalten. Een vergelijking van een literatuuroverzicht van binnenhuisstofniveaus met de gemeten bodemgehalten uit de OVAM-databank geeft ongeveer een factor 4 aanrijking in huisstof. Indien evenwel afzonderlijke studies genomen worden, dan liggen de verschillen in het bereik 1 – 100.

Om het effect van de binnenhuisbronnen op de blootstelling in te schatten, werd een ruwe berekening gedaan, waarbij de gehalten in binnenlucht met een factor 3 vermenigvuldigd werden en de gehalten in huisstof met een factor 4 vermenigvuldigd werden. Zonder rekening te houden met de bijdrage via voeding, leverde dit een stijging in blootstelling op met ongeveer een factor 2. Voor nitro-PAK's werden dezelfde veronderstellingen genomen, maar ontbreekt informatie om deze veronderstellingen te onderbouwen. Tevens werd voor de parentale PAK's vastgesteld dat de schattingen zeer onzeker en zeer variabel zijn.

De berekende blootstelling voor Vlaanderen werd vergeleken met de schattingen van totale blootstelling in het buitenland. De resultaten voor Vlaanderen liggen in de lijn van de resultaten uit het buitenland. Vergelijking is evenwel moeilijk, omdat het aantal studies dat naar totale blootstelling kijkt beperkt is. Ook werken de problemen met meetbaarheid van de

¹ In dit project wordt hieronder verstaan: de bronnen van PAK's die hun oorsprong niet vinden in het buitenmilieu.

PAK's in lucht en voeding, evenals de verschillen in methodieken door op het resultaat van de blootstellingsbepalingen.

Hoewel het mogelijk was om voor Vlaanderen een schatting te maken van de blootstelling aan PAK's via het milieu, blijven nog heel wat leemten en onzekerheden over en moeten de resultaten met omzichtigheid geïnterpreteerd worden. Het belangrijkste knelpunt is het ontbreken van data met betrekking tot gedrag en voorkomen van afgeleide PAK's. De schattingen voor de afgeleide PAK's zijn dus zeer onzeker.

Tevens ontbreekt voor Vlaanderen informatie over de niveaus van PAK's in het binnenmilieu en de relatie met het buitenmilieu en binnenhuisbronnen. De schattingen werden uitgevoerd op basis van literatuurdata, maar zijn vooral voor huisstof zeer onzeker.

Hoewel de uitgangsdia perspectief boden naar het berekenen van een geografisch gedifferentieerde blootstelling, werd dit niet doorgevoerd omwille van de verwachte scheefheid van de bodemconcentraties richting hoge gehalten. Een gedegen verwerking van de bodemconcentraties zou kunnen toelaten toch geografisch gedifferentieerde blootstelling te berekenen.

Het rapport sluit af met een overzicht van de leemten in de kennis en de pistes voor mogelijk vervolgonderzoek voor het geheel van het project.