

RIJKSINSTITUUT VOOR VOLKSGEZONDHEID EN MILIEUHYGIENE
BILTHOVEN

Rapport nr. 730501025

Evaluatie van de relaties van dioxine-
emissiemetingen aan de AVI-Zaanstad met
gehalten in grond en melk in de omgeving

F. Langeweg, R. van den Berg, W. Slob,
A.P.J.M. de Jong, H.J.G.M. Derks,
J.A. van Jaarsveld en A.J.C.M. Matthijsen

december 1990

Dit onderzoek werd verricht in opdracht en ten laste van de Hoofdinspectie
Milieuhygiëne, in het kader van het project Persistente Stoffen

VERZENDLIJST

1-25	Regionaal Inspecteur van de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne in Noord-Holland
26	Directie RIVM
27	Dr. R.M. van Aalst
28	Dr.Ir. C. van de Akker
29	Dr. F.J.J. Brinkmann
30	Drs. A. van der Giessen
31	Dr. H.A. van 't Klooster
32	Drs. A.A. Sein
33-39	Auteurs
40-49	Projectgroep Dioxine-onderzoek RIVM
50	Bureau Projecten en Rapportenregistratie
51-75	Reserve-exemplaren

INHOUDSOPGAVE

	<u>Blz.</u>
Verzendlijst	ii
Inhoudsopgave	iii
Abstract	iv
Samenvatting	1
1. Inleiding	2
2. Gehalten in de grond in relatie tot de emissie van AVI-Zaanstad	3
3. Gehalten in melk in relatie tot de emissie van AVI-Zaanstad	6
4. Conclusies	10
Literatuur	11

ABSTRACT

Since April 20 1990, the municipal solid waste incinerator (MSWI) AVI-Zaanstad in the Netherlands is closed down. One of the reasons for the closing down were high emission rates of dioxins resulting in increased dioxin levels in cow's milk from dairing farms in the vicinity. Since the emission measurement consisted of six observations on three consecutive days, estimates of the yearly emission are accompanied with a great uncertainty interval. The increased dioxin levels in cow-milk indicate that deposition was on average significantly above the background deposition. Dioxin levels in soil in the vicinity of the MSWI were significantly higher than the background level. From the emission measurement a yearly emission of 178 g TEQ was calculated with a great uncertainty, caused by the wide range of individual measurements. From concentrations in the soil it is estimated that the emission of the MSWI, during life time, must have been 290 g TEQ per year on average. The operation of the installation and technical problems in the process that occurred in the past make such high emissions feasible.

Dioxin levels in fat of sheep (milk and beef) residing in the same area can be higher up to a factor 2-2.5. Results from a current study on the kinetics of dioxins in sheep should provide evidence for the assumption that dioxin levels in sheep can be higher than in cows.

SAMENVATTING

Sinds 20 april 1990 is de afvalverbrandingsinstallatie AVI-Zaanstad buiten gebruik. De sluiting van de installatie was onder andere het gevolg van een waargenomen sterke overschrijding van de norm voor uitstoot van dioxinen in rookgassen. De emissiemeting bestaat uit zes waarnemingen op drie opeenvolgende dagen en geeft mogelijkwerwijs geen representatief beeld van de jaargemiddelde uitstoot van de installatie. Sterk verhoogde dioxinegehalten in melk geven aan dat de depositie in het gebied relatief hoog was. Hoge gehalten in de bovenlaag van de bodem in het depositiegebied van de installatie bevestigen dit. Uit de emissiemeting kan een jaarlijkse emissie van 178 g TEQ per jaar worden afgeleid, met een grote onzekerheid gezien de aanzienlijke spreiding in de individuele meetgegevens. Op grond van de gehalten in de grond wordt geschat dat de AVI gedurende haar levensduur gemiddeld 290 g TEQ per jaar moet hebben geëmitteerd. De bedrijfsvoering en de in het verleden geconstateerde bedrijfsomstandigheden sluiten een dergelijke hogere emissie niet uit. Gehalten in het vet (melk en vlees) van schapen die op dezelfde gronden grazen kunnen naar schatting een factor 2-2,5 hoger zijn dan in koemelkvet. Lopend onderzoek naar het kinetisch gedrag en gehalten in het schaap moet hieromtrent nog nader uitsluitsel geven.

