

SAMENVATTING

Het huidige rapport bestudeert het verband tussen gebiedsdekkende gemodelleerde atmosferische milieudata en biomonitoringsdata. Er werd uitgegaan van: (i) Individuele blootstellings- of effectmerkers (biomerkers) gemeten bij 14-15 jarige jongeren die gerekruteerd werden tijdens de Vlaamse humane biomonitoringscampagne van september 2002 tot juli 2003. De jongeren werden gerekruteerd in acht regio's verspreid over Vlaanderen. (ii) Emissiedrukken (per 500x500 m roosterveld) of pollutentconcentraties (per 4x4 km roosterveld) van luchtpolluenten gemodelleerd met het AURORA luchtkwaliteitsmodel, dat gebruikt maakt van emissies, meteogegevens, chemische omzettingen en landgebruikdata (= pollutentconcentraties geaggregeerd per roosterveld). (iii) Daarnaast werden individuele gegevens over voedingsgewoonten, binnenhuismilieu, de woon- en schoolomgeving, geslacht, rookgedrag,...verzameld tijdens de biomonitoringscampagne.

De belangrijkste doelstelling van het project was het **linken** van de individuele biomerkermetingen met de op het roosterveld geaggregeerde luchtkwaliteitsgegevens (rekening houdend met de individuele persoonlijke invloedsparameters).

De onderzochte relaties worden verder besproken. Door berekening van de associaties tussen de luchtkwaliteit en biomonitoringsgegevens werd nagegaan in welke mate de variabiliteit van de biomerkers door regionale emissiedrukken of atmosferische concentraties verklaard konden worden. Ook werden associaties berekend tussen de waargenomen concentraties van de VMM-meetposten en de gemeten biomerkers

Hierna wordt kort ingegaan op de opeenvolgende taken uitgevoerd tijdens het project.

Berekening van emissiedrukken en modellering van concentraties

De emissiedrukken werden berekend op basis van gekende emissies van de Vlaamse Emissieinventaris Lucht en de Europese EMEP database (Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-range Transmission of Air Pollutants in Europe). De concentraties van de pollutenten werden gemodelleerd met het AURORA (Air quality modelling in Urban Regions using Optimal Resolution Approach) luchtkwaliteitsmodel.

Het AURORA-model werd gebruikt voor modellering van geheel Vlaanderen voor het hele jaar 2002, de tweede helft van 2003 en de eerste helft van 2004. Het AURORA-model bestaat uit 2 componenten: een regionale component met variabele resolutie en een straatmodule voor stedelijke omgevingen, in deze studie werd enkel de regionale component gebruikt. Voor de start van het project werd het model enkel gebruikt voor modelering over periodes van enkele weken. Daarom was het noodzakelijk het gebruik van het model te automatiseren. Om de rekentijd te reduceren werd het model ook aangepast voor een migratie van een Windows omgeving naar een Linux computeromgeving. Hierdoor kon 50% sneller doorgerekend worden. Het AURORA-model berekent concentratievelden op 12,5 meter boven het aardoppervlak voor elk uur van de simulatieperiode op een resolutie van 4 km.

Kort samengevat kunnen de resultaten van emissiedrukberekening en concentratieberekening als volgt weergegeven worden:

Stof	Voornaamste (in rekening gebrachte) emissiebron	Regio's met hoogste berekende emissiedrukken of gemodelleerde concentraties
NO _x	wegverkeer	Belangrijkste verkeersassen + klassieke elektriciteitscentrales (Kluisbergen, Ruien, Genk, Zwijndrecht)
NO ₂	wegverkeer	Wegen en stedelijke gebieden
Benzeen	Wegverkeer (Indicator van niet-methaan vluchtige stoffen)	Belangrijkste verkeersassen + stedelijke gebieden
VOS _{tot}	Wegverkeer + chemische industrie (secundaire vorming)	Antwerpse haven Landelijke gebieden
Ozon		
Primair PM ₁₀ ,	verkeer	Gentse kanaalzone + Antwerpse haven, W-Vlaanderen, fruitstreek (voor primaire conc's)
PM _{2.5}		
Cd	basismetalaalindustrie	Gentse kanaalzone, havengebied Antwerpen, Hoboken, Beerse, Albertkanaalzone
Pb	basismetalaalindustrie	Gentse kanaalzone
B(a)P	Beperkte emissiegegevens, ontstaan bij verbrandingsprocessen	

Vergelijking van gemodelleerde waarden met gemeten luchtkwaliteitsgegevens

We evalueerden de berekende concentratievelden door vergelijking met meetwaarden van de Vlaamse Milieumaatschappij (VMM). Meetwaarden hebben het voordeel een continue tijdsreeks aan data op te leveren.

