

RIJKSINSTITUUT VOOR VOLKSGEZONDHEID EN MILIEUHYGIENE
BILTHOVEN

Rapport nr. 748704018

Onderzoek naar de gehalten aan polycyclische
aromaten in binnen het voormalige Laura-
terrein te Kerkrade verzamelde monsters.
Uitloogbaarheidsproeven. Risico-evaluatie met
betrekking tot de Volksgezondheid

F.J.J.Brinkmann, A.G.A.C.Knaap, P.G.N.Kramers,
Th.G.Aalbers, A.A.Jekel, J.Keijzer,
J.J.G.Kliest, F.J.Michel, G.K.Montizaan,
T.J.F.Savelkoul, E.A.M.G.Vaassen, J.IJ.Wannes,
A.A.M.M.Wilbers

april 1989

Onderzoek uitgevoerd op verzoek van de Regionale Inspecteur
van de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne voor de
provincie Limburg en in opdracht van de Hoofdinspecteur van
de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne

Verzendlijst

- 1 - 45 Inspecteur van de Volksgezondheid voor de
 Milieuhygiene voor de provincie Limburg
- 46 Drs. M.M.J. Joppen
- 47 - 51 Hoofdinspecteur van de Volksgezondheid voor de
 Milieuhygiene
- 52 Drs. C.J. M van der Bogaard
- 53 Directie RIVM
- 54 Prof.Dr.B. Sangster
- 55 Dr.Ir.T. Schneider
- 56 Ir.F. Langeweg
- 57 Prof.Dr. G.R. Mohn
- 58 Dr. A.W. Fonds
- 59 Dr.R.W. Stephany
- 60 Dr.R.M.van Aalst
- 61 Dr.H.A. van 't Klooster
- 62 Drs. R.C.C. Wegman
- 63 Dr. W. Slooff
- 64 Dr. Ir. C.van den Akker
- 65 - 77 Auteurs
- 78 - 79 Adviescentrum Toxicologie
- 80 - 81 Bureau Projecten en Rapportenregistratie
- 82 - 100 Reserve-exemplaren

INHOUDSOPGAVE

Samenvatting	
1.	Inleiding ----- 1.
2.	Onderzoek van het PAK-gehalte van uit lucht verzameld stof--- 3.
	2.1. Plaatsen van monsterneming, omstandigheden bij de monsterneming ----- 3
	2.2. Methode van monsterneming----- 5
	2.3. Analyse methode----- 6
	2.3.1. Voorbewerking ----- 6
	2.3.2. Meetomstandigheden voor de capillaire gaschroma- tografie ----- 7
	2.3.3. Kwaliteitsborging ----- 7
	2.4. Resultaten----- 8
3.	Onderzoek aan van de vloeren van woningen bemonsterd stof----- 11
	3.1. Locaties, omstandigheden en methoden van monsterneming--- 11
	3.2. Voorbewerking en analyse ----- 12
	3.3. Resultaten ----- 14
4.	Onderzoek naar het PAK gehalte van oppervlakkige bodemmonsters (tot 5cm diep)----- 16
	4.1. Locaties en methode van monsterneming ----- 16
	4.2. Voorbewerking en analyse ----- 17
	4.3. Resultaten ----- 18
5.	Uitloogbaarheid van PAK uit de grond----- 20
	5.1. Inleiding ----- 20
	5.2. Monsterneming en monstervoorbereiding----- 21
	5.3. De standaarduitloogtest----- 21
	5.4. Opwerking van de percolaten----- 22
	5.5. Metingen ----- 23
	5.5.1. pH en geleidbaarheid----- 23

5.5.2.	Analyse van PAK-----	23
5.6.	Detektieregrenzen-----	25
5.7.	Resultaten beschikbaarheidstest-----	27
5.8.	Kolomproef met monster L2 -----	28
5.9.	Discussie -----	33
5.9.1.	Toetsingstabel grondwaterkwaliteit -----	33
5.9.2.	Fenanthreen-----	33
5.9.3.	Anthraceen-----	34
5.9.4.	Fluorantheen-----	34
5.9.5.	Pyreen-----	34
5.9.6.	Totaal PAK-----	34
5.10.	Conclusies-----	35
6.	Risico's voor de gezondheid-----	36
6.1.	Uitgangspunten en aanpak-----	36
6.2.	Opname via de mond-----	38
6.2.1.	Verschillende bronnen-----	38
6.2.2.	Opname van grond door kinderen-----	38
6.2.3.	Mogelijke bijdrage van PAK in vloerstof-----	39
6.2.4.	Risicoschatting benzo(a)pyreen in voeding-----	39
6.2.5.	Risicoschatting Lauraterrein-----	40
6.2.6.	Conclusie met betrekking tot opname via de mond---	41
6.3.	Opname via de huid-----	42
6.3.1.	Dermale opname bij kinderen-----	42
6.3.2.	Dermale opname bij volwassenen-----	42
6.3.3.	Risicoschatting benzo(a)pyreen voor effecten op de huid-----	43
6.3.4.	Risicoschatting Lauraterrein, effecten op de huid	43
6.3.5.	Bijdrage opname door de huid aan de systemische belasting-----	44
6.3.6.	Conclusie met betrekking tot opname via de huid--	44
6.4.	Opname via inademing van stof-----	45
6.4.1.	Concentraties PAK in de lucht-----	45
6.4.2.	Risico's bij blootstelling aan PAK via inademing-	45
6.4.3.	Conclusie met betrekking tot opname via de lucht-	46
6.5.	Conclusies-----	47
7.	Referenties-----	48

SAMENVATTING

Op het gedeeltelijk met woningen bebouwde terrein van de voormalige steenkolenmijn Laura zijn bij bodemonderzoek gehalten aan polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK) aangetroffen welke hoger zijn dan normaal en in een aantal gevallen de B- of C-waarden uit de Leidraad Bodemsanering overschrijden. Door de Regionale Inspecteur van de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne is aan het RIVM verzocht te evalueren of er voor de bewoners van het terrein een verhoogd risico zou kunnen bestaan voor de gezondheid als gevolg van blootstelling aan de in de bodem aangetroffen PAK.

Voor de evaluatie door het Adviescentrum Toxicologie van het RIVM is zoveel mogelijk gebruik gemaakt van de door het Projectbureau voor Industrieel Afval B.V. te Sittard bij het saneringsonderzoek verkregen resultaten.

Voor de evaluatie noodzakelijk aanvullend onderzoek is door het RIVM uitgevoerd en betrof:

- Onderzoek naar de gehalten aan PAK in stof verzameld uit de buitenlucht, uit de lucht in woonkamers en uit de lucht in kruimpruimtes.
- Onderzoek naar de PAK gehalten in stof verzameld vanaf vloeren in woningen.
- Onderzoek naar de gehalten aan PAK in de bovenste 5 cm bodemlaag.
- Onderzoek naar het uitloggedrag van de grond van het terrein bij kolomproeven en roertesten.

Voor de gidsstof benzo(a)pyreen leidde dit onderzoek tot de navolgende bevindingen:

- Voor de opperste 5 cm van de bodem bleken de gehalten aan benzo(a)pyreen tussen 0,4 en 18,9 mg per kg grond met een gemiddelde van 7,3 mg per kg grond te zijn. Deze gehalten lagen daarmee in vrijwel hetzelfde gebied als de door PBI in de deklaag gemeten gehalten. De laatstgenoemde metingen bleken hiermee representatief voor de evaluatie van de risico's van het hand-mond gedrag van kinderen.
- De benzo(a)pyreen-gehalten van stof dat verzameld was van vloeren uit woningen op het voormalige Laura-terrein varieerden van 0,5 tot 3,5 mg per kg stof, met een gemiddelde van 1,3 mg per kg. Zij lagen daarmee

duidelijk hoger dan van het stof verzameld in de drie controlewoningen elders. Anderzijds bleven de gehalten ongeveer een factor 5 lager dan die in de buitenshuis bemonsterde grond.

- De gehalten van het stofgebonden benzo(a)pyreen in de buitenlucht van het voormalige Laura-terrein bleken op twee afzonderlijke dagen met 1,7 en 1,9 respectievelijk 3,7 en 5,2 ng per m³ ongeveer een factor twee hoger dan de gehalten berekend voor het station Wijnandsrade van het Nationale Luchtmeetnet. Overigens was het aantal meetresultaten (4) klein en zullen de weersomstandigheden de meetresultaten sterk beïnvloeden. De binnenshuis gemeten benzo(a)pyreen gehalten in huizen waarin niet gerookt wordt bleken te variëren van 0,8 tot 2,5 ng per m³ en zijn daarmee dus lager dan buitenshuis. In de paar huizen waar wordt gerookt werden benzo(a)pyreen gehalten van ongeveer 3,5 ng per m³ gemeten.

Bij het beschikbaarheidsonderzoek is eerst gebruik gemaakt van roertesten om het best uitloogbare grondmonster te selecteren. Vervolgens is aan dit monster een kolomtest uitgevoerd. De cumulatieve emissie na uitloggen van 1 kg materiaal met 10 liter tot pH=4 aangezuurd percolatie water bedroeg voor fenanthreen, fluorantheen en pyreen minder dan 1% van het vaste stofgehalte, voor anthraceen was de totale emissie in ieder geval minder dan 1,5% van het vaste stofgehalte. De totale cumulatieve emissie van PAK in de kolomproef bleek 35 µg per kg te zijn. Benzo(a)pyreen werd niet aangetoond in de percolaten.

De resultaten van het uitloogonderzoek zijn moeilijk weegbaar. Zij houden o.a. een overschatting in omdat het grondmateriaal voor de kolomvulling verkleind werd tot minder dan 3 mm, hetgeen tot een grotere uitloogbaarheid moet leiden. De gidscomponent werd zoals vermeld niet aangetoond in de percolaten. Derhalve werd tenslotte besloten bij de risico- evaluatie het uitloogonderzoek buiten beschouwing te laten.

De risico-evaluatie kon, omdat de opnames uit drinkwater en vanuit zelf geteelde groente als verwaarloosbaar gezien konden worden, beperkt blijven tot de orale opname van PAK uit grond en uit vloerstof door kinderen, de opname van PAK door de huid bij zowel kinderen als volwassenen en de opname van PAK vanwege ingeademd luchtstof.

De opname door kinderen van benzo(a)pyreen uit buitengrond en vloerstof blijkt in de orde van grootte van 35 maal de geschatte opname via de normale voeding te liggen. Het hierbij berekende risico kan de "verwaarloosbaarheidsgrens" van maximaal 1 extra kankergeval per 10^6 personen bij levenslange opname overschrijden maar blijft onder het "maximaal toelaatbare niveau" van maximaal 1 extra geval per 10^4 personen bij levenslange opname.

De berekende risico's van de opname van uit grond- en vloerstof zijn niet zodanig verhoogd dat deze in een bevolkingsonderzoek kunnen worden onderkend. Hierbij moet worden aangetekend dat de bij de evaluatie gedane aannames (zoals volledige biologische beschikbaarheid) tot een overschatting van het werkelijke risico leiden.

Voor opname van PAK door de huid, zowel bij kinderen als volwassenen, ligt het geschatte risico voor plaatselijke effecten (huidtumoren) ten hoogste rond de "verwaarloosbaarheidsgrens". Ten aanzien van de bijdrage van de systemische werking van de PAK in het lichaam vanwege PAK-opname door de huid kan gesteld worden dat deze verwaarloosbaar is.

De nu beschikbare metingen met betrekking tot PAK gehalten in luchtstof laten geen uitspraken toe over eventueel verhoogde risico's ten gevolge van PAK in ingeademd luchtstof. De gemeten gehalten wijken weinig af van de achtergrondwaarden, maar een lichte verhoging kan niet worden uitgesloten.

1 INLEIDING

Nadat er bodemverontreiniging met polycyclische aromaten (PAK) geconstateerd was op het voormalige Laura-terrein te Eygelshoven in de Gemeente Kerkrade is in overleg met de Regionale Inspecteur van de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne en met de Basisgezondheidsdienst voor Oostelijk Zuid-Limburg door het Nationaal Vergiftigingen Informatie Centrum (NVIC), een dienstonderdeel van het RIVM, ter plaatse voorlichting gegeven aan de huisartsen. Twee dagen later, op 14 april 1988, is door het NVIC een informatiebijeenkomst voor vertegenwoordigers van het bewonerscomité georganiseerd.

Begin september 1988 heeft de Regionale Inspecteur om advisering en een risico-evaluatie verzocht en het concept overhandigd van het rapport "NADER ONDERZOEK OP HET VOORMALIGE LAURATERREIN TE KERKRADE", [1], dat in opdracht van de Provincie Limburg was opgesteld door het Projectbureau voor Industrieel Afval BV. (PBI) te Sittard. Hierbij werd de vraag gesteld of het concept-rapport een voldoende basis zou geven voor de evaluatie.

Het concept rapport van PBI is bestudeerd door vijf verschillende aan het RIVM verbonden deskundigen. Op basis van hun bevindingen is een voorstel voor aanvullend onderzoek opgesteld. Dit RIVM-voorstel inzake aanvullend onderzoek is op 4 november 1988 met de Regionale Inspecteur en met vertegenwoordigers van de Provincie en PBI besproken.

Inmiddels werd door PBI op 20 september 1988 een voorstel tot saneringsonderzoek uitgebracht, waarin ook een aantal voorstellen uit het RIVM-advies herhaald werden. Aanbevolen werd door PBI het aanvullend onderzoek te betrekken op het uitloggedrag van de PAK houdende grond, op de bepaling van de kwaliteit van de lucht in kruipruimten en, dit in verband met mogelijke permeatie van het leidingbestand, op de bepaling van de kwaliteit van het drinkwater.

Op 4 november werd besloten dat in verband met de geboden haast, de beoordeling door het Adviescentrum Toxicologie (ACT) van het RIVM van de risico's zich zou beperken tot de volksgezondheidsaspecten. De voorstellen werden hiermede ingeperkt tot aanvullend onderzoek met betrekking tot de blootstelling van bewoners en omwonenden.

Door PBI werd intussen met het door hen voorgestelde onderzoek aangevangen. De resultaten hiervan zouden gebruikt kunnen worden voor de

risico-evaluatie door het Adviescentrum Toxicologie (ACT) van het RIVM; de aanvulling op dit onderzoek zou door het RIVM uitgevoerd worden. Dit laatste aanvullend onderzoek heeft bestaan uit:

- Bepaling van de PAK gehalten in luchtstof verzameld in woonkamers en kruipruimten van zowel woningen met bevloerde als open kruipruimten alsmede in een aantal buitenlucht monsters. Het onderzoek naar de PAK gehalten in luchtstof was uiteraard gericht op de minder vluchtige PAK, waaronder de gids-verbinding benz(a)pyreen. Onderzoek naar het PAK gehalte in monsters van kruipruimtelucht en bodemlucht ten gevolge van de vluchtige PAK zou reeds door PBI uitgevoerd worden.
- Bepaling van de PAK gehalten in van de vloeren van woningen bemonsterd stof.
- Bepaling van de PAK gehalten in een beperkt aantal monsters van de bovenste 5cm laag van de bodem. De deklaag dan wel de bovenste 50cm laag van de bodem waren reeds zeer uitgebreid door PBI onderzocht.
- Bepaling van het uitlooggedrag van PAK uit grondmonsters. Hierbij lag het zwaartepunt op de percolatieproeven, dit mede in aanvulling op de door PBI uitgevoerde schud- en roertesten.

