

RIJKSINSTITUUT VOOR
VOLKSGEZONDHEID EN MILIEU
BILTHOVEN

Rapport nr. 770501019

**Onderzoek naar het voorkomen van dioxinen
in de Nederlandse atmosfeer.
Deel V: Samenvatting, evaluatie en conclusies
van een surveillance-onderzoek**

A.P.J.M. de Jong, J.A. van Jaarsveld, A. Bolt-
Moekoet

maart 1996

Dit onderzoek werd verricht in opdracht en ten laste van de Hoofdinspecteur van de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne in het kader van project Persistente Stoffen (nr. 770501).

Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu, Postbus 1, 3720 BA Bilthoven,
tel. 030- 2749111, fax 030-2742971

Errata behorende bij rapport nr. 770501019, maart 1996

Pagina 7, 3e alinea, 4e en 6e regel: "pg" moet vervangen worden door "fg".

Pagina 14, 3e regel van onder: "pg" moeten vervangen worden door "fg".

VERZENDLIJST

1 -	5	Hoofdinspecteur van de Volksgezondheid voor de Milieuhygiëne, Ir. P.J. Verkerk
6		Plv. Directeur-Generaal Milieubeheer, Dr. Ir. B.C.J. Zoeteman
7 -	9	DGM Directie Afval
10-	12	DGM Directie Stoffen, Veiligheid en Straling
13		DGM Directie Lucht en Energie
14-	16	Hoofdinspectie Gezondheidsbescherming
17-	19	Directie Voedings- en Veterinaire Aangelegenheden
20-	22	Geneeskundige Hoofdinspectie van de Volksgezondheid
23-	25	Veterinaire Hoofdinspectie van de Volksgezondheid
26		Hoofdinspecteur van de Inspectie Gezondheidsbescherming
27-	29	Directie Voedings- en Kwaliteitsaangelegenheden van het Ministerie van Landbouw, Natuurbeheer en Visserij
30-	44	Voorzitter Interdepartementale Coördinatiecommissie Dioxineproblematiek
45-	55	Voorzitter Begeleidingscommissie dioxine-onderzoek
56		Ir. J. de Koning (TNO)
57		Depot Nederlandse publikaties en Nederlandse bibliografie
58		Directie RIVM
59-	67	Projectgroep Dioxine-onderzoek RIVM
68		Ir. H.S.M.A. Diederer
69		Dr. H.A. van 't Klooster
70		Ir. F. Langeweg
71		Drs. A.D.K. Liem
72		Dr. D. Onderdelinden
73-	75	Auteurs
76		Hoofd Bureau Voorlichting en Public Relations
77		Bureau Rapportenregistratie

78-	79	Bibliotheek RIVM
80-	99	Bureau Rapportenbeheer
100-	105	Reserve exemplaren

INHOUDSOPGAVE

	<u>Blz.</u>
Verzendlijst	2
Inhoudsopgave	4
Abstract	5
Samenvatting	7
1. Inleiding	9
2. Monsternamen en analyse	12
3. Resultaten en Discussie	13
Literatuur	20

ABSTRACT

This report describes the results of a field study on the occurrence of airborne dioxins in the Netherlands. Sampling was performed at four representative locations across the country at Vlaardingen (vicinity of two major municipal waste incinerators), Witteveen (Drenthe, indicative for the general rural background level), Wijnandsrade (South Limburg, international transport) and Zegveld (central in city conglomerate Randstad). Air samples of about 1000 m³ (60 h) were collected during trials of a few weeks to months at these locations. Sampling selection for analysis (10-12 /location) was performed retrospectively on the basis of the weather conditions during samplings, particularly on the wind direction.