1. INLEIDING

In de jaren 1989 en 1990 is het nodige onderzoek verricht naar de emissie van dioxinen van de AVI-Zaanstad en de verspreiding ervan in de omgeving. Te hoge dioxinegehalten in koemelk in de omgeving van de AVI waren aanleiding een onderzoek te verrichten naar de emissie van de installatie. Deze meting werd uitgevoerd in maart 1990 en bedroeg 178 g TEQ per jaar, met een grote onzekerheid gezien de aanzienlijke spreiding in de individuele meetgegevens (Matthijssen et al., 1990).

In het gebied waar het depositiemaximum werd verwacht is grondonderzoek uitgevoerd. Op grond hiervan moet, gezien de slechte afbreekbaarheid van dioxinen in de grond, worden aangenomen dat de emissies in het verleden weliswaar hoger geweest zijn dan 178 g TEQ per jaar (De Jong et al., 1990a), maar nog wel binnen de daarbij genoemde onzekerheidsmarge vallen. De emissiehistorie van de installatie kan uit de ons beschikbare gegevens niet worden afgeleid. Bovendien is het benodigde inzicht in de emissiebepalende factoren bij AVI's nog onvoldoende. De gegevens van de grond kunnen worden gebruikt om een gemiddeld beeld van de emissiehistorie te schatten. De gehalten in melk waren reeds eerder aanleiding om voor een specifiek gebied landbouwkundige maatregelen in te stellen. Dit gebied omvat een deel van Oostzaan en Westzaan. Op basis van de toen beschikbare gegevens werd verwacht dat in dit gebied de voorlopige norm voor koemelk, gesteld in het kader van de Warenwet, zou worden overschreden. Sinds maart 1990 is bij een zevental melkveehouderijen in het gebied het dioxinegehalte in de melk maandelijks geanalyseerd. Op 20 april werd de AVI-Zaandam gesloten. Als gevolg hiervan werd na dit tijdstip het vee alleen nog belast door een achtergronddepositie vanuit de lucht en via de opname van grond. Sinds de sluiting zijn de gehalten in de melk aanmerkelijk afgenomen. Sinds juli liggen de gehalten in de melk van de bemonsterde bedrijven beneden de voorlopige norm van 6 pg TEQ per gram melkvet (Kootstra et al., 1990). In dit rapport wordt een samenvatting gegeven van de beschikbare gegevens en een schatting van de uiteindelijke melkconcentraties na de sluiting van de AVI. Het gaat hierbij om het huidige landbouwkundig en stedelijk gebruik. Daarnaast wordt de emissiehistorie afgeleid uit de gehalten in de grond.

2. GEHALTEN IN DE GROND IN RELATIE TOT DE EMISSIE VAN AVI-ZAANSTAD

Dioxinen zijn in hoge mate stabiel en immobiel in de bodem, zodat gehalten van dioxinen in grond een afspiegeling vormen van eerdere deposities. De opname van dioxinen door de koe verloopt zowel door gras als door grond. Zelfs na het stoppen van de emissies zal dit tot een merkbaar effect op het gehalte in de melk kunnen leiden.

Dioxinegehalten in grond in het depositiegebied (tabel 1.) zijn sterk verhoogd ten opzichte van de achtergrond (De Jong et al., 1990a).

Tabel 1. Dioxineconcentraties in grond van vijf weilanden in de omgeving van AVI-Zaanstad en een berekening van de depositie uit de grondconcentraties.

Lokatie ¹⁾	Ligging t.o.v. AVI ²⁾ (m)	Diepte (cm-mv)			Berekende depositie ₂ ($\mu\text{g TEQ/m}^2$)
		0-2 (ng TEQ/kg grond)	2-10 (ng TEQ/kg grond)	10-50 (ng TEQ/kg grond)	
Za-A	2000 NO	252	46	-	3,9
Za-B	700 N	60	44	-	4,2
Za-C	1100 N	207	45	5	4,6
Za-D	400 NO	82	35	2	3,1
Za-E	350 W	13	12	-	1,5

1) Code als gehanteerd bij het monitorprogramma dioxine in koemelk (Kootstra et al., 1990).

2) De ligging heeft betrekking op de plaats van monsternamen van de grond.
- Niet bemonsterd.