Er werd van uitgegaan dat gegevens met betrekking tot een eventuele permeatie van PAK door drinkwaterleidingen, hetgeen zou kunnen resulteren in de aanwezigheid van PAK in drinkwater, in voldoende mate door PBI verschaft zouden worden.

Ten aanzien van het PAK gehalte van in eigen tuin geteelde groente werd besloten eerst het onderzoek naar PAK gehalten in luchtstof af te wachten omdat, gezien ervaringen elders, transport van PAK via de wortelroute als onbelangrijk beschouwd moet worden en derhalve alleen eventueel aanklevend luchtstof bepalend is.

2. ONDERZOEK VAN HET PAK-GEHALTE VAN UIT LUCHT VERZAMELD STOF.

2.1. Plaatsen van monsterneming, omstandigheden bij de monsterneming.

Op donderdag 15 december en vrijdag 16 december 1988 zijn monsters genomen van het luchtstof in de buitenlucht en in woonkamers en kruipruimten van een aantal woningen op het Lauraterrein te Kerkrade. Daarnaast zijn als referentie twee woningen in Kerkrade bemonsterd, welke niet op verontreinigde grond zijn gebouwd. In totaal zijn op deze wijze veertien luchtstofmonsters genomen.

De eerste meetdag bedroeg de windsnelheid aan het begin van de meting ca 4 m per seconde. De windrichting was 340° . De buitenluchttemperatuur was $8,7^{\circ}\text{C}$. Gedurende de gehele dag was het regenachtig weer met enkele droge perioden. Aan het begin van de tweede meetdag was de windsnelheid 0,9 m per seconde, de windrichting was 250° en de buitenluchttemperatuur was $6,4^{\circ}\text{C}$. De tweede meetdag was het overwegend droog weer.

De woningen in de onderzochte wijk zijn alle tamelijk nieuwe woningen en van het type "woning in de rij", het type "aangebouwde woning" dan wel het type "twee onder een kap". In een deel van de woningen is de bodem van de kruipruimte afgedekt met beton ("gesloten kruipruimte"), het grootste deel van de woningen bezit echter een open verbinding met de ondergrond ("open kruipruimte"). De meeste woningen zijn gebouwd met een open keuken. De referentiewoningen waren beide van een ouder type.

De te bemonsteren woningen zijn geselecteerd aan de hand van een aantal criteria. In de eerste plaats dienden de woningen verspreid over de twee bebouwde delen van de wijk te liggen.

De bemonsterde woningen dienden zowel van het type met een open, als met een gesloten kruipruimte te zijn, terwijl bij de selectie voorts gebruik is gemaakt van de reeds aanwezige informatie uit

het nader onderzoek en het historisch onderzoek, zoals inzake de ligging van de voormalige pekloods. Een bijkomend criterium was, dat in de bemonsterde woningen niet of niet veel mocht worden gerookt, omdat roken de PAK gehalten in lucht en luchtstof beïnvloedt. Als referentiewoningen zijn twee woningen gekozen in andere delen van Kerkrade, één met en één zonder rokende bewoners.

In tabel 1 zijn bijzonderheden vermeld omtrent de monsterneming.

Tabel 1.

Overzicht monsterlokaties en monstervolumina luchtstofbemonstering

Laura-terrein Kerkrade i.v.m. bepaling PAK gehalte.

monster nummer	lokatie	datum	type	ro- kers	monster volume
		monster name	ruimte		
88m2351	Kwikstaartstr. 22 woonkamer	15-12	open	nee	34,1m ³
88m2352	Kwikstaartstr. 53 woonkamer	15-12	gesloten	nee	35,2m ³
88m2354	Kwikstaartstr. 22 kruipruimte	15-12	open	nee	32,1m ³
88m2355	Kanariestr. 2 buiten	15-12	nvt*)	nvt	34,6m ³
88m2356	Wackerstr. 74 woonkamer	15-12	open	nee	19,6m ³
88m2357	Schweitzerstr. 21 buiten	15-12	nvt	nvt	33,7m ³
88m2358	Kwikstaartstr. 4 kruipruimte	16-12	open	ja	20,0m ³
88m2360	Kwikstaartstr. 47 buiten	16-12	nvt	nvt	42,8m ³
88m2361	Kwikstaartstr. 41 woonkamer	16-12	gesloten	nee	33,1m ³
88m2362	Wackerstr. 38 woonkamer	16-12	open	nee	30,1m ³
88m2363	Wackerstr. 38 kruipruimte	16-12	open	nee	26,4m ³
88m2364	Wackerstr. 44 buiten	16-12	nvt	nvt	39,4m ³
referentiemonsters					
88m2353	Bosweg 15 woonkamer	15-12	nvt	nee	32,9m ³
88m2359	Veldhofstr. 19 woonkamer	16-12	nvt	ja	31,6m ³

*)nvt: niet van toepassing

2.2 Methode van monsterneming

Bemonstering heeft plaatsgevonden volgens de Nederlandse Voornorm 2798 (NVN 2798). Hierbij wordt stof bemonsterd over glasvezelfilters, terwijl als meer vluchtige verbindingen in het stof bepaald moeten worden een backup van poly-urethaanfoam geadviseerd wordt (PUF). De aan het stof en/of het PUF geadsorbeerde verbindingen worden vervolgens geëxtraheerd met een passend oplosmiddel waarna analyse kan plaats vinden. Bij de bemonstering in Kerkrade is geen PUF bemonstering toegepast aangezien voor de toxicologische evaluatie slechts de carcinogene en verdacht carcinogene PAK van belang zijn; de relatief vluchtige PAK's behoren niet tot deze categoriën. De glasvezelfilters (Whatman, EPM 2000) waren aangebracht in teflon filterhouders welke, met de aanzuigzijde naar de grond gekeerd, op een hoogte van ca 60 cm boven de grond werden bevestigd aan een statief.

Aangezien bij de gehanteerde bemonsteringswijze geen voorafscheiding plaatsvindt, kan geen inzicht verkregen worden in het deel van de PAK dat gebonden is aan de fractie van het aan respirabel stof. Nadeel hiervan is, dat vergelijking met bestaande referentiemetingen van het PAK-gehalte aan respirabel stof, minder eenvoudig is. Met betrekking tot de blootstelling aan PAK is echter behalve het gedeelte van het stof dat via de luchtwegen het lichaam binnenkomt ook het gedeelte van het stof dat via de mond en het maagdarmkanaal het lichaam bereikt, van belang. Bepaling van de totale hoeveelheid PAK is vanuit dit oogpunt meer relevant, dan bepaling van alleen het respirabel deel hiervan.

Er is bij de bemonstering geen poging gedaan het gewicht van het bemonsterde stof te bepalen. Hiertoe zouden de filters voor en na bemonstering moeten worden geconditioneerd. Besloten werd om dit niet te doen, omdat de conditionering mogelijk van invloed zou kunnen zijn op de bepaling van het PAK-gehalte. Uit algemene meetgegevens van het landelijk meetnet is overigens inzicht te

verkrijgen in de relatieve stofgehalten en de gehalten aan zogenaamde "zwarte rook" op beide meetdagen.

De monsterneming heeft plaatsgevonden met zogenaamde "medium volume samplers". Met deze pompen is gedurende 8 uur lucht bemonsterd met een debiet van 2,5 tot 5 m³ per uur, zodat in totaal 20 tot 40 m³ lucht is bemonsterd.

De monstervolumina zijn vermeld tabel 1.

2.3. Analyse methode

De basis voor de gebruikte methode is te vinden in een door het Laboratorium voor Analytisch Residu-onderzoek in SOP nr. ARO/012 vastgelegde methode.

2.3.1 Voorbewerking

De ontwikkelde werkwijze is als volgt:

- het gehele filter wordt gehydrolyseerd door 30 min. onder terugvloeiakoeling te koken met 100ml M KOH in methanol.
- het hydrolysaat wordt verdund met 100ml 12½ %-ige NaCl-opl en 3-maal geëxtraheerd met cyclohexaan, 2 maal met 100ml en éénmaal met 50ml.
- het cyclohexaan extract wordt 2 maal geschud met 100ml methanol/water; 70/30 V/V; en de organische fase wordt afgelaten over een trechter met daarin Na₂SO₄.
- van deze fase werd ongeveer de helft (massabasis) genomen voor verder onderzoek.
- aan dit aliquot worden de interne standaard en 7 ml butanol-1 toegevoegd waarna tot enkele ml's wordt geconcentreerd. Overblijft een butanol-1 extract.
- dit extract is gechromatografeerd over XAD-2 waarbij verworpen is een polaire methanol fraktie en een a-polaire n-pentaan fraktie. Opgevangen is de toluen fraktie met daarin de PAK.
- deze toluen fraktie is tot droog ingedampt en het residu is afhankelijk van de mate van geelkleuring opgelost in 15 tot 50µl toluen. Hiervan is 1,5 à 2µl cold on-column geïnjecteerd.

2.3.2 Meetomstandigheden voor de capillaire gaschromatografie.

Kolom: 25 m glas capillair, inwendige diameter 0,32 mm, coating SE-52 ter dikte van 0,10-0,15 μ m.

Draaggas: Helium, ingangsdruk 60 kPa.

Injektor: cold on-column voorzien van "secondary air-cooling".

Detektor: vlamionisatie detektor (FID), 280^o C.

Temperatuurprogramma: injectie bij 125^o C, secondary air-cooling van de cold on-column injektor

van 125 - 145^o C met 20^o C/min.

van 145 - 225^o C met 2^o C/min.

van 225 - 305^o C met 3^o C/min.

2.3.3 Kwaliteitsborging.

De kwaliteitsborging omvatte (i) twee blankobepalingen van onbezogen EPM 2000 glasvezelfilters plus reagentia, en (ii) een terugvindingsexperiment waarbij PAK werd toegevoegd aan een onbezogen filter op een niveau dat zo goed mogelijk overeenkomst met de gemiddeld in de monsters gemeten gehalten. (iii) Voorts is aan één monster (88m2351) de interne standaard indeno (1,2,3-cd) fluorantheen (IF) nog voor de hydrolyse toegevoegd.

Resultaten:

ad. i. Alleen voor fluorantheen, pyreen, benzo(a)anthraceen en chryseen is een meetsignaal verkregen; gem. gehalte: 0,05 resp. 0,03 resp. 0,05 resp. 0,02 ng/m³. Voor alle andere PAK is het signaal <0,02 ng/m³.

ad ii. Toegevoegd is 0,7 ng/m³, met veelvouden van fluorantheen, pyreen en chryseen waardoor het niveau 3,7 ng/m³ is.

De range van de percentages van terugvinding is 88 - 118% met gem. 100%. Uitgezonderd hiervan is dibenzo (a.h.) pyreen waarvoor het percentage 70% is.

ad iii. Uit berekening via de externe standaard methode blijkt dat de terugvinding van de interne standaard IF slechts 2% minder is (109%) dan de terugvinding indien de interne standaard wordt toegevoegd na de hydrolyse en extractie met cy-

clohexaan (111%). Gesteld kan dus worden dat geen verlies optreedt van de interne standaard IF tijdens de hydrolyse en de navolgende extractie met cyclohexaan.

2.4. Resultaten

De resultaten van het onderzoek aan uit lucht verzamelde stof zijn weergegeven in tabel 2.

Tabel 2. Concentraties PAK in stofmonsters (ng/m³) van woonkamers, kruipruimten en buitenlucht, op het Laura-terrein en achtergrond-locaties.

	Woonkamers Lauraterrein				Kruipruimten Lauraterrein				Achtergrond woonkamers				Buitenlucht Lauraterrein					
	nr. 22	41	53	38	74	38	74	22	4.	38	15	15	15	15	nr. 2	nr. 21	nr. 47	nr. 44
	Wackerstr. Kwikstaartstr. Wackerstr.				Bosweg Veldhofstr.				Kanarietr. Schweizerstr. Kwikstaartstr. Wackerstr.									
	GEROOKT								GEROOKT									
Fluorantheen	0,2	1,1	3,6	0,4	0,3	0,2	1,1	0,3	0,1	8,5	0,3	0,4	1,2	1,0				
Pyreen	0,2	0,6	1,8	0,3	0,2	0,1	0,6	0,3	0,1	5,9	0,3	0,3	0,8	0,8				
Benz(a)anthraceen	0,1	0,6	1,3	0,5	0,6	0,1	0,7	0,3	0,2	1,6	0,5	0,5	1,0	1,6				
Chryseen	0,2	1,0	1,5	0,6	0,4	0,2	0,8	0,5	0,3	2,5	0,8	0,8	1,8	2,6				
Benzo(b)fluorantheen	0,5	1,8	1,2	1,9	1,2	0,8	2,7	1,6	1,1	3,4	1,6	1,7	3,5	5,4				
Benzo(j)fluorantheen	0,3	1,2	0,5	1,1	0,6	0,4	1,2	0,8	0,4	1,5	0,9	0,9	1,9	2,0				
Benzo(k)fluorantheen	0,2	0,5	0,4	0,6	0,1	0,2	0,8	0,5	0,2	0,7	0,5	0,5	1,0	2,1				
Benzo(a)pyreen	0,8	2,3	1,2	2,5	1,2	1,2	3,3	2,1	1,0	3,6	1,7	1,9	3,7	5,2				
Dibenz(a,h)anthraceen	0,3	0,5	0,2	0,5	0,3	0,2	0,6	0,6	0,3	0,5	0,3	0,4	0,6	0,9				
Benzo (ghi)peryleen	1,3	3,2	1,3	3,3	1,8	1,6	4,2	3,6	1,7	4,2	2,2	2,7	4,7	5,5				
Indenopyreen	1,0	2,0	0,9	2,3	1,4	1,1	3,5	2,3	1,2	2,5	1,4	1,8	3,1	4,4				
Benzo(c)fenanthreen	0	0	0	0	0	0	0	0,1	0	0,4	0,1	0	0,2	0,3				
Benzo(e)pyreen	0,5	1,6	0,9	1,7	0,9	0,8	2,5	1,5	0,8	2,5	1,4	1,4	2,7	4,3				
Dibenzo (a,i)pyreen	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0,6	1,3				
Dibenzo (a,h)pyreen	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0				

0 betekent: lager dan grens van bepaalbaarheid

Nadere beschouwing van deze resultaten voor wat betreft de benzo(a)pyreen gehalten geeft de navolgende trends te zien.

- de buitenlucht bevat meer stofgebonden benzo(a)pyreen dan de lucht van de woonkamers en kruipruimten.
- de lucht in woningen waarin gerookt wordt bevat meer stofgebonden benzo(a)pyreen dan de lucht in woningen waarin niet gerookt wordt.
- op 15 december 1988 is het gehalte aan stofgebonden benzo(a)pyreen duidelijk lager dan op 16 december 1988.

Het onderzoek naar het PAK gehalte van luchtstof heeft plaats gevonden op een regenachtige dag en de dag hierna. Bovendien was er beide dagen betrekkelijk weinig of nagenoeg geen wind. Hierin zou de reden kunnen liggen voor een herhaling van tenminste een deel van het luchtstof-onderzoek waartoe gewacht zou moeten worden op een droge periode en binnen deze periode op een dag met relatief veel wind, condities welke alleen in de voorzomer verwacht mogen worden.