Based on results in individual samples, estimates were made on the concentration profile in the main trajectories NE, SE, SW and NW. In addition, local base-line values were calculated based on these profiles and the normal long-term wind direction profile. Estimated base-line values were Vlaardingen, 56±30, Witteveen, 28±9; Wijnandsrade, 60±13 and Zegveld, 23±8 fg TEQ/m³. According to expectations, the major trajectory in the north part of the country was South-West with highest levels at Vlaardingen (mean 125±75 fg TEQ/m³) followed by a rapid decline to a near constant level of approx. 45±20 fg TEQ/m³ along the line Zegveld (30 km NE of MSW) to Witteveen (>100 km NE of MSW). Relatively low levels were found in the nordic trajectories (W to E) with mean values ranging between 8±3 fg TEQ/m³ from NW to 20±10 fg TEQ/m³ from NE. In this part of the country, the contribution of the SW trajectory to the local levels ranged between 65 to 85% of. In the South (Wijnandsrade) observed inter-trajectory differences were significantly smaller. Highest values were found in the South-West (Belgium) and North-East (Germany) trajectory with mean values of 70±25 and 65±25 fg TEQ/m³, resp. Levels in the SE and NW trajectory were slightly lower with values around 50±25 fg TEQ/m³. Contributions to the long-term value were estimated on about 50% originating from Belgium, 25% from Germany and 25% from North Belgium/South-West Netherlands.

In general, clear evidence was not found to address influences of specific atmospheric and meteorologic conditions on the dioxine levels in air, except for wet precipitations (rain). During rain, levels dropped to about half of the value in dry periods.

In general, trajectory values and derived long-term levels compared within a factor of two with the predicted profile by a model for distribution of particulate bound micro pollutants (OPS model). Comparison at individual locations, showed lower measured values than predicted for the West part of the country and higher values than predicted in the East and South part of the country. This may point to a possible overstimation by the model of short -range transport and wet and dry deposition rates of dioxins in the vicinity of the source, and in relation to this, to a possible underestimation of the long-range transport characteristics of dioxins from remote (foreign) sources.

Seasonal influences were not investigated. Chosen was for geographical spread in sampling in stead of a prolonged measurement at one location. Therefore, comparison of results at the different locations as well as with model results may be biased by possible seasonal effects.

SAMENVATTING

Dit rapport beschrijft de resultaten van een onderzoek naar het voorkomen van dioxinen in buitenlucht in Nederland. Bemonstering van lucht is op vier representatieve locaties verspreid over het land uitgevoerd, te weten te Vlaardingen (overlappend depositiegebied twee afvalverbrandingsinstallatie), Witteveen (Provincie Drenthe, achtergrond), Wijnandsrade (Zuid-Limburg, grensoverschrijdend transport) en Zegveld (centraal in Randstad). De perioden van monsternamen waren: Vlaardingen, mei-september 1991; Witteveen, september-november 1992; Wijnandsrade, maart-mei 1993 en Zegveld, juni-juli 1993.

Op basis van resultaten in individuele monsters is een schatting berekend van de concentratieverdeling naar windrichting. Vervolgens is op basis van de jaargemiddelde windrichtingsverdeling hieruit schattingen verkregen van de lokale lange-termijn gemiddelde waarden: Vlaardingen, 56 ± 30 ; Witteveen, 28 ± 9 ; Wijnandsrade, en Zegveld, 23 ± 8 fg TEQ/m³.

Daarnaast is een schatting gemaakt van de bijdragen van de trajecten (sectoren) aan deze lange-termijnwaarden. Op drie noordelijke gelegen locaties (Vlaardingen, Zegveld, Witteveen) werden hoogste concentraties gevonden in ZW richting, met waarden variërend van 125 ± 75 pg TEQ/m³ bij Vlaardingen tot omstreeks 45 ± 20 pg TEQ/m³ op de lijn Zegveld en Witteveen. Aanzienlijk lagere waarden zijn gevonden in lucht uit noordelijke richtingen (W tot O) variërend tussen 8 ± 3 uit NW tot 20 ± 10 pg TEQ/m³ uit de NO sector. Dit patroon is consistent met de verwachtingen op basis van de locatie van de belangrijkste bronnen voor dioxinen in West-Nederland. De bijdrage van de ZW windrichting aan de jaargemiddelde waarden lag voor deze locaties tussen 65 tot 85%.