In één weiland werd een toplaaggehalte van 13 ng/kg gevonden, maar dit weiland was in 1989 bewerkt. In de toplaag van 0-2 cm van vier weilanden zijn gehalten gevonden tussen 60-252 ng/kg droge grond. In de laag van 2-10 cm zijn de gehalten niet alleen lager maar ook meer uniform verdeeld over het gebied. Beneden een diepte van 10 cm worden dioxinen niet of nauwelijks aangetroffen. De gemeten gehalten zijn aanzienlijk hoger dan het landelijk achtergrondgehalte van minder dan 10 ng TEQ per kg droge stof. Ook de conceptgrenswaarde voor grond in veeteeltgebieden, van 10 ng per kg droge grond, wordt ruimschoots overschreden.

Het gehalte aan dioxinen in grond is uitgedrukt op volumebasis (De Jong et al., 1990a), het is de grootte waarop de berekening van de geaccumuleerde hoeveelheden in de bodem is gebaseerd en waarmee de totale deposities gedurende de levensduur van de installatie (zie tabel 2.) geschat zijn.

Hierbij is aangenomen dat de afbraak in de bodem, vervluchtiging en verwijdering door begrazing verwaarloosbaar zijn. Bij vergelijking van de concentraties van de diverse dioxinen- en furanencongeneren blijkt dat in grond, in vergelijking met vliegias, meer dioxinen dan furanen worden teruggevonden. Er kan geen correlatie worden aangetoond tussen deze verhoudingen en de toxiciteitsfactor. Het is daarom onwaarschijnlijk dat de TEQ in grond hoger is dan in vliegias, louter door een verandering van het congeneerpatroon.

De grond- en melkmetingen bij Zaandam en bij depositiegebieden rond andere AVI's gaven aanleiding tot aanpassing van het depositiemodel (OPS-model). Zowel de maximale concentraties van dioxinen in melk als in de bodem bleken op kortere afstand van de bron voor te komen dan volgens het OPS-model verwacht werd. De plaats blijkt vooral afhankelijk te zijn van de verticale dispersieparameter met de bijbehorende stabiliteitsklassificatie (Kretzschmar en Mertens, 1984). Onderschatting van de verticale dispersie leidt bij hoge bronnen ertoe dat de rookpluim op grotere afstand de bodem bereikt, waardoor ook de maximale concentratie (en droge depositie) op grotere afstand optreedt. Tevens ontstaan lagere waarden in dit maximum. In het oorspronkelijke OPS-model werd de stabiliteitsklassificatie met de daarbij behorende verticale dispersiecoëfficiënten gehanteerd zoals die ook in het zogenaamde "Nationale model" (Kleine Commissie Modellen, 1976) wordt gebruikt. Het vermoeden van te lage verticale dispersie blijkt te worden bevestigd door voorlopige resultaten van een toetsing van het OPS-model aan een uitgebreide set van metingen rondom een 187 m hoge schoorsteen van een kolencentrale in Illinois (VS) de z.g. Epri-Kincaid dataset (EPRI, 1983). Hoewel deze toetsing nog niet is afgerond kan wel reeds gesteld worden dat met de huidige aanpassing een goed vergelijkingsresultaat werd behaald. Voor twee afzonderlijke perioden van ca. 3 weken bleek het model meer dan 90% van de metingen in lucht binnen een factor twee te kunnen voorspellen. Gebruikmakend van het aldus aangepaste OPS-model kan de depositie berekend worden op basis van de gemeten emissie. Hierbij is uitgegaan van een emissiehistorie van 14 jaar, de periode waarin de AVI in bedrijf is geweest. Om tot overeenstemming tussen de gemeten en berekende gehalten in de grond te komen (tabel 2.) moeten emissies in het verleden gemiddeld ca. 290 g TEQ per jaar hebben bedragen. Gegevens over de bedrijfsvoering van

deze installatie, zoals storingen in de werking van het elektrofilter, sluiten dergelijke hoge emissies geenszins uit.

Tabel 2. Vergelijking van de depositie, berekend uit de in de grond gemeten dioxinegehalten, met de uit het OPS-model berekende depositie over 14 jaar bij een emissie van 290 g TEQ/jaar ($\mu\text{g TEQ/m}^2$).

Lokatie	Berekend uit grondconcentraties	Berekend met het OPS-model
Za-A	3,9	4,6
Za-B	4,2	3,5
Za-C	4,6	3,8
Za-D	3,1	4,0
Za-E	1,5	1,0

3. GEHALTEN IN MELK IN RELATIE TOT DE EMISSIE VAN AVI-ZAANSTAD

In tabel 3. zijn de maandgemiddelde dioxinegehalten in koemelk van de periode september/oktober 1989 en van januari tot en met oktober 1990 weergegeven. De gehalten zijn uitgedrukt in pg 2,3,7,8-TCDD toxiciteitsequivalenten (TEQ) per gram vet.