Modellen leveren gebiedsdekkende data, maar niet alle emissies zijn gekend (diffuse emissies, ongekende bronnen) of in rekening gebracht (historische emissies). De karakterisatie van de emissies is met grote onzekerheden verbonden voor pollutanten met lange atmosferische residentietijden (fijn stof, benzeen, benzo-a-pyreen, ...). Voor deze stoffen is de kennis van de emissies uit de omliggende regio's bepalend voor een goede simulatie (vb. geïndustrialiseerde regio's Noord-Frankrijk, Maas-Samber vallei, Ruhrgebied). Om dit probleem te verminderen bij de cadmium, lood en benzo-a-pyreenberekeningen werd een tool ontwikkeld om de 50-km resolutie basis emissiegegevens van de buurlanden met behulp van CORINE landgebruiksgegevens te brengen op de resolutie van het model, tzt. 4 km. Dit heeft een aanzienlijke verbetering teweeggebracht. Nadeel van deze aanpak is wel dat om discontinuïteitsproblemen te vermijden aan de randen van Vlaanderen, de emissies in Vlaanderen van Cd, Pb en B(a)P ook op deze manier zijn berekend en dat geen gebruik is gemaakt van de EIL-emissiegegevens waardoor er een fout kan ontstaan in de exacte locatie van de emissies. Dit bemoeilijkt de vergelijking van de berekende concentraties met meetwaarden omdat deel van de meetstations specifiek werden gelokaliseerd om industriële hotspots te monitoren.

Voor de vergelijking tussen model en meetwaarden is voor elk meetstation voor de periode 2003-2004 de afwijking en correlatiecoëfficiënt tussen de gemeten en de voor de roostercel gemodelleerde uurlijkse tijdsreeks berekend. De resolutie van modellering op 4x4 km roostercellen legt beperkingen op. Hele sterke lokale gradiënten in de buurt van industriële hotspots en belangrijke verkeersaders worden niet berekend maar zijn wel "zichtbaar" in de concentratievelden. Ondanks dit konden we concluderen dat: Het AURORA-model in staat is variaties in tijd en ruimte over geheel Vlaanderen redelijk goed voor te stellen.

Indien een ranking wordt opgesteld welke gemodelleerde concentraties het best in overeenstemming waren met de meetstationgegevens, dan is dit met enig voorbehoud als volgt (van goed naar minder goed):

ozon ~NO₂ ~ benzeen > benzo(a)pyreen ~ lood ~ cadmium

Relatie luchtkwaliteitsgegevens vs. biomerkmelingen

Na toepassing van het model zijn specifieke post-processing tools ontwikkeld voor de berekening van persoonsgebonden gemiddelde concentraties. Hierbij hielden we rekening met de thuis –en schoollocaties en een tijdsverdeling tussen beide. De uitmiddelingperiode van de concentraties was pollutantafhankelijk, gaande van 2 dagen voor benzeen tot een één jaar voor astmasymptomen.

Uit de berekeningen bleek, dat de jaargemiddelde berekende NO₂- en ozon –concentraties voor alle jongeren in de buurt lagen van de EU-grenswaarde van 40 µg/m³. De berekende concentraties aan benzeen, lood en cadmium waren duidelijk lager dan de EU-grenswaarden. Het berekende jaargemiddelde van primair PM₁₀ (gemiddeld 13.8 µg/m³ voor alle jongeren) lag in de buurt van de jaargemiddelde grenswaarde van 20 µg/m³ voor totaal PM₁₀.

Onderstaande tabel geeft een schematisch overzicht van de relaties die onderzocht werden (aangeduid met een kruisje) en relaties die significant waren (aangeduid in het geel), indien alle invloedsfactoren in rekening werden gebracht. In principe werden twee reeksen van correlatieberekeningen uitgevoerd. (i) Deze waarbij één pollutant gelinkt werd met de meting van deze stof (of een metaboliet ervan) in het bloed of urine. (ii) En anderzijds verschillende pollutanten die gelinkt werden met een ‘integreerde’ blootstellings- of effectbiomarker.