In Zuid-Limburg (Wijnandsrade) is een aanzienlijk geringere richtingsafhankelijkheid waargenomen. Hoogste waarden zijn gevonden in lucht uit ZW- (centraal België) en NO-lijke richting (Roergebied) met waarden rond resp. 70 ± 25 fg TEQ/m³ en 65 ± 25 fg TEQ/m³. Gehalten in ZO- en NW-lijke richting lagen gemiddeld rond 50 ± 25 fg TEQ/m³. Bij de heersende windrichtingsverdeling resulteren deze waarden in een

bijdrage aan de lange-termijnwaarde van naar schating 50% uit ZW-lijke richting (gebied Brussel/Luik), terwijl de aanvoer uit Duitsland (Roergebied) en Noord België/West-Nederland ieder circa 25% bijdragen.

Invloeden van atmosferische en meteorologische omstandigheden op het voorkomen van dioxinen in lucht konden niet met voldoende zekerheid worden vastgesteld. Een verlagend effect tot circa de helft werd waargenomen door regen, maar het oorzakelijk verband bleef onzeker.

Globaal gezien kwamen experimentele waarden goed -d.w.z. binnen een factor twee- overeen met voorspelde waarden als berekend met een model voor verspreiding van deeltjes gebonden verontreinigen (OPS model). Een gedetailleerde vergelijking laat echter enige systematische verschillen zien. In het zuiden en oosten van het land lagen de gemeten waarden gemiddeld boven de voorspelde waarden, terwijl het omgekeerde het geval was in het westen van het land. Dit zou kunnen duiden op een mogelijke onnauwkeurigheid in het model ten aanzien van depositiesnelheid in de directe omgeving van de bron en in samenhang hiermee tevens op een mogelijke onderschatting van het lange-afstand transport. In verband hiermee zou de aanvoer vanuit het buitenland groter kunnen zijn dan verwacht.

Geen onderzoek is verricht naar seizoensinvloeden op het voorkomen van dioxinen in lucht. Gekozen is voor een geografische spreiding in de monsternamen, welke aansluitend door de seizoenen heen hebben plaatsgevonden. Als gevolg hiervan kan zowel de onderlinge vergelijking als de vergelijking met modelwaarden onderhevig zijn aan niet nader bekende seizoensinvloeden.

1 . INLEIDING

Verbranding van afval wordt gerekend tot de belangrijkste bron voor polychloordibenzo-para-dioxinen en -dibenzofuranen (PCDD/F's, ook wel aangeduid met de term dioxine) in de atmosfeer. Deze groep van stoffen bestaat uit een groot aantal (210) verschillende verbindingen (congeneren), waarvan er 17 een 2,3,7,8-substitutiepatroon bezitten. Deze behoren tot de meest giftige stoffen van menselijk handelen. Ze worden niet als zodanig voor commerciële gebruikdoeleinden geproduceerd, maar kunnen als bijproducten ontstaan bij diverse chemische en metallurgische productieprocessen alsmede bij de verbranding van fossiele brandstoffen en vooral bij de verbranding van afval (huishoudelijk, chemisch en ziekenhuis afval). Midden jaren 70 zijn dioxinen voor het eerst door Hützinger en Olie [1] aangetoond in de emissie van een afvalverbrandingsinstallatie (AVI) en midden jaren 80 in koemelk uit een depositiegebied van een sterk vervuilde bron in Zwitserland [2,3]. In Nederland werden in 1989 verhoogde tot sterk verhoogde waarden aangetroffen in melk van koeien die graasden in de directe omgeving van afvalverbrandingsinstallaties (AVI's) [4]. Voor de overheid was dit aanleiding tot het nemen van maatregelen zoals het uit de markt nemen van melk en vlees voor die gebieden waar de grenswaarde van 6 ng toxiciteitsequivalenten 2,3,7,8-TCDD (TEQ) per kg melkvet werd overschreden. Gelijktijdig werd een grootschalig onderzoek ingesteld naar de gerezen problematiek rondom afvalverbrandingsinstallaties (AVI). Dit onderzoek omvatte onder meer het opsporen van bronnen voor dioxinen en de bepaling van de emissies, de verspreiding van dioxinen in het milieu en de landbouwvoedselketen alsmede de blootstelling van de bevolking aan deze stoffen via de voeding. De belangrijkste bevindingen hiervan zijn beschreven in een recent verschenen basisdocument [5].