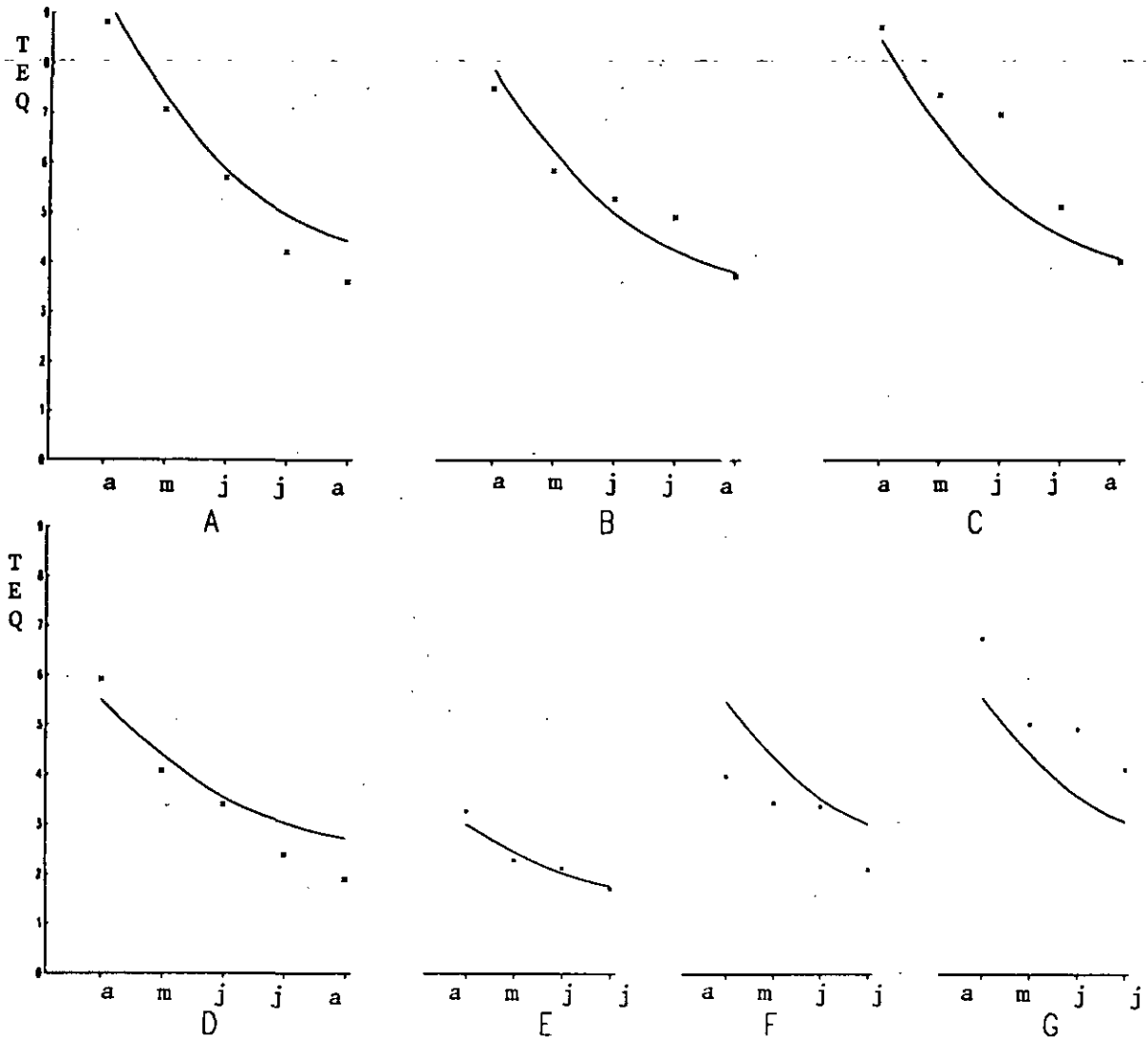
Tabel 3. Dioxinegehalten* in melk van 7 bedrijven uit de omgeving van de AVI-Zaanstad. De gehalten zijn bepaald in mengmonsters van een periode van circa één maand van ieder bedrijf en zijn uitgedrukt in pg TEQ/g melkvet.