3. ONDERZOEK AAN VAN DE VLOEREN VAN WONINGEN BEMONSTERD STOF.

3.1 Locaties, omstandigheden en methoden van monsterneming.

Om inzicht te krijgen in de mate waarin blootstelling via hand-mond gedrag van met name kinderen zou kunnen optreden zijn monsters genomen van het stof op de vloer in de woonkamer van een vijftal woningen. De vloerstofmonsters zijn genomen op woensdag 8 februari 1989. Aan de bewoners was gevraagd om tenminste de drie dagen voorafgaande aan de monsterneming niet te stofzuigen. De vloerstof monsters zijn genomen met een stofzuiger en een filterhouder, afkomstig van de Landbouwwuniversiteit Wageningen. Ten behoeve van de monsterneming is in een veel belopen deel van de kamer of open keuken een raamwerk van $1 \times 1 \text{ m}^2$ neergelegd, waarbinnen het aanwezige stof zoveel mogelijk kwantitatief is opgezogen. Het opgezogen stof werd afgevangen op een Whatman glasvezelfilter. Na de bemonstering werden filter en stof overgebracht in een glazen monsterpot en met een met teflon gecoate deksel afgesloten. De filters zijn voor en na bemonstering ongeconditioneerd gewogen.

Als referentiewoningen zijn een drietal woningen van RIVM-medewerkers op een zelfde wijze bemonsterd.

De vloer van alle bemonsterde woningen was belegd met een gladde vloerbedekking zoals parket, plavuizen of zeil. In die gevallen waarin een mat of karpet aanwezig was is deze gedeeltelijk meebemonsterd. In alle woningen is voorafgaand aan de monsterneming niet of matig gerookt (gemiddeld 0-10 sigaretten per dag). Met de voorschreven monsterneming worden alleen matig vluchtige PAK kwantitatief bemonsterd. Vluchtige PAK zullen voor het grootste deel met de gasstroom afgevoerd worden.

Een overzicht van de monsterlokaties en de bemonsterde stofhoeveelheden is te vinden in tabel 3.

Tabel 3. Vloerstofmonsters; monsterlokaties en bemonsterde hoeveelheden stof.

monstercode	filter nummer	adres	bemonsterde hoe- veelheid stof
890090	2	Kwikstaartstraat 63	0,1910 g
890091	3	Kwikstaartstraat 47	0,3833 g
890092	4	Kwikstaartstraat 15	0,0754 g
890093	5	Kwikstaartstraat 15	0,0810 g
890094	6	Edixhovenstraat 18	0,2297 g
890095	7	Wackerstraat 69	0,2967 g
890096	12	blanco filter	0 g
890097	15	blanco filter	0 g
referentiemonsters			
890161	8	Huizen	0,0809 g
890162	9	Culemborg	0,1957 g
890163	10	Leusden	0,0682 g

3.2 Vorbewerking en analyse.

Het filter met aanklevend stof is door knippen verdeeld en daarna in zijn geheel overgebracht in een extractie/schud-buis met een volume van 100 ml. Geëxtraheerd is met 50 ml. dichloormethaan gedurende 10 minuten in een schudmachine en daarna gedurende 1 uur onder invloed van ultra-sonoortrilling.

Na centrifugeren en decanteren van de vloeistof en na spoelen met dichloormethaan is de verzamelde vloeistof in een zogenaamde Rotavapor geconcentreerd tot enkele milliliters. Onder een stikstofstroom is vervolgens ingedampt tot een droog residue. Het residue is opgenomen in 1 ml petroleumether. Het petroleumether extract is gezuiverd over aluminiumoxyde, gedesactiveerd met 11 procent water (Al_2O_3 11% H_2O). Geëluëerd is met 10 ml. petroleumether waarna opnieuw onder een langzame

stikstofstroom is ingedampt tot droog residue.

Het residue werd opgenomen in 0,5 ml acetonitril, gefiltreerd over een 0,45 μm membraanfilter en met behulp van vloeistofchromatografie geanalyseerd waarbij gebruik gemaakt werd van fluorescentie detectie.

De werkcondities waren als volgt.

Kolom: glas 3 mm ID lengte 10 cm 9 mm O.D.

Kolomvulling: Chromspher PAH, deeltjesgrootte 5 μm

Kolomtemperatuur: 30^o C

Mobiele fase: B. Acetonitril 100% en

 A. Water/acetonitril 60%/40%.

Lineair gradient verloop:

tijd (min)	debiet (ml/min)	%A	%B
0	1	100	0
2	1	100	0
32	1	0	100
35	1	0	100
38	1	100	0

Detector: programmeerbare fluorescentie

Spleetbreedte: excitatie 10 mm

 emissie 10 mm

Golflengteschakeling

tijd (min)	Ex (nm)	Em. (nm)	eluerende component
0	253	333	naftaleen acenaftyleen acenaftteen fluoreen

tijd (min)	Ex (nm)	Em. (nm)	eluerende component
11,5	253	373	phenanthreen anthraceen
14,2	263	420	fluorantheen pyreen
17,5	270	382	benz(a)anthraceen chryseen
22,5	280	460	benzo(b)fluorantheen benzo(k)fluorantheen benzo(a)pyreen benzo(a,h)anthraceen benzo(g,h,i)peryleen indeno (1,2,3-cd)pyreen
40	stop		

Injectievolumen : 10 - 20 μ l.

De gehalten van de verschillende PAK-componenten in het monster worden berekend door de piekoppervlakken te vergelijken met die van bekende standaarden in hetzelfde concentratiebereik.

3.3 Resultaten.

De in het vloerstof gemeten gehalten aan PAK zijn, uitgedrukt in mg per kg, weergegeven in tabel 4.

Tabel 4. Gehalten PAK in huisstof (mg/kg) afkomstig van het Lauraterrein en referentielocaties.

	Wackerstr.	Edix-	Kwikstaartstr.			Referentie-			
	69	str.18	15	15	47	63	1	2	3
Acenafteen	0,02	0,10	0,00	0,00	0,28	0,00	0,00	0,02	0,00
Fluoreen	0,11	0,20	0,05	0,09	0,52	0,10	0,02	0,10	0,07
Fenantheen	1,03	1,68	0,81	1,10	4,61	1,49	0,36	1,33	0,90
Anthraceen	0,10	0,33	0,08	0,15	0,55	0,20	0,04	0,07	0,05
Fluorantheen	1,90	3,37	1,49	2,04	9,56	4,37	0,55	3,80	1,91
Pyreen	1,21	2,42	1,01	1,36	8,12	3,46	0,41	2,60	1,47
Benz(a)anthraceen	0,54	1,54	0,43	0,77	3,64	1,13	0,15	0,47	0,33
Chryseen	0,83	1,79	0,60	0,98	4,07	1,56	0,26	1,36	0,81
Benzo(b)fluorantheen	0,66	1,44	0,51	0,88	3,72	1,43	0,18	0,96	0,67
Benzo(k)fluorantheen	0,32	0,77	0,26	0,47	2,02	0,69	0,09	0,42	0,31
Benzo(a)pyreen	0,46	1,45	0,44	0,84	3,49	1,05	0,14	0,41	0,38
Benzo(ghi)peryleen	0,95	2,31	0,82	1,47	5,09	2,19	0,23	0,85	0,88
Indeno (1,2,3-cd)pyreen	0,62	1,42	0,60	0,97	3,94	1,50	0,15	0,60	0,51

4. ONDERZOEK NAAR HET PAK GEHALTE VAN OPPERVLAKKIGE BODEMMONSTERS
(TOT 5 CM DIEP)

4.1. Locaties en methode van monsterneming.

De bemonstering van de bovenlaag (tot 5cm diep) van de bodem werd uitgevoerd op 10 locaties op 8 februari 1989.

Hiervoor zijn plekken uitgezocht welke ten tijde van de monsterneming onbegroeid waren. Op alle bemonsterde locaties werd in meerdere of mindere mate de aanwezigheid van deeltjes pek en/of steenkool waargenomen.

Een overzicht van de monsternummers, de monsterlocaties, de in bewerking genomen hoeveelheden en het vochtgehalte van de monsters wordt gegeven in tabel 5.

Tabel 5. Monsternaming bovenlaag van de bodem; monsterlocatie, in bewerking genomen hoeveelheden en vochtgehalte.

monster- nummer	lokatie	in bewer- king hoeveelheid	vocht genomen gehalte
1a	Kwikstaartstr.63 tuin, achter	251 g	21,0%
1b	Kwikstaartstr.63 tuin, achter	248 g	22,4%
2	Wackerstraat 69 perkje voor huis	250 g	17,5%
3	Wackerstraat 90 onbewoond huis	255 g	16,3%
4	Edixhovenstr. 26 voor onbew.huis	254 g	15,5%
5	Schoufertsweide 2 naast woning	259 g	13,9%
6	Wackerstraat 11 achter woning	254 g	19,1%
7	Kwikstaartstr.53 achter woning	255 g	22,3%
8	Kwikstaartstr.35 achter woning	255 g	22,8%
9	Kinderspeelpl. a/d Kwikstaartstr.	242 g	29,3%
10	Kwikstaartstr.26	257 g	19,0%
11	Bonk pek afkomstig van kinderspeelplaats Kwikstaartstraat	11,7 g	-

De bemonstering van de bovenlaag van de bodem vormt een aanvulling op het onderzoek dat in een eerder stadium door PBI is uitgevoerd. Met behulp van een roestvaststalen poederschep met afgeplatte bek is op een tiental plaatsen de bovenste laag van ca 5 cm dikte van de bodem afgeschraapt. Met behulp van een houten raamwerk werd de bemonsterde oppervlakte op $0,5 \text{ m}^2$ bepaald. Van de aldus bemonsterde grond werd via uitkruisen een deelmonster genomen van ca. 2 liter en dit werd overgebracht in een glazen pot.

In het laboratorium zijn de monsters vervolgens voorbehandeld volgens de ontwerp NEN-norm 5768, met uitzondering van het homogeniseren. Het homogeniseren is gebeurd door de uit klei/löss bestaande brokken welke zich in het monster bevonden, met een spatel te verkleinen en te mengen. 250 g van het homogenisaat is gemengd met een ongeveer gelijke hoeveelheid sulfaat/talk mengsel en onder toevoeging van vloeibare stikstof cryogeen gemalen.

4.2. Vorbewerking en analyse

Van elk van de cryogeen gemalen grondmonsters en van het cryogeen gemalen pek-monster werd 20 g in bewerking genomen. Toegevoegd werd 25 ml aceton, gedurende 10 minuten werd geschud in de schudmachine, vervolgens werd 50 ml petroleum ether toegevoegd waarna wederom 10 minuten geschud werd. Hierna werd het geheel gedurende 30 minuten ultrasoon. Na centrifugeren is het extract 2 keer uitgeschud met 50 ml water en daarna gedroogd over natriumsulfaat. Met behulp van een Rotavapor is ingedampt tot enkele milliliters en vervolgens is het volume onder een langzame stikstofstroom op 2 ml gebracht. Hiervan is 1 ml gezuiverd met behulp van $2 \text{ g Al}_2\text{O}_3, 11\% \text{H}_2\text{O}^{1)}$; geëluëerd is met petroleumether (10 ml). Het eluaat is onder een langzame stikstofstroom ingedampt tot droog residu en daarna is het residu opgenomen in acetonitril waarbij de toegevoegde hoeveelheid mede afhankelijk was van het werkgebied van de analyse.

1) Van monsters 890150 en 890164 is $250 \mu\text{l}$ i.p.v. 1 ml gezuiverd.

De analyse werd uitgevoerd met hoge-druk-vloeistof-chromatografie. De werkomstandigheden waren als bij de bepaling van het PAK-gehalte in vloerstof (3.2.).

4.3. Resultaten

De resultaten van het onderzoek naar het PAK-gehalte van oppervlakkige grondmonsters en een monster pek zijn uitgedrukt in mg/kg weergegeven in tabel 6.

Tabel 6. Gehalten van PAK in grondmonsters afkomstig van het Lauraterrein
(bovenste 5 cm laag) en in een monster pek zoals bepaald door het RIVM

GEHALTEN in mg/kg droge grond voor monsters 890150 t/m 890159													
GEHALTEN in mg/kg teer voor monster 890160													
Monsternummer	890150	890164	890151	890152	890156	890153	890154	890155	890157	890158	890159	890160	
PAK													
	acenaftien	0,00	0,00	0,00	0,00	1,45	0,04	0,00	0,00	0,34	0,00	0,13	467,95
	fluoreen	0,06	0,00	0,00	0,01	2,70	0,08	0,31	0,37	1,74	2,36	0,22	1262,66
	phenanthreen	4,02	4,52	0,19	0,41	19,43	0,68	3,17	3,92	15,30	19,62	1,86	9443,49
	anthraceen	1,47	1,52	0,04	0,10	6,78	0,23	1,12	1,25	<4,11	<4,49	0,55	3978,65
B	fluorantheen	14,06	15,03	0,68	1,13	32,05	1,28	5,68	6,60	30,35	39,38	3,75	15087,42
	pyreen	12,29	14,15	0,64	1,21	23,92	st	4,04	4,38	27,29	35,28	2,92	14389,19
	benzo(a)anthraceen	7,78	8,63	0,39	0,54	18,50	0,60	3,62	3,57	14,38	20,79	2,02	7467,79
	chryseen	7,17	7,28	0,39	0,50	15,79	0,51	3,21	3,36	12,23	18,26	2,03	6119,13
B	benzo(b)fluorantheen	7,48	7,97	0,45	0,57	18,04	0,59	3,63	3,49	13,36	20,64	2,28	5696,47
B	benzo(k)fluorantheen	3,79	3,94	0,22	0,29	9,47	0,31	1,89	1,80	7,11	9,67	1,14	3392,19
B	benzo(a)pyreen	8,17	8,59	0,42	0,64	18,87	0,66	3,97	3,58	14,35	18,89	2,29	7275,92
	dibenzo(a,h)anthraceen	st	st	st	st	st	st	st	st	st	st	st	st
B	benzo(g,h,i)perileen	11,63	12,74	0,43	0,64	27,75	0,64	6,33	5,39	24,36	36,96	3,73	9075,19
B	indeno(1,2,3-cd)pyreen	6,09	7,60	0,44	0,61	16,24	0,60	3,49	2,93	13,23	19,45	2,28	5253,53

B: Borneff-component

0: d.w.z. minder dan de grens van bepaalbaarheid

st: d.w.z. interferentie

890150: grond 1a: Kwikstaartstraat 63

890164: grond 1b: Kwikstaartstraat 63

890151: grond 2 : Wackerstraat 69

890152: grond 3 : Wackerstraat 90

890153: grond 4 : Edixhovenstraat 26

890154: grond 5 : Schoufertweide 2

890155: grond 6 : Wackerstraat 11

890156: grond 7 : Kwikstaartstraat 53

890157: grond 8 : Kwikstaartstraat 35

890158: grond 9 : Kinderspeelplaats a/d Kwikstaartstraat

890159: grond 10: Kwikstaartstraat 26

890160: grond 11: brok teer afkomstig van monsternr. 890158 "kinderspeelplaats a/d Kwikstaartstraat

Voor de component benzo(a)pyreen wordt in drie van de tien monsters de waarde 10 mg per kg overschreden. In totaliteit verschilt het gehalte van deze component in de bovengrond echter niet veel van de gehalten in de deklaag.