	(a) biomerkers gerelateerd met 1 bepaalde pollutant							(b) biomerkers gerelateerd met meerdere pollutanten				
	Pb in bloed	Cd in bloed	Cd in urine	1-OH pyreen in urine	1,7-mucon zuur in urine	Benzeen dosimeter	% DNA-schade	Huidig astma	Doctor diagnosed astma	Doit astma symptomen	Luchtweg-infecties	
Concentraties 4x4 km												
Benzeen					X	X	X	X	X	X	X	
NO ₂							X	X	X	X	X	
PM _{2.5,prim}							X	X	X	X	X	
PM _{10,prim}							X	X	X	X	X	
Cd		X	X				X	X	X	X	X	
Pb	X							X	X	X	X	
B(a)P				X			X	X	X	X	X	
Ozon							X	X	X	X	X	
Emissies 500x500m												
Benzeen								X	X	X	X	
NO ₂								X	X	X	X	
PM _{2.5}								X	X	X	X	
PM ₁₀								X	X	X	X	
Cd								X	X	X	X	
Pb								X	X	X	X	
B(a)P								X	X	X	X	
CO								X	X	X	X	
SO ₂								X	X	X	X	
NH ₃								X	X	X	X	
VOC _{tot}								X	X	X	X	
VMM-meetstation concentratie												
Ozon							X					
Cd		X	X				X					
Pb	X											

(i) Gemiddelde concentraties van één stof vs. metingen van de stof in bloed/urine

Metalen gemeten in bloed of urine

Lood in bloed was zwak gecorreleerd met gemiddelde loodconcentraties voor de periode van 30 dagen voorafgaand aan het bloedonderzoek ($r^2=0.004$, $\beta=0.1\%$ bij toename van Pb

met 1 ng/m^3 , $p=0.01$). Het geslacht van de jongeren was de sterkst bepalende factor ($r^2=0.056$, $p<0.001$) voor de bloedloodconcentratie (jongens gemiddeld 34.5% hogere waarden dan meisjes). Wilhelm et al. (2005) rapporteerde eveneens een associatie tussen Pb-gehalten in de lucht (berekening met Lagrange dispersiemodel dat gebruik maakt van luchtkwaliteitsmetingen) en bloed-Pb-gehalten bij 238 Duitse kinderen tussen 5.5 en 7.7 jaar oud.

Cd in urine van de 1387 niet-rokende 14-15 jarige jongeren bedroeg gemiddeld $20 \mu\text{g/g}$ creatinine. Voor elk van deze jongeren werd een jaargemiddelde Cd-concentratie berekend voor een combinatie van gemodelleerde concentraties in de roostercellen van hun woonplaats en hun school. Deze bedroeg gemiddeld 0.37 ng/m^3 . Er werd een positieve associatie vastgesteld tussen deze gemodelleerde jaargemiddelde cadmiumconcentratie en cadmium in de urine ($r^2=0.017$, $\beta=27.9 \%$ bij toename van Cd met 1 ng/m^3 , $p<0.001$). Deze relatie werd berekend via een multivariate regressie, waarin ook BMI en leeftijd van de jongeren, consumptie van groenten die Cd kunnen bevatten, het ferritinegehalte in het bloed en de opleiding van de ouders, significante invloedsfactoren waren voor het gehalte Cd in de urine. Cd in het bloed was echter niet geassocieerd met gemodelleerde cadmiumconcentraties gemiddeld over 75 dagen voorafgaand aan het bloedonderzoek van de jongeren.

Korte termijn urinaire merkers van benzeen- en PAK-blootstelling

Noch 1-OH pyreen (metaboliet van pyreen) , noch tt'-muconzuur (metaboliet van benzeen) correleerde met 7-dagen of 2-dagen gemiddelde gemodelleerde concentraties van respectievelijk B(a)P of benzeen. Polluentconcentraties gemodelleerd over 2 dagen zijn uiteraard minder betrouwbaar dan maand- of jaargemiddelde concentraties. Dat er geen correlatie werd gevonden tussen de **PAK's-metaboliet** en de luchtconcentratie aan PAK's, zou echter vooral kunnen te maken hebben met het feit dat PAK's-blootstelling voornamelijk via andere wegen dan de lucht gaat (Cornelis et al., 2006), of dat pyreen (dat in het lichaam afgebroken wordt tot 1-OH pyreen, wat hier gemeten werd) en B(a)P (wat gemodelleerd werd) niet steeds in dezelfde verhouding in het PAK's mengsel voorkomen. Daarenboven zijn er niet voldoende gerapporteerde emissies voor PAK's, waarop uiteindelijk de modellering van B(a)P gebaseerd wordt.