Lokatie	Sep/okt 89	Periode 1990								
		feb	mrt	apr	mei	jun	jul	aug	sep	okt
<u>Westzaan</u>										
Za-A	12,1	10,0	9,1	8,8	7,1	5,7	4,2	3,6	3,8	4,5
Za-B	9,7	9,2	8,7	7,5	5,8	5,3	4,9	3,7	3,3	3,8
Za-C	9,9	13,5	12,0	8,7	7,4	7,0	5,1	4,0	3,3	4,1
Za-D	4,6		5,5	5,9	4,1	3,4	2,4	1,9	1,9	2,7
Za-E	3,1		3,6	3,3	2,3	2,1	1,7			
<u>Oostzaan</u>										
Za-F			3,9	4,0	3,4	3,4	2,1			
Za-G			6,2	6,7	5,0	4,9	4,1			

* De relatieve standaarddeviatie van de bepaling bedraagt 5%.

Op grond van de kinetiek van dioxinen in de koe wordt verwacht dat, na de sluiting van de AVI, dioxinegehalten in de melk zich na een exponentiële afname zullen stabiliseren op een bepaalde eindwaarde. Een onlangs uitgevoerd experiment met gelabelde dioxinen in melkgevende koeien heeft uitgewezen, dat de concentratie in koemelk na beëindiging van de blootstelling bij benadering mono-exponentieel afneemt. De eindwaarde kan geschat worden met een semi-empirisch model dat onlangs ontwikkeld werd (Hoogerbrugge et al., 1990). In dit model wordt een twee-dimensionaal responsvlak, als functie van de x- en y-coördinaten ten opzichte van de bron, gefit aan de waargenomen melkconcentraties.

Om het afnemend verloop van de melkgehalten te beschrijven is het model uitgebreid met een mono-exponentiële term met een in toxicokinetisch onderzoek vastgestelde halfwaardetijd van 40 dagen (Olling et al., 1990). De andere (vijf) parameters werden geijkt op de gevonden dioxinegehalten in de melk voor de maanden april t/m augustus (zie tabel 3). Figuur 1 laat zien hoe de berekende gehalten zich verhouden tot de waargenomen gehalten.



Figuur 1. Vergelijking van gemeten (punten) en berekende (lijnen) melkconcentraties met behulp van een empirisch model.

Lokaties Za-F en Za-G worden door het model respectievelijk over- en onderschat. Overigens zijn de gebruikte coördinaten slechts een schatting van de plaats waar de koeien zich in werkelijkheid opgehouden hebben, bijvoorbeeld doordat de landerijen van een bedrijf op verschillende lokaties liggen.

Het fitten van een gemeenschappelijk model voor alle lokaties tegenover het fitten van een curve voor elke lokatie afzonderlijk heeft een belangrijk

voordeel. Het is dan mogelijk tot een uitspraak te komen over de theoretische lokatie waar de melkgehalten maximaal zouden zijn, ook al is die lokatie niet bemonsterd. Immers, het model beschrijft het gehele tweedimensionale vlak rondom de bron waarvoor het maximum bepaald is. De door het model voorspelde eindwaarden, zowel voor de bemonsterde lokaties als voor het theoretisch maximum, zijn vermeld in tabel 4.

Tabel 4. Voorspelling van het stabilisatieniveau van koemelk met behulp van een empirisch model.

Lokatie	Voorspelde eindwaarde (pg TEQ/g melkvet)	Bovengrens van het 5%- betrouwbaarheidsinterval
Za-A	3,6	4,9
Za-B	3,1	4,3
Za-C	3,4	4,5
Za-D	2,3	3,4
Za-E	1,4	2,6
Za-F	2,3	3,5
Za-G	2,3	3,5
Maximum	3,8	5,1

Uit een onzekerheidsanalyse is afgeleid dat de kans op overschrijding van de voorlopige warenwetnorm van 6 pg TEQ per gram melkvet in de omgeving van AVI-Zaanstad zeer klein mag worden geacht. De in september en oktober gemeten gehalten (tabel 3.) vallen binnen het rechts-eenzijdig 5%-betrouwbaarheidsinterval.