5. UITLOOGBAARHEID VAN PAK UIT DE GROND

5.1. Inleiding

De PAK in de bodem van het Lauraterrein zijn zoals ook uit de resultaten van het onderzoek aan een klomp pek blijkt (tabel 6) voor een belangrijk deel gebonden in het aanwezige pek waaruit ze, afhankelijk van de verweringsgraad, enigermate tot nagenoeg - niet beschikbaar kunnen komen. Ook vanuit mijnsteen en steenkoolgruis kan de beschikbaarheid niet- volledig zijn. Een en ander was aanleiding tot het uitvoeren van uitloogonderzoek aan enige representatieve bodemonsters afkomstig uit de wijk.

Bij het Projectbureau voor Industrieel Afval, alwaar dezelfde gedachte was gerijpt, was men in de loop van oktober 1988 en na overleg met het RIVM met schud- en roer-testen aan een drietal grondmonsters en een pekmonster begonnen. Het RIVM zou dit onderzoek completeren met de uitvoering van de kolomproef op een nader te selecteren monster.

Een viertal monsters werden door PBI aan het RIVM beschikbaar gesteld te weten:

- L1: mijnsteen met pek (gehalte benzo(a)pyreen circa 1 mg/kg)
- L2: mijnsteen met pek (gehalte benzo(a)pyreen 5 tot 10 mg/kg)
- L3: mijnsteen met pek (gehalte benzo(a)pyreen 40 tot 50 mg/kg)
- L4: puur pek

Aan de monsters L1, L2 en L3 werden beschikbaarheidsproeven verricht. Op grond van de uitkomsten werd aan monster L2 een kolomproef verricht (hoogste concentratie). Het pekmonster werd vooralsnog niet door het RIVM onderzocht.

5.2. Monsterneming en monstervoorbereiding

De monsters L1 t/m L4 van het Lauraterrein werden op 10-11-1988 ontvangen. De monstervoorbereiding en monsterverkleining zou door PBI worden gedaan. De monsters voor het RIVM zouden door PBI worden samengesteld uit monsters uit het onderzoek van PBI. Er zou een monster met een BaP-gehalte tussen 0.05 en 1 mg/kg droge stof (ds), een monster met een BaP-gehalte tussen 1 en 10 mg/kg ds en een monster met een BaP-gehalte groter dan 10 mg/kg ds worden samengesteld. Deze monsters waren gecodeerd L₁, L₂ en L₃. Monster L4 bestond overwegend uit pekdeeltjes. Bij ontvangst bleken de monsters L1, L2 en L3 echter veel deeltjes te bevatten die groter waren dan 5 mm. Daarom werden de monsters eerst gedroogd en vervolgens met een bekkenbreker verkleind tot de deeltjes met een maximale korrelgrootte van 2,8 mm hadden. Vervolgens werd elk monster met behulp van een roterende monsterverdeler verdeeld. Voor de bepaling van de maximale uitloogbaarheid met de beschikbaarheidsproef werd een klein gedeelte van het monster verkleind met een mortiermolen tot deeltjes met een maximale korrelgrootte van 100 µm.

5.3. De standaarduitloogtest

In een teflon kolom (diameter 5 cm, lengte 60 cm) werd het te onderzoeken materiaal (S kg, maximale deeltjesgrootte 3 mm) upflow uitgelooft met op pH=4 gebracht (HNO₃) gedemineraliseerd water [2]. Het aangezuurde gedemineraliseerde water simuleert het regenwater in Nederland. Het percolatiewater, dat de kolom met een constante snelheid (circa 0.5 L/S per dag) verliet, werd gefiltreerd (0.45 µm, geregenereerd cellulose filter) en in frakties opgevangen. De verhouding L/S is een maat voor de hoeveelheid percolatiewater (L liter), die gedurende een zekere tijd de kolom, welke met S kg materiaal is gevuld, is gepasseerd en is gerelateerd aan de uitloogtijd in de praktijk. Nadat cumulatieve L/S ratio's van respectievelijk 0.1, 0.5, 1, 2, 3, 5, 10 werden bereikt, werden uit de verkregen frakties representatieve monsters voor analyse genomen. Om praktische redenen werd de kolomproef na drie weken beëindigd bij een cumulatieve L/S=10. Zo snel mogelijk na de filtratie van de percolaten werden de pH en de geleidbaarheid gemeten. Daarna werden de percolaten met 65% salpeterzuur (Suprapur) aangezuurd tot pH=4.

De beschikbaarheidsproef is een roertest, die werd uitgevoerd met een L/S-verhouding van 100 waarbij de pH van het uitloogmedium gedurende 4 uur, onder toevoeging van 1 m salpeterzuur c.q. 1 m natronloog, met een stuurautomaat op pH=4 werd gehouden. Zo snel mogelijk na beëindiging van de proef werd het extract gefiltreerd (0.45 μm , geregenereerd cellulose filter) en met 65% salpeterzuur aangezuurd tot pH=4.

Voor de kolomproef werd 1000 g ingewogen en voor de beschikbaarheidstest werd 15 g ingewogen. De kolomproef werd in triplo uitgevoerd waarbij de percolaten van twee kolommen per fractie gemengd werden. De analyse van de fracties werd dus in duplo uitgevoerd. Bovendien werd een standaardadditie uitgevoerd om een schatting te kunnen maken van de betrouwbaarheid van de uitgevoerde metingen. De preciese uitvoering en de theoretische achtergronden van alle bovengenoemde proeven zijn beschreven in NVN 2508 [3].

5.4. Opwerking van de percolaten

Recent is de standaard uitloog test (SU-test) [2], die toegespitst is op de bestudering van anorganische componenten in overwegend anorganische matrices, aangepast voor de bestudering van organische verontreinigingen in overwegend anorganische matrices [3]. Dit betekent dat bij de opvang van percolaten en extracten voorzorgen moeten worden genomen om de ontleding van PAK tegen te gaan. Bovendien moeten bij de uitvoering van de SU-test, zowel voor wat betreft monsterconservering, opwerking als overbrenging maatregelen worden getroffen om adsorptie van de in water slecht oplosbare PAK aan de wanden van glaswerk, leidingen en filters te voorkomen. Aan de waterige fracties en extracten werd daarom zoveel methanol (MeOH) toegevoegd dat de verhouding $\text{H}_2\text{O}/\text{MeOH}$ circa 80/20 (v/v) was. De pH van het watermonster werd ingesteld op 4. Daarna werden de monsters zo snel mogelijk opgewerkt. De watermonsters werden, volgens voorschrift, via een kolom van het type SPE C-18 geëxtraheerd [3]. In de verkregen eluaten (PAK in acetonitril) werden de concentraties van de PAK gemeten door middel van HPLC-analyse. Vervolgens werden de concentraties in de waterige percolaten en extracten berekend op basis van bekende concentreringsfactoren.

5.5. Metingen

5.5.1. pH en geleidbaarheid.

De pH werd gemeten met een Orion pH-meter (model 6011), zie ook fig 1, en de geleidbaarheid K20 met een Metrohm-geleidbaarheidsmeter (model E518), zie fig. 2. De geleidbaarheid is een maat voor de ionsterkte van de oplossing.

5.5.2. Analyse van PAK.

De opwerking van de watermonsters werd uitgevoerd met onderstaande hulpmiddelen:

SPE-21 extraktieapparaat, J.T.Baker.

SPE C-18 disposable extraktiekolommen, 500 mg octadecyl, J.T.Baker.

2 ml glazen vaatjes, schroefkap met tefloninleg

Methanol p.a., Merck

Dichloormethaan p.a., Merck

Hexaan p.a., Merck

Acetonitril HPLC-grade, J.T.Baker

Glaswerk: 1) Ultrasoon reinigen in water

2) Spoelen met gedemineraliseerd water

3) Spoelen met aceton

4) Spoelen met hexaan

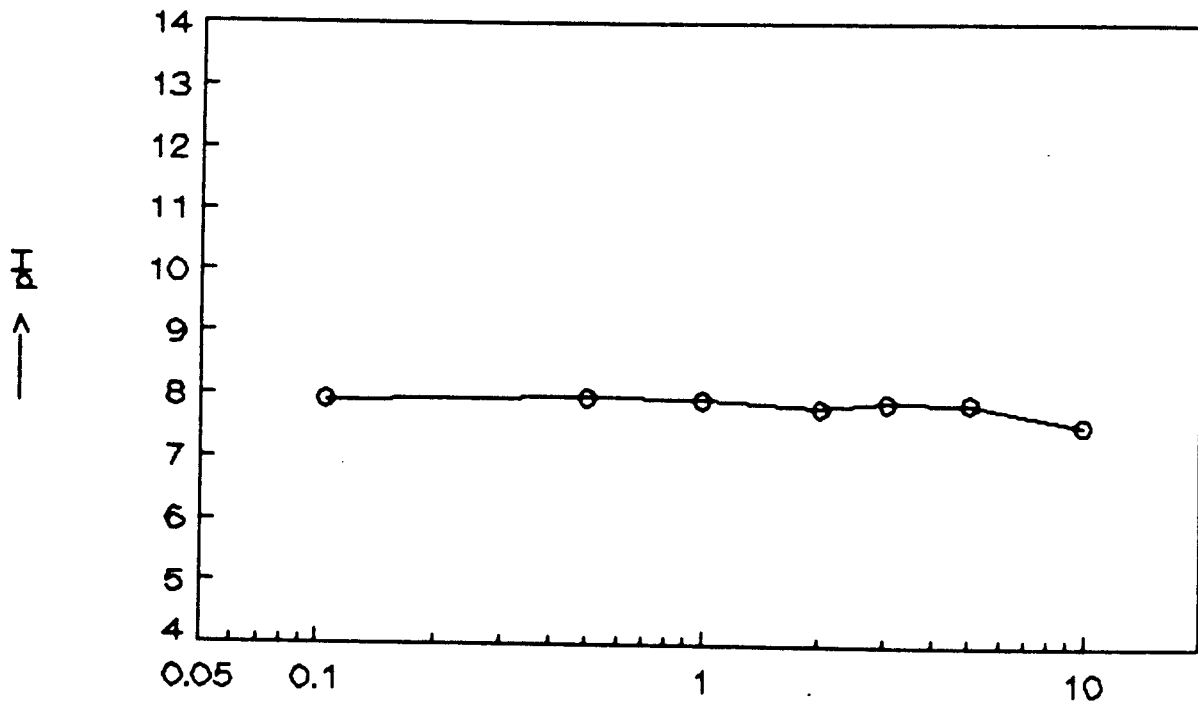
De analyse van de PAK geschiedde met hogedrukvloeistof-chromatografie (HPLC) met als detektie U.V. (diode-array). Met deze detector kan in principe voor elke PAK de meest gevoelige golflengte geselecteerd kan worden. In de praktijk worden vier golflengten geselecteerd voor de 16 EPA-PAK.

Kolom	:	ChromSep 100*3mm(L*ID), Chromspher PAH 3 μ , Chrompack
Mobiele fase	:	ACN/H ₂ O, HPLC-grade, J.T.Baker
Ontgassing	:	Helium
Detektie	:	UV; LKB diode-array 210-310 nm (stapgrootte 1 nm)
228nm	--	Na, Acy en Ace
238nm	--	Fla, Py
254nm	--	F1, Ph, An, BaA, Chr
297nm	--	BbF, BkF, BaP, DiA, BPe, IP

LAURATERREIN L2

pH

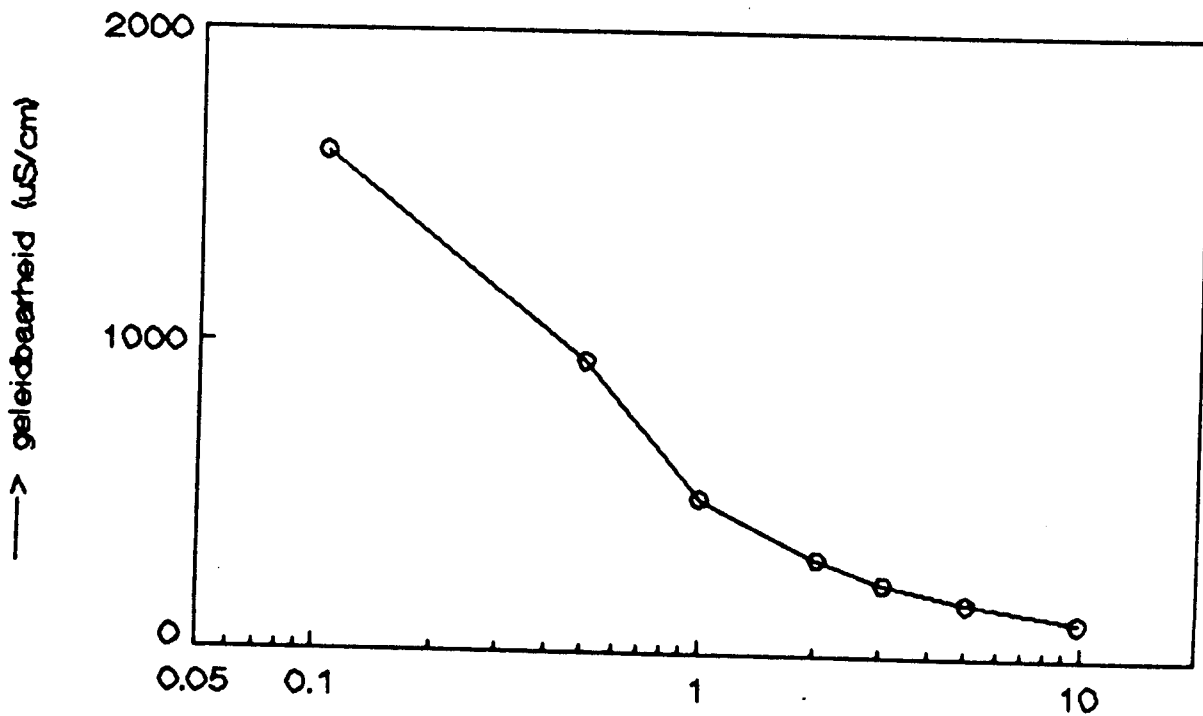
—○— pH



Figuur 1

---> cumulatieve L/S

Geleidbaarheid

—○— conc
($\mu\text{g/l}$)

Figuur 2

---> cumulatieve L/S

Gradientprogramma: 0-5 min -- 40% ACN
 5-20 min -- 40-100% ACN (lineair)
 20-30 min -- 100% ACN
 Debiet: 0,5 ml/min

5.6. Detektielgrenzen

De detektielgrenzen worden bepaald door de gevoeligheid van de detector en het volume van het watermonster dat voor extractie beschikbaar is. Deze laatste wordt bepaald door de L/S-waarde van de op te werken fraktie. In deze experimenten werd voor de kolomproef 1 kg ingewogen. Voor 1 l watermonster, zijn de detektielgrenzen (D.G.) weergegeven in Tabel 7.