In 1989 werden dioxine-emissies naar lucht in Nederland geschat op circa 800 g TEQ/jaar, waarvan circa 600-700 g door AVI's [6,7]. Tot de kleinere, diffuse bronnen voor dioxinen worden gerekend het verkeer, processen gebaseerd op de verbranding van fossiele brandstoffen, de papier, metaal en chemische industrie en bijvoorbeeld

ook crematoria [8]. Sluiting van enkele verouderde AVI's in de periode 1989/90 alsmede verbetering van rookgasreiningsinstallaties bij andere installaties heeft geresulteerd in een afname van emissies met circa 200 g TEQ/jaar [7] in 1990/91. Dioxinen in rookgassen vormen slechts een deel van de totale gevormde hoeveelheid. Afhankelijk van de effectiviteit van de rookgasreiniging wordt een groot deel met het vlieggas uit de rookgassen verwijderd. Daarnaast komen dioxinen voor in het residuale bodemproduct. Bovengenoemde problemen zijn vooral het gevolg van het niet verwijderde deel dat met de rookgassen de schoorsteen verlaat. De verspreiding en transport in en door de atmosfeer als ook de depositie wordt voor een belangrijk deel bepaald door de wijze van voorkomen. Vermoedelijk een belangrijk deel komt gebonden voor aan deeltjes (vlieggas) en, afhankelijk van de omstandigheden zoals stofconcentratie, temperatuur e.d., zal een kleiner deel in gasvormige toestand voorkomen. Deze fractie blijkt gevoeliger te zijn voor ontleding onder invloed van zonlicht, met als gevolg dat de atmosferische halfwaardetijd grotendeels bepaald wordt door de verblijftijd van de deeltjes waaraan ze voorkomen.

Modellen voor verspreiding en depositie van dioxinen in emissies zijn dan ook grotendeels gebaseerd op het transportgedrag van deze deeltjes [9]. Deze tonen een vrij scherp depositie maximum op relatief korte afstanden van de bron gevolgd door een langzame afname naar de -verhoogde- basislijnwaarde. Afhankelijk van de atmosferische omstandigheden kunnen dioxinen over zeer grote afstanden worden getransporteerd.

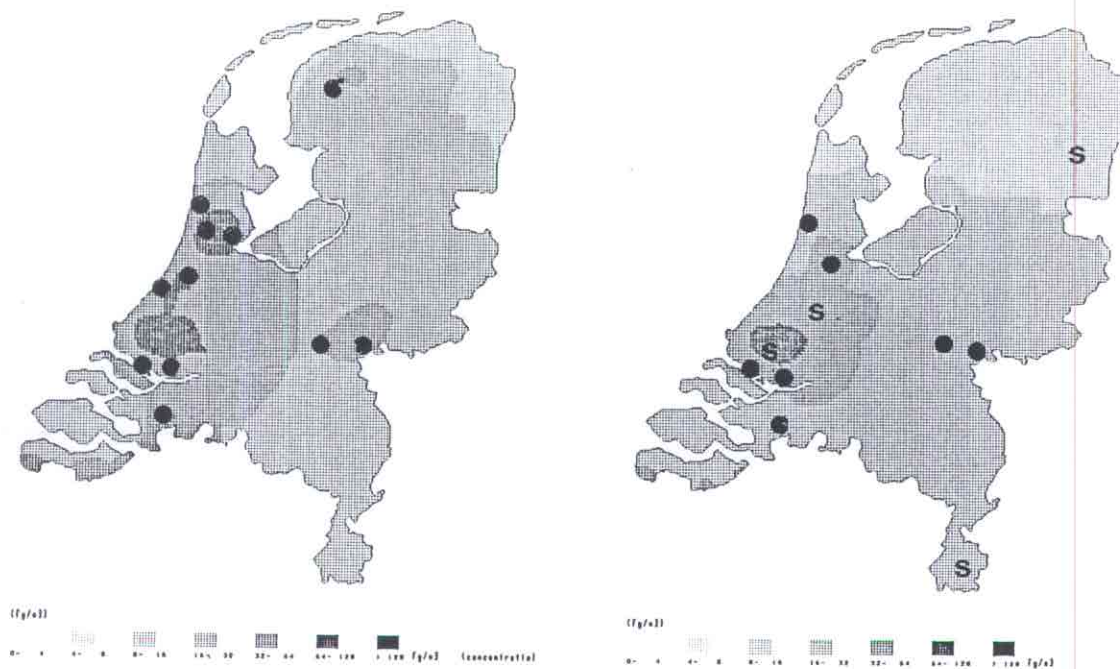
Figuur 1 geeft een beeld van de verspreiding van dioxine in lucht over Nederland. De berekende concentraties zijn gebaseerd op de geschatte emissies in 1990 [10].