Benzeen, is één van de stoffen die het best gemodelleerd wordt, gezien de emissies goed gekend zijn. Hier zou het voor de hand liggen te besluiten, dat door modellering met een resolutie van $4 \times 4 \text{ km}$, niet alle ruimtelijke nuances in benzeen-pieken 'gecovered' kunnen worden. Echter bij 161 van de 1387 niet-rokende jongeren werd benzeen ook gemeten op de persoonlijke dosimeter. De gemodelleerde benzeenconcentratie was sterk gecorreleerd met (indoor + outdoor) benzeen dosimetrie ($r^2=0.14$, $\beta=76.3 \%$ bij toename van benzeen met $1 \mu\text{g/m}^3$, $p<0.001$). tt'-muconzuur was niet gecorreleerd met de dosimeterwaarden, wat zou kunnen wijzen op het feit dat een spot urinaire meting (en niet 24-uur collectie van urine) van de metaboliet misschien te veel momentane (uurlijkse) pieken of dalen in persoonlijke blootstelling weergeeft en niet voldoende accumulerend is om iets te vertellen over (de misschien relevantere) blootstelling tijdens meerdere dagen.

(ii) Gemodelleerde concentraties van verschillende luchtpolluenten vs. Geïntegreerde blootstelling of effectmetingen bij de jongeren

Eén van de belangrijkste problemen bij het nagaan van gezondheidseffecten t.g.v. luchtpolluenten, is het vinden van een goede luchtkwaliteitsparameter (Ihortst et al., 2004).

Luchtpolluenten als NO₂, SO₂, partikels (PM_{2.5}, PM₁₀), benzeen,...komen vaak samen voor. In het huidige rapport werd geopteerd om voornamelijk de invloed van de afzonderlijke polluenten te bekijken in 'single pollutant modellen'. Hierbij wordt elke pollutant afzonderlijk, samen met verschillende invloedsfactoren, gerelateerd aan de 'integrerende' blootstelling- of effectmarker. De gemodelleerde polluenten waren immers vaak sterk gecorreleerd met elkaar, wat ervoor zorgt dat als ze samen in het model gestopt worden, ze elkaar 'opheffen'. Er dient bijkomend opgemerkt dat de gemodelleerde polluenten misschien niet (alleen) de oorzaak kunnen zijn van de gemeten 'schade' maar dat zij eventueel een proxy zijn voor andere stoffen of stressoren in het luchtmengsel.

Korte termijn DNA schade gemeten in het bloed

De komeettest geeft korte termijn verlies aan DNA-integriteit veroorzaakt door natuurlijke processen van DNA-schade en -herstel, of door exogene factoren als ziekte, tabak, stress, polluenten. In die zin kan de komeettest gezien worden als een geïntegreerde blootstellingsmarker, m.a.w. een 'milieudrukparameter' voor blootstelling aan polluenten. Gezien de polluenten sterk correleerden, werd beslist ze eerst één voor één in het statistisch model te brengen ('single pollutant' model) samen met de invloedsfactoren (geslacht en opleidingsniveau van ouders).

Zowel **benzeen** ($r^2 = 0.06$, $p < 0.001$), **benzo(a)pyreen** ($r^2 = 0.09$, $p < 0.001$), **PM₁₀_prim** ($r^2 = 0.04$, $p < 0.001$), en **PM_{2.5}_prim** ($r^2 = 0.06$, $p < 0.001$) waren positief geassocieerd met het %DNA-schade gemeten met de komeettest. Dit betekent dat de komeettest bij de 390 niet-rokende jongeren een beeld gaf van de milieudruk van verschillende polluenten.

Ozon was negatief geassocieerd met de komeettest resultaten ($r^2 = 0.05$, $p < 0.001$), wat in principe logisch lijkt, gezien de parameters als benzeen, benzo(a)pyreen en partikels sterk negatief geassocieerd waren met ozon. Het is echter in tegenstelling met eerdere bevindingen, waarbij de komeettestresultaten van 200 Vlaamse jongeren positief geassocieerd waren met ozonwaarden gemeten in het dichtstbijzijnde meetstation (Koppen et al., 2007). Tovalin et al. (2006) stelde ook een positieve relatie vast tussen DNA-schade (gemeten met komeettest bij outdoor werkers) en PM_{2.5}- en ozon- blootstelling in Mexico city. Mogelijks zijn deze tegenstrijdige resultaten te wijten aan verschillen in ozonniveaus, lokale geografische en/of seizoensvariaties in polluentenmengselsamenstelling geassocieerd met het voorkomen van ozon (bv. van sterkere 'effectors' dan ozon in het mengsel).