Tabel 7. Detektielgrenzen en oplosbaarheden PAK (L/S=1, 1 kg grond)

PAK	η (nm)	D.G.($\mu\text{g/l}$)*	oplosbaarheid ($\mu\text{g/l}$ **)
Naf	228	0.15	31700
Acy	228	0.15	--
Ace	228	0.05	3930
Fl	254	0.15	1685
Ph	254	0.05	1000
An	254	0.05	45
Fla	238	0.1	206
Py	238	0.05	132
BaA	254	0.1	9,4
Chr	254	0.05	1,8
BbF	297	0.1	1,5
BkF	297	0.1	0,8
BaP	297	0.1	1,6
DiA	297	0.05	0,7
BPe	297	0.1	0,5
IP	297	0.1	0,2

*) D.G.: detektielgrenzen

***) oplosbaarheid in H_2O bij 25 °C

In deze tabel zijn tevens de maximale oplosbaarheden in water vermeld. Indien de hoeveelheid beschikbaar percolaat of extract anders is dan 1 liter zijn de detektiegrenzen overeenkomstig hoger dan wel lager.

5.7. Resultaten beschikbaarheidstest

Aan de monsters L1, L2 en L3 werd de maximale uitloogbaarheid bepaald met de beschikbaarheidsproef. De pieken in de verkregen chromatogrammen werden geïdentificeerd door vergelijking met standaarden op retentietijd en door vergelijking van het UV-spectrum van de pieken met die van standaarden. De gemeten concentraties zijn vermeld in Tabel 8. Tevens zijn in deze tabel de concentratietrajecten gegeven. Deze zijn overgenomen uit de rapportage van PBI ([5], blz 34 en bijlage 1a).

Tabel 8. PAK-concentraties verkregen bij de beschikbaarheidsproeven ($\mu\text{g}/\text{l}$) volgens RIVM-onderzoek en de concentratietrajecten volgens PBI [5].

verbinding	RIVM			PBI		
	L1	L2	L3	L1	L2	L3
naftaleen						
acenaftyleen						
acenaftheen						
fluoreen			0,21		0,3-0,9	
fenanthreen		2,0	0,56	1,4	0,9-8,4	13-150
antraceen		0,25	0,18	0,3	0,2-2,4	4,4-40
fluorantheen		1,0	0,22	1,7	2,2-12	23-315
pyreen		0,85	0,19	1,2	1,5-12	18-240
benzo(a)anthraceen						
chryseen					3,5-7,8	
benzo(b)fluorantheen						
benzo(k)fluorantheen						
benzo(a)pyreen				0,7	1,2-7,8	12-185
dibenzo(a,h)anthraceen						
benzo(ghi)peryleen						
indeno(123 cd)pyreen						
totaal PAK		4,1	1,4	5,7	4,4-44,4	71-942

Geen waarde betekent niet kwantitatief meetbaar.

Het chromatogram van monster L3 bevat, naast de geïdentificeerde pieken, pieken van verbindingen met retentietijden die gedeeltelijk overeen komen met de retentietijden van de 16 Environmental Protection Agency (EPA)-PAK, maar vergelijking van deze pieken met die van de UV-spectra van de EPA-PAK leverde geen eenduidige identificatie op. Uit de resultaten (hoogste concentraties) van de beschikbaarheidsproef is monster L2 gekozen om te worden uitgeloozd met de kolomproef van de SU-test.

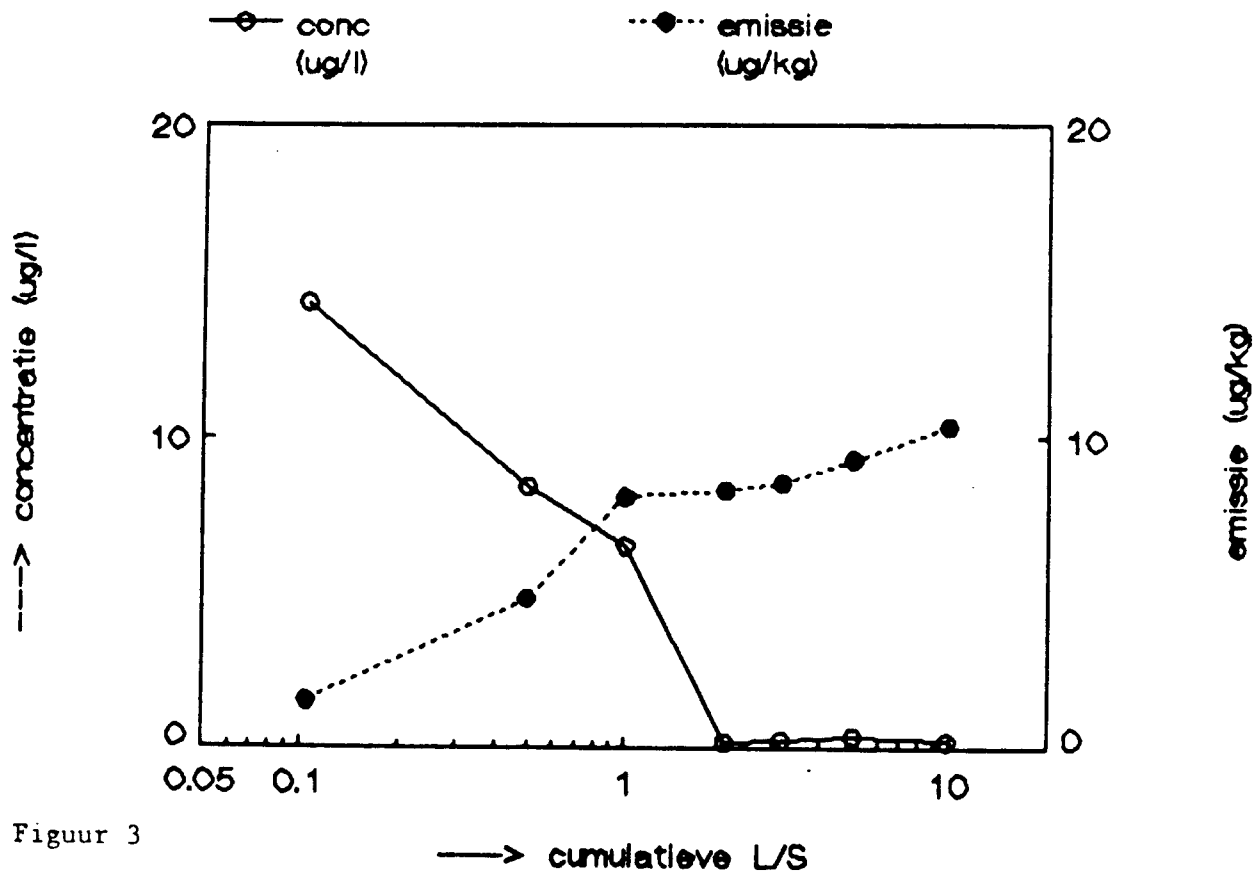
5.8. Kolomproef met monster L2

In de figuren 1 en 2 zijn de pH en de geleidbaarheidscurve van de kolomproef weergegeven. In de figuren 3 t/m 9 zijn de uitloogcurven en de cumulatieve emissies van de afzonderlijke PAK en de totaal uitgeloozde hoeveelheden tot cumulatieve L/S=10 weergegeven. De absolute waarden van de concentraties en emissies staan in Tabel 9.

Tabel 9. Uitlooggegevens LAURA L2 kolomproef

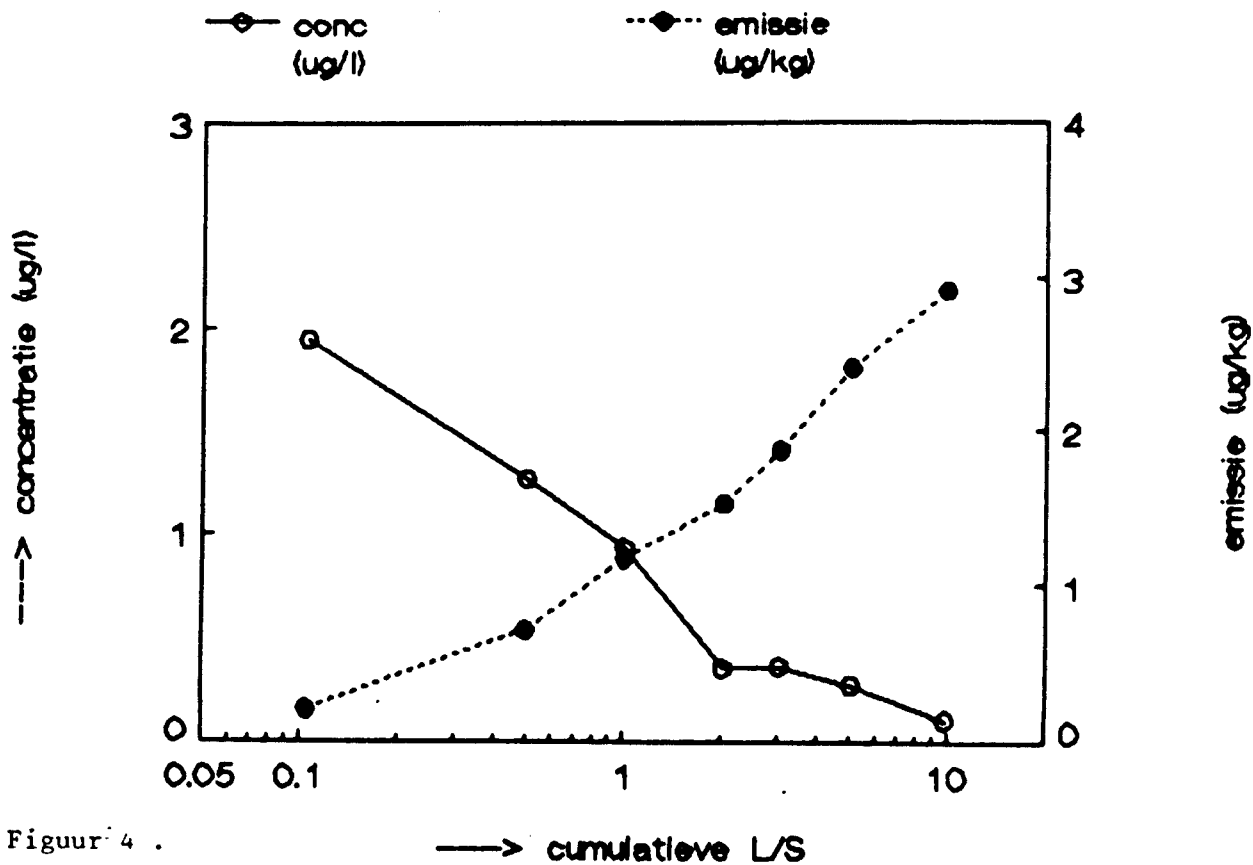
Cum. L/S	pH	K20	Fenanthreen		Anthraceen		Fluorantheen		Pyreen		Chryseen		Totaal PAK	
	Gem.	Gem.	Conc.	Cum. mg/kg	Conc.	Cum. mg/kg	Conc.	Cum. mg/kg	Conc.	Cum. mg/kg	Conc.	Cum. mg/kg	Conc.	Cum. mg/kg
0,11	7,92	1613	14,36	1,51	1,95	0,20	7,22	0,76	3,75	0,39	< 0,25	0,00	27,28	2,86
0,50	7,96	944	8,43	4,84	1,26	0,70	5,24	2,83	3,09	1,61	< 0,1	0,00	18,02	9,98
1,00	7,93	497	6,52	8,09	0,93	1,17	4,04	4,85	2,22	2,72	< 0,1	0,00	13,71	16,83
2,04	7,80	305	0,20	8,30	0,34	1,52	2,01	6,93	1,09	3,85	< 0,05	0,00	3,64	20,60
3,04	7,90	225	0,25	8,54	0,35	1,88	1,86	8,79	0,93	4,79	< 0,05	0,00	3,39	24,00
5,03	7,89	169	0,38	9,30	0,27	2,41	1,84	12,45	0,97	6,72	< 0,05	0,00	3,46	30,88
9,89	7,54	114	0,22	10,37	0,10	2,92	0,26	13,73	0,19	7,63	0,11	0,55	0,88	35,20