Onzekerheden in dit model betreffen de onzekerheid in de emissies, de verhouding gasvormige/deeltjesgebonden dioxinen hierin en de aanvoer vanuit het buitenland.

Doel van dit onderzoek was een nader inzicht te verkrijgen in het voorkomen in de praktijk van dioxinen in de Nederlandse atmosfeer op leefniveaulucht. Hiertoe zijn bemonsteringen uitgevoerd op enkele representatieve locaties in het land, te weten te Witteveen (nulpuntsmeting of rurale achtergrondwaarde), Zegveld (randstedelijk

gebied), Wijnandsrade (Zuid-Limburg, grensoverschrijdend transport) en Vlaardingen (overlappend depositiegebied van twee AVI's).

Resultaten van de afzonderlijke locaties zijn eerder gepubliceerd [11-15]. In dit rapport wordt een evaluatie gegeven en de samenhang zowel onderling als met de resultaten van modelberekeningen.



Figuur 1. Berekende achtergrondwaarde in lucht vóór (A) en na de sluiting (B) van enkele AVI's in 1989 [10]. Situering van AVI's in Nederland (Δ) en monsternamelocaties (S).

2. MONSTERNAME EN ANALYSE

Luchtmonsters zijn met een zogenaamde high-volume-sampler (HVS, Stranovsky GmbH, Essen, Duitsland) genomen. De monsternameduur bedroeg circa 60 h per monster met een debiet van circa 15 m³ per uur, resulterend in een monstergrootte van circa 1000 m³ lucht. In de aanzuigkop van de sampler bevonden zich achter elkaar een glas fiber filter (GFF, Gelman Sciences, Inc, Ann Arbor, Mi, U.S.A) voor het afvangen van deeltjesgebonden dioxinen (> 1 µm) en een polyurethaan back-up filter (PUF, dichtheid 25 kg/m³; Sunde & Co, Gan, Noorwegen) voor gasvormige en aan zeer kleine deeltjes (aerosolen) gebonden dioxinen. Differentiatie naar de gebonden en gasvormige fractie bleek in de praktijk niet mogelijk. Niet vermeden kon worden dat er, afhankelijk van de bemonsteringsduur en buitenluchttemperatuur een zekere verdamping optreedt van de deeltjes gebonden dioxinen op het GFF welke vervolgens op het PUF filter als gasvormig moleculen wordt gedecteerd (stripping).

Verliezen tijdens de monstername zijn bepaald uit de terugwinning van de op het PUF filter vóór aanvang van de monstername aangebrachte hoeveelheden koolstof-13 gemerkte PCDD/Fs (8 congenen). Op basis van het principe van de isotoopverduunningstechniek vindt in de bepaling/kwantificering een vrijwel volledige compensatie plaats voor eventuele verliezen.

Analyse

De gevolgde procedure is in detail beschreven in [11,12]. In het kort bestaat de methode uit: (1) extractie van PCDD/Fs uit de gecombineerde filtermedia (GFF en PUF) met behulp van Soxhlet extractie met toluen; (2) zuivering van het extract met behulp van Carbosphere en aluminium kolomchromatografie [16]; (3) analyse met behulp van gaschromatografie-hoogoplossend vermogen massaspectrometrie (GC-HRMS).