Voor de gehalten in vlees en melk van schapen kunnen met de huidige kennis dergelijke conclusies nog niet getrokken worden. Metingen van schapemelk of -vet zijn incidenteel uitgevoerd. Een toxicokinetisch model, waarin rekening wordt gehouden met fysiologische verschillen tussen de koe en het schaap, geeft aanleiding tot de veronderstelling dat onder identieke blootstellingscondities concentraties in schapemelk en -vet kunnen voorkomen van maximaal 2 tot 2,5 maal zo hoog als die in koemelkvet. Verschillen in andere invloedsfactoren, zoals de opname van grond, konden door gebrek aan betrouwbare gegevens hierbij niet worden meegenomen. Niettemin worden de modelvoorspellingen bevestigd door metingen aan schapen en koeien in het Lickebaertgebied en bij de kabelbranderij te Culemborg (De Jong et al., 1990b).

Het voorgaande kan betekenen dat de gehalten in vet en melk van schapen waarden zouden kunnen bereiken tot maximaal 10 pg TEQ per gram vet. In

uitvoering verkerend toxicokinetisch onderzoek aan schapen zal hieromtrent nadere gegevens moeten verschaffen.

4. CONCLUSIES

1. In het Zaanse gebied nabij het depositiemaximum zijn in de bovenlaag van de grond dioxinegehalten gemeten van maximaal 252 ng TEQ per kg droge grond. Dit is aanzienlijk hoger dan het landelijk achtergrondgehalte. De conceptgrenswaarde voor grond in veeteeltgebieden wordt ruimschoots overschreden.
2. Op basis van een aangepast depositiemodel mag worden aangenomen dat de AVI-Zaanstad gedurende de 14 jaar dat zij in werking is ca. 290 g TEQ per jaar moet hebben geëmitteerd. Dit is meer dan tijdens de emissiemeting gevonden gemiddelde waarde van 178 g TEQ per jaar, maar valt wel binnen de onzekerheidsmarge. Bedrijfsomstandigheden die in het verleden zijn opgetreden sluiten een dergelijke emissie niet uit.
3. Berekeningen met een semi-empirisch model tonen aan dat het lange termijngemiddelde gehalte in koemelk in het depositiemaximum, na het sluiten van de AVI, maximaal ca. 3,5 pg TEQ per gram melkvet zal bedragen. De kans dat in incidentele gevallen de voorlopige Warenwetnorm zal worden overschreden wordt zeer klein geacht.
4. Onzekerheid bestaat over de gehalten in vlees en melk van schapen. Eerste schattingen wijzen op gehalten die maximaal een factor 2 à 2,5 hoger zijn dan in melkkoeien. Lopend onderzoek aan schapen zal hieromtrent nadere gegevens moeten verschaffen.

LITERATUUR

EPRI (1983)

Overview, results and conclusions for the EPRI Plume Model Validation and Development Project: Plains Site

EPRI-EA-3074, RP 1616-1

Hoogerbrugge, R. et al. (1990)

RIVM, nog niet gepubliceerd

Jong, A.P.J.M. de et al. (1990b)

Dioxinen in vlees en slachtprodukten van slachtdieren uit het Lickebaertgebied en de omgeving van kabelbranderijen te Culemborg

RIVM rapport nummer 730501004, mei 1990

Jong, A.P.J.M. de et al. (1990a)

Dioxinegehalten in grond van weilanden in de omgeving van de afvalverbrandingsinstallatie in Zaandam

RIVM rapport nummer 730501021, december 1990

Kleine Commissie Modellen (1976)

Modellen voor de berekening van de verspreiding van luchtverontreiniging inclusief aanbevelingen voor de waarden van parameters in het lange-termijnmodel

Staatsuitgeverij, Den Haag

Kootstra, P.R. et al. (1990)

Monitoring van dioxinen in koemelk in risicogebieden. Deelrapport II.

RIVM-rapport nummer 730501023, november 1990

Kretzschmar, J.G. en I. Mertens (1984)

Influence of the turbulence typing scheme upon the cumulative frequency distributions of the calculated relative concentrations for different averaging times

Atm. Env., 18 [11], 2377-2393

Matthijssen, A.J.C.M. et al. (1990)

Evaluatie van de dioxine-emissies van de afvalverbrandingsinstallatie in Zaandam

RIVM-rapport nummer 730501003, april 1990

Olling, M. et al. (1990)

De toxicokinetiek van polychloor-dibenzo-p-dioxinen en -furanen in de lacterende koe (I)

RIVM-rapport nummer 328904001, mei 1990