LAURATERREIN L2 Fenanthreen



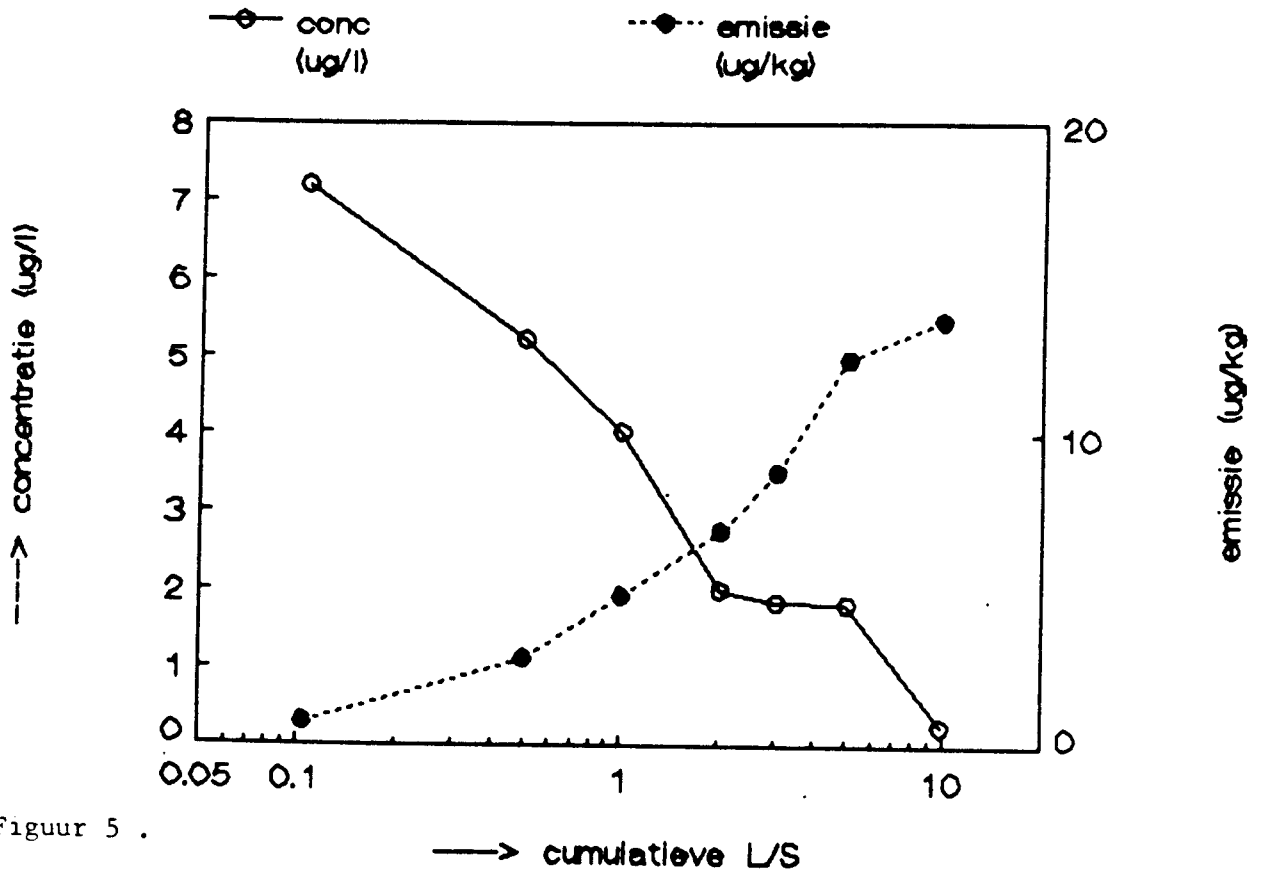
Figuur 3

Anthraceen



Figuur 4

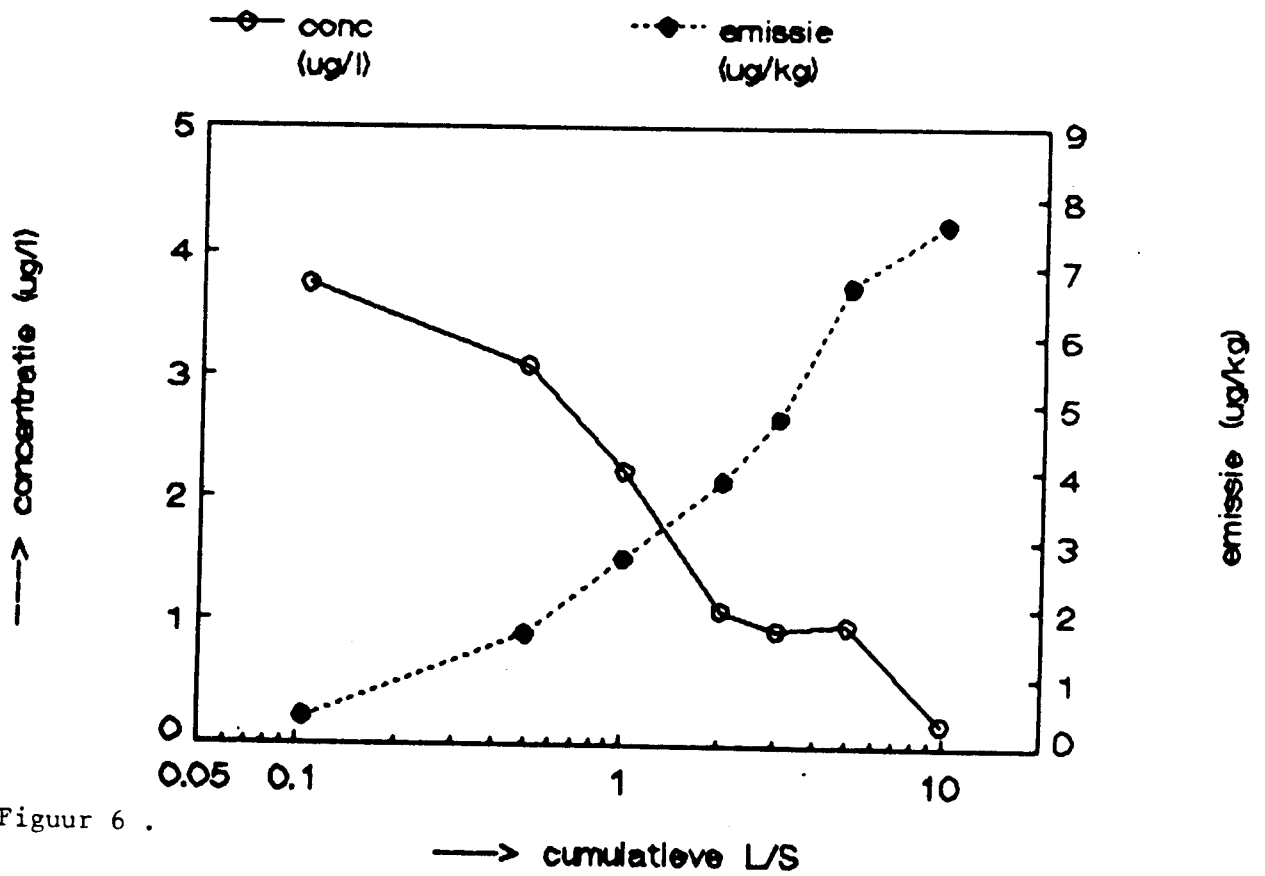
LAURATERREIN L2 Fluorantheen



Figuur 5 .

—> cumulatieve L/S

Pyreen

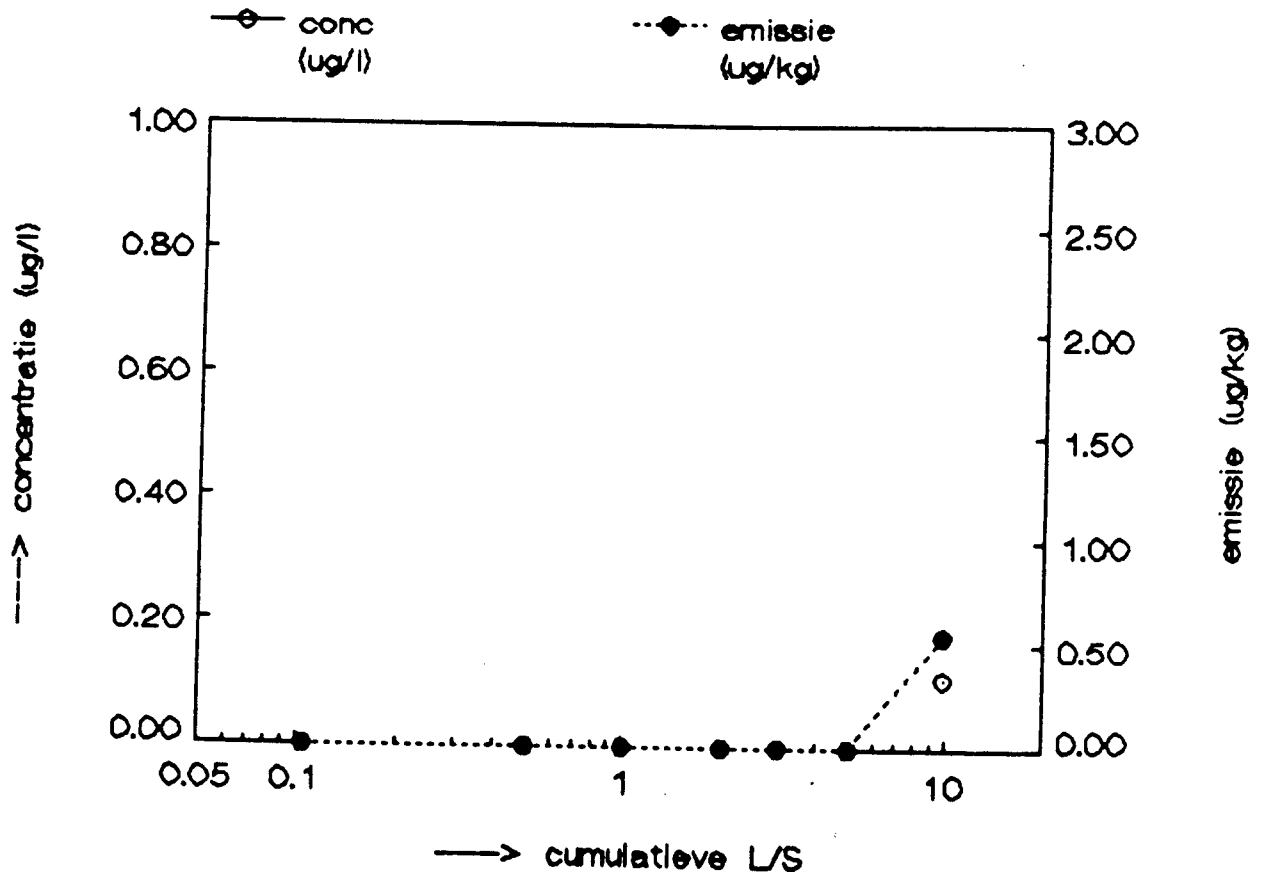


Figuur 6 .

—> cumulatieve L/S

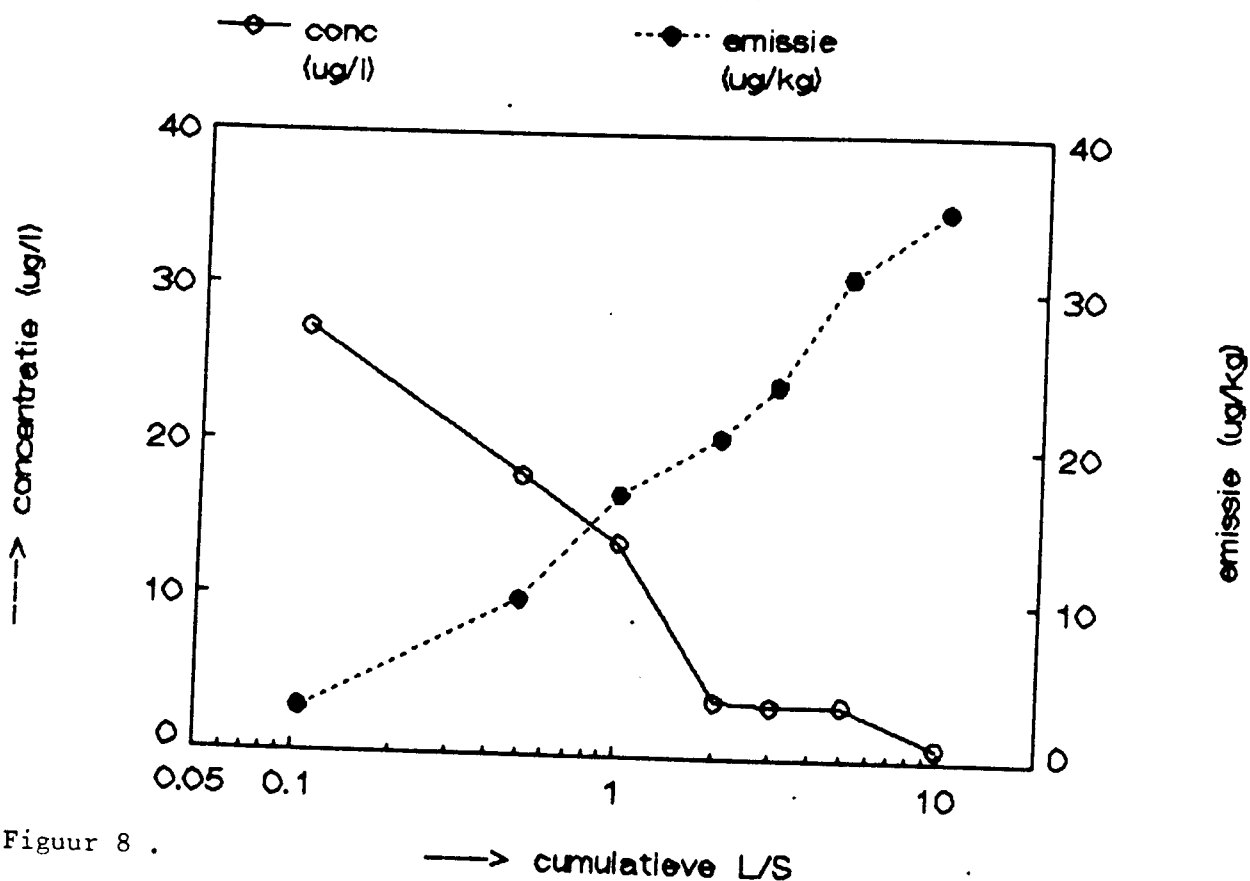
LAURATERREIN L2

Chryseen



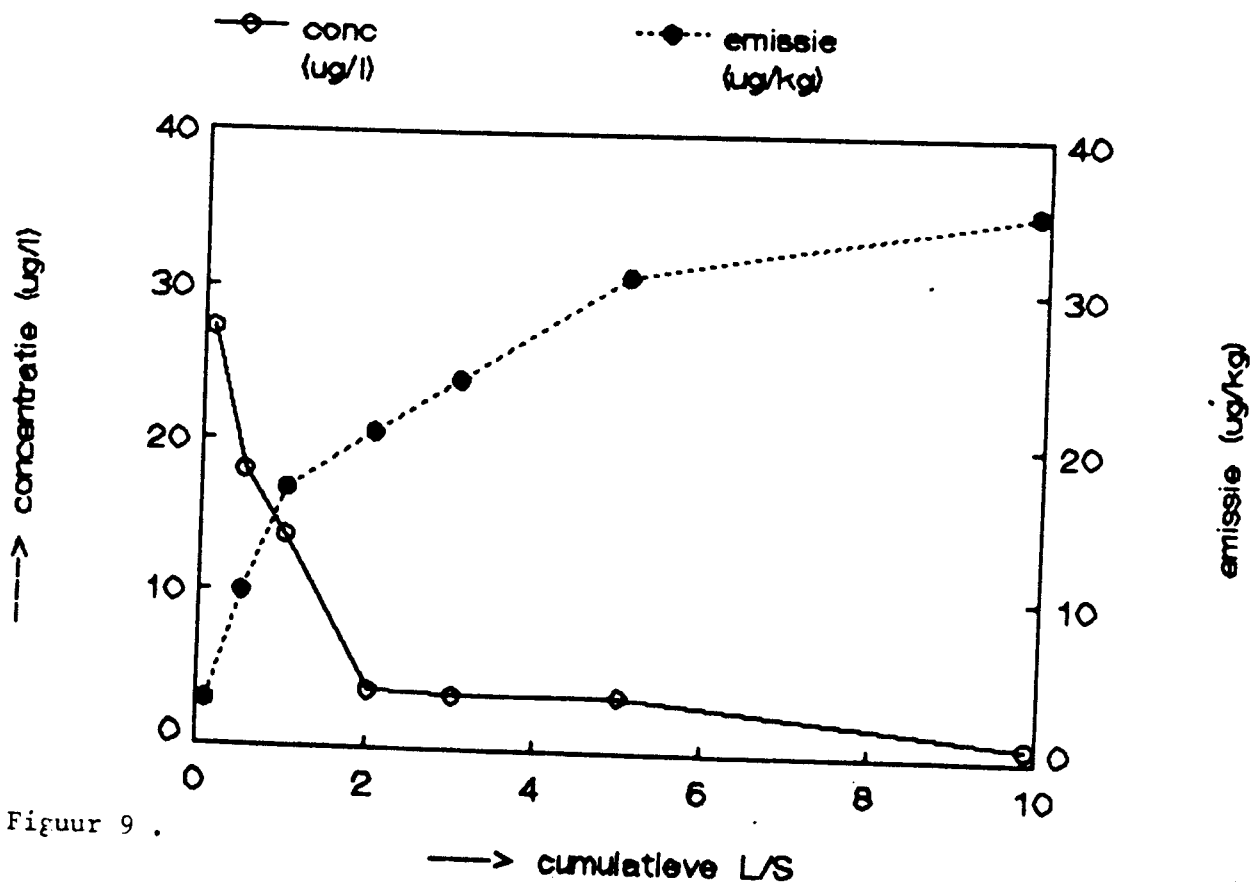
Figuur 7 .

LAURATERREIN L2 totaal PAK



Figuur 8 .

totaal PAK



Figuur 9 .

5.9. Discussie

Uit Tabel 9 blijkt dat het extract verkregen met de beschikbaarheidsproef met monster L2 de hoogste uitloging gaf. Op grond van deze uitlooggegevens is monster L2 voor nader uitloogonderzoek geselecteerd.

5.9.1. Toetsingstabel grondwaterkwaliteit

Voor de beoordeling van concentratieniveaus in grond en grondwater bestaat de toetsingstabel (A-, B- en C-waarde) van de interimwet op de bodemsanering [4]. De A-waarde is de referentiewaarde, de B-waarde de toetsingswaarde voor (nader) onderzoek en de C-waarde is de toetsingswaarde voor saneringsonderzoek. In Tabel 10 zijn de A-, B- en C waarden voor PAK vermeld.