Correlatie van gemodelleerde jaarconcentraties en/of jaaremissiedrukken en luchtwegklachten bij Jongeren

De gemodelleerde concentraties en de emissiedrukken van de meeste luchtpolluenten werden gerelateerd aan luchtwegklachten (astma vastgesteld door de arts, ooit astmaklachten en luchtweginfecties). Daarvoor werden jaargemiddelden van deze stoffen berekend. In principe zou het interessant zijn om lange termijn gemiddelden van bv 5 jaar te linken met astma (Schikowski et al., 2005), gezien het stabielere pollutentconcentraties kan geven. De relaties werden enkel onderzocht bij niet-rokende jongeren.

De correlatie tussen jaargemiddelde concentraties van NO₂, O₃, primair PM_{2.5} en 10, Cd, Pb, B(a)P, benzeen en luchtwegklachten (huidig astma, doctor diagnosed astma, ooit astmasymptomen en luchtweginfecties) werd nagegaan via enkelvoudige logistische regressie.

Rekening houdend met familiaal astma, ernstige luchtweginfectie gedurende eerste twee levensjaren van de adolescent, en opleidingsniveau van de ouders werd er een positief hoog significant verband ($p < 0.001$) voor **'ooit astmasymptomen' en doctor diagnosed astma** met de **gemodelleerde jaarconcentraties van benzeen en NO₂**. Bij een toename van blootstelling aan benzeen met 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ was de odds ('kans') op het optreden van astmasymptomen ca. 4 maal hoger OR = 4.34 (95% CI=1.74-10.8). Bij een toename van NO₂ concentratie met 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ nam de odds op het voorkomen van astmasymptomen toe met iets meer dan één derde (OR= 1.39 (1.17-1.64)). Analoog werd het verband tussen luchtwegklachten en berekende emissiedrukken² van benzeen, NO_x, NH₃, B(a)P, SO₂, CO, PM₁₀ en PM_{2,5} berekend. Opnieuw waren **benzeen-** en **No_x-emissiedrukken** gerelateerd met **'ooit astmasymptomen'**, zij het iets minder significant dan bij gebruik van gemodelleerde benzeenconcentraties (OR's van resp. 3.2 (1.30-7.89) en 1.006 (1.002- 1.01) per $\text{g}/\text{m}^2/\text{j}$ toename in emissiedruk).

Een relatie tussen fijn stof en astmasymptomen werd niet gevonden. Dit zou kunnen te maken hebben met een aanname van een te grote berekende bijdrage van stof vanuit de landbouw. Er is ook enkel primair stof gemodelleerd, waarvan niet gekend is of dat de meest toxische component is van het secundair stof aanwezig in de lucht.

De relatie tussen luchtwegklachten en benzeen werd eerder gerapporteerd. Hirsch et al. (1999) vond een toename van prevalentie van ochtend-hoesten en bronchitis bij hogere blootstelling aan benzeen, (resp. OR= 1.15 (1.04-1.27) en 1.11 (1.03-1.19), bij toename van benzeen met 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$). Dit werd onderzocht bij een groep van 5421 Duitse kinderen (< 11 jaar) uit de stad Dresden. Dezelfde vaststelling werd gedaan voor NO₂ en CO. Nicolai et al. (2003) rapporteerde dat 'huidig astma' geassocieerd werd met (door een verkeersmodel) berekende roet- en benzeenwaarden (OR=2.05 (1.23-3.41), bij vergelijking van het hoogste tertiel blootgestelden vs. de anderen). Kortetermijn (acute) ozonblootstelling wordt soms geassocieerd met verhogingen van astma-opnames of astma-aanvallen (Koren, 1995; Burnett et al., 2001). Een metaanalyse uitgevoerd door Anderson et al. (2004) gebaseerd op (slechts) drie studies naar respiratoire ziekenhuisadmissies van 0-14j, 15-64j en >64j groepen, tonen een niet significant verband met ozon (Anderson et al., 2004). In de huidige studie werd een negatief verband gevonden tussen jaargemiddelde ozonconcentraties en 'ooit astmasymptomen'. Ook Hirsch et al. (1999) rapporteerde een negatief verband tussen jaargemiddelde ozonwaarden en ochtendlijk hoesten (OR= 0.80 (0.65-0.98)) en bronchitis (OR=0.83 (0.73-0.96)) bij kinderen (telkens voor toename van ozon met 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$).

Besluit

Vlaamse jongeren zijn in hun leefomgeving aan relatief hoge jaargemiddelde concentraties van NO₂, ozon en fijn stof blootgesteld (in buurt van EU grenswaarden). Via het linken met biomerkmetingen van de Humane biomonitoringscampagne (2002-2006) kon een associatie aangetoond worden tussen de luchtpolluenten en het optreden van herstelbare DNA schade (milieudrukparameter) en astmasymptomen bij 14-15 jarige jongeren.