Tabel 10. Toetsingstabel grondwater voor PAK ($\mu\text{g/l}$).

verbinding	A	B	C
naftaleen	0,2	7	30
fenanthreen	0,1	2	10
antraceen	0,1	2	10
fluorantheen	0,02	1	5
pyreen	0,02	1	5
benzo(a)pyreen	0,01	0,2	1
totaal PAK	0,2	10	40

Vergelijking van de detektiegrenzen (Tabel 7) met de toetsingswaarden laat zien dat altijd de B-waarde en meestal ook de A-waarde gemeten kon worden. Inmiddels is de methode aangepast en zijn alle A-waarden kwantificeerbaar.

5.9.2. Fenanthreen

De eerste fractie van de kolomproef ($L/S=0.1$) ligt boven de C-waarde. Tot $L/S=1$ blijft de uitgeloopte concentratie boven de B-waarde. Tot het einde van de kolomproef lag de uitgeloopte concentratie nabij de detectiegrens, en was tweemaal hoger dan de A-waarde. De cumulatieve emissie tot $L/S=10$ bedroeg $10,4 \mu\text{g}$ per kg, dit is maximaal 1% van het vaste stofgehalte.

5.9.3. Anthraceen

De uitgeloopte concentratie anthraceen lag tussen de A- en de B-waarde. De totale emissie aan het einde van de kolomproef bedroeg $2,9 \mu\text{g}$ per kg, hetgeen maximaal 1,5% is van het vaste stofgehalte.

5.9.4. Fluorantheen

De C-waarde werd tot $L/S=0.5$ overschreden. Nadat een vloeistof-vast-ratio van drie was bereikt, werd de gemeten fluorantheen concentratie lager dan de B-waarde ($1 \mu\text{g}$ per l). De totale emissie van de kolomproef bedroeg $13,7 \mu\text{g}$ per kg, dit is maximaal 0,7% is van het vaste stofgehalte.

5.9.5. Pyreen

In de eerste vier percolaatfrakties van de kolomproef (tot $L/S=2$) was de concentratie boven de B-waarde ($1 \mu\text{g}$ per l). De cumulatieve emissie van pyreen tot $L/S=10$ bedroeg $7,6 \mu\text{g}$ per kg, hetgeen maximaal 0,5% is van het vaste stofgehalte.

5.9.6. Totaal PAK

De totaal concentratie PAK gaf ten opzichte van de toetsingstabel tot $L/S=1$ een overschrijding van de B-waarde aan. De C-waarde van $40 \mu\text{g}$ per l werd niet overschreden. Ook werd benzo(a)pyreen niet aangetoond in de percolaten. De totale cumulatieve emissie van PAK in de kolomproef bedroeg $35 \mu\text{g}$ per kg.

5.10. CONCLUSIES

De deeltjes in de uit te logen monsters werden voor uitvoering van de SU-test verkleind. Daardoor zal het gemiddelde uitloogbaar oppervlak van de (pek)deeltjes toenemen en groter zijn dan die van de bodem van het Lauraterrein. Indien er vanuit wordt gegaan dat de PAK afkomstig zijn uit de pekdeeltjes, dan beschrijft de SU-test een "worst-case" uitloging. In aanmerking nemend dat het grondwaterpeil op meer dan 5 meter diepte ligt en de uitloging relatief gering is, lijkt verontreiniging van het grondwater niet waarschijnlijk.

Indien bij de risico-schatting met betrekking tot de gezondheid van de bewoners van het "Laura-terrein" uitgegaan wordt van volledige uitloogbaarheid/beschikbaarheid van de PAK dan houdt dit gezien de hiervoor vermelde resultaten een zekere overschatting in. Aangezien de resultaten van het beschikbaarheidsonderzoek echter moeilijk weegbaar blijken worden zij bij de uitwerking van de risico-evaluatie niettemin buiten beschouwing gelaten.

6. RISICO'S VOOR DE GEZONDHEID

6.1. UITGANGSPUNTEN EN AANPAK

Op het gedeeltelijk met woningen bebouwde terrein van de voormalige mijn Laura zijn bij bodemanalysen gehalten PAK aangetroffen welke hoger zijn dan normaal en welke in een aantal gevallen de B- of C-waarden uit de Leidraad Bodemsanering overschrijden. Op grond hiervan werd reeds besloten tot sanering van het terrein. Voor een uitvoeriger toelichting en voor de voorgeschiedenis wordt verwezen naar Hoofdstuk I van dit rapport en naar het rapport van het Projectbureau voor Industrieel Afval B.V. (PBI) [1].

Polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK) vormen een grote groep verwante verbindingen waarvan een aantal kankerverwekkende eigenschappen heeft. PAK worden gevormd bij allerlei soorten verbrandingsprocessen, zoals die voorkomen in verbrandingsmotoren, houtkachels, bereiding van voedsel, roken van sigaretten en bepaalde industriële processen (o.a. de produktie van cokes). Als gevolg hiervan worden PAK aangetroffen in de voeding en in de lucht. PAK vormen een bestanddeel van steenkool, teer en pek.

Algemeen uitgangspunt is dat de blootstelling aan kankerverwekkende stoffen zo laag mogelijk moet zijn. Waar blootstelling niet vermeden kan worden, is het mogelijk met bepaalde procedures de risico's te schatten. Voor de opname van PAK via voeding en lucht zijn dergelijke risicoschattingen gegeven in het basisdocument over PAK, dat door het RIVM is samengesteld en binnenkort zal worden uitgebracht [6].

In het nu voorliggende hoofdstuk wordt ingegaan op de vraag of voor de bewoners van het voormalige Lauraterrein te Kerkrade een verhoogd risico zou kunnen bestaan voor de gezondheid, als gevolg van blootstelling aan de in de bodem aangetroffen PAK. De vraag is toegespitst op de kankerverwekkende eigenschappen van de PAK. Gelet is op de opname via de mond, via de huid en via inademing. Voor deze opnames kunnen met meer of minder zekerheid schattingen gemaakt worden op basis van bepalingen van de PAK-gehalten in de bodem en in de lucht. Deze bepalingen zijn uitgevoerd door PBI [5], het RIVM heeft de in verband met deze evaluatie noodzakelijke aanvullende metingen uitgevoerd. Voor opname via de mond en de ademlucht

zijn risicoschattingen berekend op basis van de in het Basisdocument PAK [6] gegeven methodiek. Voor blootstelling via de huid is in dit hoofdstuk een originele benadering uitgewerkt.

De boven aangeduide vraagstelling houdt in dat in dit rapport geen aandacht wordt besteed aan de mogelijke nadelige gevolgen van de gevonden PAK-gehalten voor in bodem en oppervlaktewater levende organismen.

6.2. OPNAME VIA DE MOND

6.2.1. Verschillende bronnen

De volgende wegen zijn in principe mogelijk:

- 1- opname via drinkwater;
- 2- opname via op het terrein geteelde groente;
- 3- opname van grond door spelende kinderen.

Ad 1: In grondwatermonsters zijn geen PAK aangetroffen. De uitspoeling van PAK uit grond is gering, en PAK zijn zeer slecht in water oplosbaar. Gezien het bovenstaande en de afwezigheid van PAK in drinkwatermonsters [5] wordt geconcludeerd dat opname van PAK via drinkwater geen rol speelt.

Ad 2: Opname van PAK door de wortels van planten is verwaarloosbaar. Opname van PAK via groente zou alleen van belang kunnen zijn wanneer PAK-houdend stof uit de lucht zich op bladgroente afzet. De gemeten PAK-concentraties in luchtstof (zie "Opname via de lucht") geven geen aanleiding te veronderstellen dat dit een rol speelt.

Ad 3: De bijdrage hiervan is van belang. Hieronder is een risicoberekening uitgewerkt op basis van meetgegevens van PBI en RIVM. De berekeningen zijn uitgevoerd met één van de PAK, namelijk benzo(a)pyreen, dat als gidsstof kan fungeren.

6.2.2. Opname van grond door kinderen

Er wordt van uitgegaan dat een spelend kind per dag ongeveer 200 mg grond (drooggewicht) binnenkrijgt en dat dit ongeveer 100 dagen per jaar plaatsvindt (schatting op grond van onderzoek door de LU Wageningen). Ook wordt aangenomen, bij gebrek aan exacte gegevens, dat alle door de mond ingenomen PAK ook werkelijk door het lichaam wordt opgenomen (biologische beschikbaarheid van 100%).

De door PBI gemeten gehalten benzo(a)pyreen in de deklaag (gerekend tot 50 cm diepte) varieerden van 0,3 tot 120 mg per kg droge grond (gemiddelde

12,8). De later door het RIVM gemeten gehalten in de bovenste 5 cm laag van de bodem liggen vrijwel in hetzelfde gebied, namelijk tussen 0,4 en 18,9 mg benzo(a)pyreen per kg droge grond, met een gemiddelde van 7,3 (tabel 6). Uitgaand van een waarde van 15 mg benzo(a)pyreen per kg grond zou een kind volgens de hierboven genoemde veronderstellingen $200 \times 15 \times 10^{-6} \text{ mg} = 3 \mu\text{g}$ benzo(a)pyreen per dag kunnen opnemen, ofwel $3/14$ (lichaamsgewicht van een kind op 14 kg gesteld) = 210 ng benzo(a)pyreen per kg lichaamsgewicht per dag. Uitgaand van 100 dagen per jaar wordt dit gemiddeld over een jaar 58 ng benzo(a)pyreen per kg lichaamsgewicht per dag. Volgens gegevens in het basisdocument PAK is de gemiddelde opname van benzo(a)pyreen via de voeding in Nederland 2 ng per kg lichaamsgewicht per dag.

6.2.3. Mogelijke bijdrage van PAK in vloerstof

Door het RIVM zijn in 5 woningen op het Lauraterrein en 3 woningen elders in het land monsters vloerstof genomen en op hun PAK-gehalten onderzocht. Voorafgaand aan de monsternamen was 3 dagen niet schoongemaakt. Gehalten benzo(a)pyreen in vloerstof uit woningen op het Lauraterrein varieerden van 0,5 tot 3,5 mg per kg stof (gemiddeld 1,3). Voor de "controlewoningen" werd 0,14 tot 0,41 mg benzo(a)pyreen per kg stof (gemiddeld 0,31) gevonden (zie tabel 4). Hoewel het aantal meetgegevens klein is, geven ze wel aan dat vloerstof in woningen op het Lauraterrein meer benzo(a)pyreen bevat dan in woningen elders, maar niet zo veel als de buitenshuis onderzochte grond. Geschat is dat de hoeveelheid vloerstof welke een klein kind per dag via de mond binnenkrijgt in elk geval niet groter is dan 100 mg. Voor het gemiddeld gemeten gehalte van 1,3 mg benzo(a)pyreen per kg stof zou dit een opname betekenen van $1,3 \times 10^{-4} \text{ mg} = 130 \text{ ng}$ per dag, ofwel $130/14$ (lichaamsgewicht kind) = 9,3 ng per kg lichaamsgewicht per dag. Dit is 6 à 7 x minder dan voor opname vanuit buitengrond is berekend maar ca. 5 maal meer dan gemiddeld via de voeding wordt opgenomen (zie 6.2.2.).

6.2.4. Risicoschatting benzo(a)pyreen in voeding

In het basisdocument PAK [6] is een risicoschatting gegeven voor opname van benzo(a)pyreen via de mond welke is gebaseerd op experimenten met muizen.

Volgens deze schatting zou de hoeveelheid benzo(a)pyreen in voeding (2 ng per kg lichaamsgewicht per dag) maximaal een extra kans op kanker opleveren van 1 per 10-20 miljoen. Dat wil zeggen, dat van elke 10-20 miljoen mensen die hun leven lang dagelijks 2 ng benzo(a)pyreen per kg lichaamsgewicht zouden opnemen, maximaal één persoon ten gevolge hiervan kanker zou kunnen oplopen. De totale incidentie van alle vormen van kanker in Nederland is op het ogenblik 1 per 3-4 inwoners. Het Ministerie van VROM heeft voor het kankerrisico ten gevolge van één enkele stof een "verwaarloosbaarheidsniveau" van 1 per 100 miljoen per jaar vastgesteld, overeenkomend met 1 per miljoen gedurende het leven, en een "maximaal toelaatbaar niveau" van 1 per miljoen per jaar, overeenkomend met 1 per 10.000 gedurende het leven. De met deze twee risicogrenzen corresponderende hoeveelheden oraal opgenomen benzo(a)pyreen zijn 20-40 respectievelijk 2000-4000 ng per kg lichaamsgewicht per dag, gedurende het leven.

6.2.5. Risicoschatting Lauraterrein

De voor het Lauraterrein onder 6.2.2. geschatte opname van benzo(a)pyreen door kinderen uit grond en vloerstof blijkt in de orde van 35 maal de opname via voeding te bedragen. Terwijl voor benzo(a)pyreen in de voeding geldt dat het risico duidelijk onder het "verwaarloosbaarheidsniveau" valt, kan het risico door opname van "Lauragrond" deze grens overschrijden. Het zal echter onder het "maximaal toelaatbare niveau" blijven. Het risico voor de onder 6.2.3. geschatte opname van vloerstof alleen ligt onder het "verwaarloosbaarheidsniveau".

Tot nu toe is alleen rekening gehouden met één enkele PAK, namelijk benzo(a)pyreen. De PAK komen echter altijd als groep voor. Voor het risico van alle kankerverwekkende PAK samen wordt in de literatuur gesteld dat het ca. 10 maal zo hoog is als het risico voor benzo(a)pyreen alleen. Deze factor kan afwijken van 10, afhankelijk van de samenstelling van het PAK-mengsel in elke specifieke situatie. Op grond van de door PBI en RIVM uitgevoerde metingen kan worden gesteld dat het PAK-profiel op het Lauraterrein zodanig is, dat het risico voor "totaal-PAK" eerder in de orde van 2-5 maal dat voor benzo(a)pyreen zal zijn. Dit houdt in dat ook het risico voor totaal-PAK in grond onder het "maximaal toelaatbaar niveau" blijft en het risico

voor totaal-PAK in vloerstof maximaal juist de "verwaarloosbaarheidsgrens" kan overschrijden.

Het werkelijke risico is lager dan boven berekend, omdat (a) de gebruikte lineaire extrapolatiemethode in principe een overschatting van het risico geeft, (b) inname van grond door kinderen niet gedurende het gehele leven maar slechts gedurende enkele jaren plaatsvindt, (c) de biologische beschikbaarheid van aan grond gebonden PAK geen 100% bedraagt (zie ook hoofdstuk 5) en (d) juist de hoogste gehalten in grond bepaald kunnen zijn door de aanwezigheid van pekdeeltjes, waaruit de biologische beschikbaarheid van PAK nog lager zal zijn dan uit grond. Hoe groot de overschatting van het risico is door het onder punt (b) genoemde is moeilijk te wegen: opname vindt weliswaar slechts plaats gedurende enkele jaren, maar jonge kinderen zouden relatief gevoelig kunnen zijn.

6.2.6. Conclusie met betrekking tot opname via de mond

Geconcludeerd wordt dat - onder de gestelde aannames - de opname van verontreinigde grond op het Lauraterrein door spelende kinderen tot PAK-opnames kan leiden die aanzienlijk hoger liggen dan de hoeveelheid welke normaal via de voeding wordt opgenomen. De hieraan gekoppelde risico's zullen de door het Ministerie van VROM aangegeven "verwaarloosbaarheidsgrens" van ca. 1 extra kanker geval per miljoen over het gehele leven kunnen overschrijden, maar het "maximaal toelaatbaar niveau" van 1 extra kanker geval per 10.000 over het gehele leven niet bereiken. Dit houdt in, gezien het aantal op het Lauraterrein wonende personen, dat zich als gevolg van het eten van verontreinigde grond door kinderen één extra kanker geval in een periode van vele eeuwen zou kunnen voordoen, wanneer de verontreinigingssituatie zo lang zou voortduren.

6.3. OPNAME VIA DE HUID

Opname van stoffen uit verontreinigde grond door de huid kan voorkomen bij buiten spelende kinderen en bij volwassenen bij bv. werken in de tuin. De eventuele werking van door de huid opgenomen PAK is waarschijnlijk voornamelijk lokaal (huidtumoren). Daarnaast is het mogelijk dat een deel van de opgenomen PAK elders in het lichaam terechtkomt en daar een systemische werking uitoefent vergelijkbaar met de werking van oraal opgenomen PAK. Daarom werd hier gekozen voor twee verschillende benaderingen: Eén, waarbij alle opgenomen PAK verondersteld wordt lokaal te werken, en één, waarbij alle opgenomen PAK geacht worden bij te dragen aan de belasting via de orale route. Voor de eerste benaderingswijze wordt de opname uitgedrukt per eenheid lichaamsoppervlak, en voor de tweede per kg. lichaamsgewicht. Opge-merkt moet worden, dat het hier om een nieuwe benadering gaat, welke nog niet eerder in documenten over PAK is opgenomen, en welke nog in discussie is.

6.3.1. Dermale opname bij kinderen

Geschat is door (Hawley, [7]), dat buiten spelende kinderen dagelijks de hoeveelheid verontreiniging kunnen opnemen die zich in 20 mg aarde bevindt. Hierbij is aangenomen dat kinderen 12 uur per dag aarde op hun handen, benen en voeten hebben (geschat huidoppervlak 2100 cm^2), en dat deze situatie 30 dagen per jaar optreedt. Bij gehalten van 15 mg benzo(a)pyreen per kg grond (zie 6.2.2.) zou dan per "speeldag" de opname van benzo(a)pyreen door de huid $15 \times 20 \times 10^{-6}$ mg zijn, ofwel 300 ng. Dit is $300/2100 = 0,14$ ng per cm^2 huid per dag, of $300/14$ (lichaamsgewicht kind) = 21,4 ng per kg lichaamsgewicht per dag. Uitgaand van 30 dagen per jaar wordt dit gemiddeld over een jaar $0,14 \times 30/365 = 0,012$ ng per cm^2 huid per dag of $21,4 \times 30/365 = 1,8$ ng per kg lichaamsgewicht per dag.

6.3.2. Dermale opname bij volwassenen

Als redelijke aanname voor contact met grond door volwassenen kan worden verondersteld dat deze gemiddeld gedurende 30 dagen per jaar 4 uur lang

aarde op hun handen hebben, bij het werken in de tuin. Afgaand op de onder 6.3.1. gegeven schatting voor kinderen zouden volwassenen dan dagelijks de hoeveelheid verontreiniging door de huid kunnen opnemen die zich in ca. 5 mg grond bevindt (kortere contacttijd en kleiner blootgesteld oppervlak dan bij kinderen). Dit zou per "tuinwerkdag" neerkomen op $15 \times 5 \times 10^{-6}$ mg, ofwel 75 ng. Dit is $75/1000$ (geschat blootgesteld lichaamsoppervlak in cm^2) = 0,075 ng per cm^2 huid per dag of $75/70$ (lichaamsgewicht volwassene) = 1,1 ng per kg lichaamsgewicht per dag ofwel, gemiddeld over het jaar, $0,075 \times 30/365 = 0,006$ ng per cm^2 huid per dag of $1,1 \times 30/365 = 0,09$ ng per kg lichaamsgewicht per dag.

6.3.3. Risicoschatting benzo(a)pyreen voor effecten op de huid

Een globale schatting van het risico van effecten op de huid kan worden gedaan op basis van dierproeven met benzo(a)pyreen. Uit de resultaten van een recent experiment met muizen (Holland en Frome) [8] kan met een lineaire extrapolatie worden berekend dat een extra kans op huidtumoren van 1 per miljoen wordt veroorzaakt door dagelijkse blootstelling via de huid aan 0,003 ng benzo(a)pyreen (opgelost in aceton) per cm^2 huidoppervlak. Andere experimenten (IARC), [9] gaven resultaten in dezelfde orde van grootte. Hierbij moet worden bedacht dat benzo(a)pyreen opgelost in aceton veel beter in de huid wordt opgenomen dan benzo(a)pyreen in grond. Naar schatting [7] is de opname uit grond tenminste 7x lager dan uit een organisch oplosmiddel. Voor benzo(a)pyreen in grond kan derhalve worden aangehouden, dat een extra kans op huidtumoren van 1 per miljoen (het "verwaarloosbaarheidsniveau") wordt veroorzaakt door dagelijkse blootstelling via de huid aan 0,02 ng per cm^2 huid gedurende het leven. Opgemerkt moet worden, dat de berekening is gebaseerd op het totaal van kwaadaardige en goedaardige tumoren in de dierproef, terwijl in de regel alleen kwaadaardige tumoren als uitgangspunt voor extrapolaties worden gebruikt.

6.3.4. Risicoschatting Lauraterrein, effecten op de huid

Uit secties 6.3.1.-6.3.3. kan worden geconcludeerd, dat blootstelling aan benzo(a)pyreen in "Lauragrond" (0,012 en 0,006 ng per cm^2 huid per dag voor

kinderen resp. volwassenen) tot risico's voor huidtumoren kan leiden, welke dicht onder het "verwaarloosbaarheidsniveau" ($0,02 \text{ ng per cm}^2 \text{ huid per dag}$) liggen. Wanneer ook met de werking van andere PAK rekening wordt gehouden (zie sectie 6.2.5.), zou het risico voor totaal-PAK het "verwaarloosbaarheidsniveau" juist kunnen overschrijden. Het werkelijke risico zal lager zijn, doordat in de berekening een aantal overschattende aannames zijn verwerkt (zie ook 6.2.5.).

6.3.5. Bijdrage opname door de huid aan de systemische belasting

De onder 6.3.1. geschatte dermale opname van benzo(a)pyreen door kinderen, uitgedrukt per kg lichaamsgewicht, is te verwaarlozen ten opzichte van de geschatte orale opname, en ligt in de orde van de dagelijkse opname via de voeding. Dit is ca. 2 ordes van grootte minder dan de schatting voor opname via de mond en kan ten opzichte daarvan verwaarloosd worden. Voor volwassenen is de berekende opname per kg lichaamsgewicht meer dan een grootte-orde lager dan voor kinderen en daarmee tevens veel lager dan de dagelijkse opname via de voeding.

6.3.6. Conclusie met betrekking tot opname via de huid

Voor opname van PAK via de huid, zowel door kinderen als door volwassenen, ligt het risico van lokale effecten op de huid (huidtumoren) hoogstens rond het "verwaarloosbaarheidsniveau". De eventuele bijdrage van PAK-opname door de huid aan de systemische werking van PAK is verwaarloosbaar in vergelijking met opname door kinderen via de mond.

6.4. OPNAME VIA INADEMING VAN STOF

Opname van kankerverwekkende PAK via de longen kan plaats vinden bij het opwaaien van stof vanaf de verontreinigde bodem (kankerverwekkende PAK zijn nauwelijks vluchtig en dus vrijwel alleen aan deeltjes gebonden in de lucht aanwezig). Door het RIVM zijn enkele monsters stof verzameld in buitenlucht (4) woonkamers (5) en kruipruimtes (3). De resultaten zijn vermeld in tabel 2.

6.4.1. Concentraties PAK in de lucht

Voor benzo(a)pyreen blijken sommige van de gevonden buitenluchtwaarden iets hoger te liggen (1,7, 1,9, 3,7 en 5,2 ng per m³) dan het berekende wintergemiddelde voor de oostelijke mijnstreek ($\geq 1,6$ ng per m³). Het is bekend dat PAK-gehalten in luchtstof sterk kunnen fluctueren in de tijd, als gevolg van weersomstandigheden. In feite zijn de laagste twee waarden (1,7 en 1,9) afkomstig van 15 december 1988 en de hoogste (3,7 en 5,2) van 16 december. Op grond van extrapolatie van "zwarte rook" metingen van het station Wijnandsrade van het Nationaal Luchtmeetnet kunnen voor deze twee dagen benzo(a)pyreenconcentraties van 0,9 respectievelijk 2 ng per m³ worden berekend. Of de factor 2 verschil door kleine verschillen in de meetmethode of door een bijdrage van "Lauragrond" wordt bepaald kan zonder aanvullend onderzoek niet worden vastgesteld.

De binnenshuis gevonden waarden liggen in dezelfde orde of iets lager (0,8-3,3 ng per m³ voor benzo(a)pyreen) en zijn steeds het hoogst op 16 december en in huizen waar gerookt wordt.

6.4.2. Risico's bij blootstelling aan PAK via inademing

In het basisdocument PAK is een risicoschatting voor ingeademde PAK uitgewerkt, welke is gebaseerd op gegevens bij groepen werknemers die aan hoge concentraties blootgesteld zijn geweest. Volgens deze schatting zou een levenslange blootstelling aan 1 ng benzo(a)pyreen per m³ lucht, plus de

andere PAK, een extra kans op kanker opleveren van 1 per 10.000. Dit berekende risico is enkele ordes van grootte hoger dan het risico voor de gemiddelde opname van PAK via de voeding, en ligt op het "maximaal toelaatbare niveau". Dit houdt in dat een kleine relatieve toename in de luchtconcentratie in absolute termen een even belangrijke bijdrage zou kunnen leveren als een grote relatieve toename in de hoeveelheid via de mond opgenomen PAK. Op basis van de nu beschikbare meetgegevens kan echter niet worden aangegeven of er op het Lauraterrein sprake is van verhoogde PAK-concentraties in luchtstof. Dit houdt tevens in dat een eventueel risico van opname door de huid van PAK uit luchtstof niet sterk zal verschillen van de situatie elders.

6.4.3. Conclusie met betrekking tot opname via de lucht

Uit de schaarse meetgegevens kan niet worden afgeleid of er in binnen- of buitenlucht op het Lauraterrein verhoogde concentraties PAK voorkomen, ten opzichte van "achtergrondwaarden". Mochten de iets verhoogde waarden in de buitenlucht reëel zijn, dan is hiermee nog niet duidelijk of deze verhoging afkomstig is van het Lauraterrein zelf of van de wijdere omgeving. Mocht besloten worden tot uitvoering van meer metingen om deze onduidelijkheid op te helderen, dan is hierbij het volgende van cruciaal belang: (a) de metingen moeten een representatief beeld geven van verschillende weersomstandigheden, en (b) bij een eventuele verhoging moet kunnen worden aangegeven of deze karakteristiek is voor het Lauraterrein, voor de oostelijke mijnstreek, of voor de gehele regio, inclusief de industriegebieden in de buurlanden.

6.5. CONCLUSIES

De bodem van het voormalige Lauraterrein bevat hoge concentraties PAK, welke in een aantal gevallen de B- en C- waarden uit de Leidraad bodemsanering [4] overschrijden. De PAK vormen een groep verwante verbindingen waarvan sommige kankerverwekkende eigenschappen hebben. Het belangrijkste risico van deze hoge PAK-gehalten is gekoppeld aan de opname van grond door spelende kinderen. Deze opname kan globaal 35 maal de gemiddelde opname van PAK via voeding bedragen. Het hierbij berekende risico kan de "verwaarloosbaarheidsgrens" (maximaal 1 extra kanker geval per miljoen bij levenslange opname) overschrijden, maar blijft onder het "maximaal toelaatbare niveau" (1 extra kanker geval per 10.000 bij levenslange opname). Aangetekend moet worden, dat de gebruikte aannames tot een overschatting van het werkelijke risico leiden. De berekende risico's zijn niet zodanig verhoogd (één geval in diverse eeuwen) dat het in bevolkingsonderzoek zal kunnen worden onderkend.

Voor opname van PAK door de huid, zowel bij kinderen als volwassenen, ligt het geschatte risico voor plaatselijke effecten (huidtumoren) ten hoogste rond de "verwaarloosbaarheidsgrens". Ten aanzien van mogelijke effecten in het lichaam is de opname van PAK door de huid verwaarloosbaar vergeleken bij de opname via de mond.

De nu beschikbare metingen over PAK-gehalten in luchtstof laten geen uitspraken toe over eventueel verhoogde risico's door PAK in ingeademd luchtstof. De gemeten gehalten wijken weinig af van achtergrondwaarden maar een lichte verhoging kan niet worden uitgesloten. Bij eventuele uitvoering van aanvullende metingen is een doordachte opzet nodig om de bestaande onzekerheden te kunnen oplossen.

7. REFERENTIES

- [1] Nader onderzoek op het voormalige Lauraterrein te Kerkrade.
Hoofdrapport, concept.
Rapportnummer R 88.065.
Projectbureau voor Industrieel Afval (PBI), Sittard.
Augustus 1988.
- [2] D.H.Bauw, J.Keijzer, P.G.M.de Wilde en Th.G.Aalbers.
Uitloogtest voor organische componenten uit afvalstoffen.
RIVM, rapport nummer 738710001, 1988.
- [3] Bepaling van uitloog karakteristieken.
NVN 2508, 1e druk.
Nederlands Normalisatie Instituut, Delft.
Februari 1988.
- [4] Leidraad Bodemsanering.
Ministerie van VROM.
Staatuitgeverij, 's-Gravenhage, 1983.
- [5] Saneringsonderzoek Lauraterrein te Kerkrade.
Fase 1a: aanvullend onderzoek ten behoeve van risico-evaluatie.
Rapport nummer R 88.93.
Projectbureau voor Industrieel Afval (PBI), Sittard.
Januari 1989.
- [6] W.Slooff, A.J.C.M.Matthijssen, G.K.Montizaan en J.P.M.Ros (eds.).
Basisdocument PAK.
RIVM, rapport nummer 758474007.
Maart 1989.
- G.K.Montizaan, P.G.N.Kramers, J.A.Janus en R.Posthumus.
Integrated Criteris Document.
Polynuclear Aromatic Hydrocarbons (PAH): Effects of 10 selected
compounds.

Appendix RIVM-report no. 758474007.
March 1989.

- [7] Hawley J.K.
Assessment of Health Risk from Exposure to Contaminated Soil.
Risk Analysis, Vol. 5, No. 4, 289-302, 1985.
- [8] Holland J.M. and Frome E.L.
Statistical evaluations in the carcinogenesis bioassay of petroleum hydrocarbons.
Adv. Mod. Environ. Toxicol. 6, Chapter 12, 151-165, 1983.
- [9] IARC (1973) IARC Monographs on the evaluation of carcinogenic risk of the chemical to man. Volume 3. Certain polycyclic aromatic hydrocarbons and heterocyclic compounds. Lyon, France.