De analyses zijn uitgevoerd op een polaire GC kolom (Rtx 2330, Restek, USA) waarmee een vrijwel volledige isomeer specifieke scheiding van de 17 toxische, 2,3,7,8-gesubstitueerde congenen werd verkregen van alle, niet toxische congenen (niet 2,3,7,8) [17].

3. RESULTATEN EN DISCUSSIE

Gehalten. Resultaten van dioxine-metingen te Vlaardingen, Witteveen, Wijnandsrade en Zegveld zijn weergegeven in tabel 1 (bijlage 1). De tabel bevat tevens enkele relevante meteorologische parameters zoals die zich tijdens de monsternemingen hebben voorgedaan. Voor de afzonderlijke locaties zijn representatieve selecties gemaakt van monster voor analyse. De selectie was gebaseerd op de windrichting zoals die in monster is voorgekomen, zodanig het gemiddelde hierin zo goed mogelijk overeenstemde met de normale jaargemiddelde verdeling (windroos). Zoals blijkt bevatte het merendeel van de monsters méér dan een windrichting. Voor de bepaling van het concentratieprofiel is een zo nauwkeurig mogelijke schatting gemaakt van de concentratieverdeling naar windrichting in individuele monsters, waaruit na middeling over alle monsters (10-12) per locatie een schatting is verkregen van de concentratie in lucht uit de vier trajectoren (90°, tabel 2).

Tabel 2: Schatting van dioxinegehalten in lucht (fg TEQ/m³) verdeeld naar windrichting.

Sector	NO	ZO	ZW	NW
Vlaardingen	10±5	10±3	125±75	20±10
Witteveen	20±10	20±10	45±20	10±10
Wijnandsrade	60±15	50±25	70±25	55±25
Zegveld.	8±3	20±10	45±20	8±3

Vervolgens is na weging van het concentratieprofiel met de jaargemiddelde windrichtingsverdeling hieruit een schatting berekend van de lokale achtergrond of lange-termijnwaarden (tabel 3).

De nauwkeurigheid van deze uitkomsten is onzeker en is afhankelijk van de nauwkeurigheid van de differentiatie van de concentratie naar windrichting in individuele monsters. In het algemeen zal de onzekerheid groter zijn naarmate een richting minder frequent is bemonsterd. Dit was bijvoorbeeld het geval voor de ZO

richting. Daarnaast zal de onzekerheid toenemen voor laag gecontamineerde richtingen, met name indien deze in monsters voorkomen tesamen met (eventueel kort durende) wind uit een of meer hoog gecontamineerde richtingen. In dit geval zal de monstergrootte voor een belangrijk deel door deze hoog verontreinigde richting(en) worden bepaald. Vanwege de relatief grote spreiding van gehalten in de dominante richting leidt dit tot een inherent grote onzekerheid in de bepaling van het gehalte in de laag gecontamineerde richting. De invloed van deze fouten op de onzekerheidsmarge rondom de achtergrondwaarde zal gering zijn omdat deze wordt gewogen met de procentuele bijdrage hieraan, die klein is voor de laag gecontamineerde richtingen en/of weinig frequent voorkomende windrichtingen. In de meeste gevallen werd, het meest extreem bij Vlaardingen, de overall onzekerheid bepaald door variabiliteit in de dioxine-concentratie in de ZW richting.

Globaal gezien komen de resultaten in tabel 2 goed overeen met de verwachte waarden. In het noordelijke deel van het land (ten noorden van de grote rivieren) werden de hoogste concentraties verwacht uit zuidwestelijke richting, windafwaards van de AVI's in de Randstad. Relatief lage waarden werden gevonden in lucht vanaf de Noordzee (west tot noordoost).

Het concentratie-verloop op de lijn Vlaardingen-Zegveld-Witteveen komt goed overeen met het verwachte verloop: relatief hoge waarden in het zogenaamde depositiegebied in de directe omgeving van de bron, gevolgd door een snelle afname over een relatief korte afstand (Zegveld, ≈ 30 km) naar een vrijwel constant niveau tot op grote afstanden windafwaards van de bron (Witteveen, > 100 km).

In Zuid-Limburg was richtingsafhankelijkheid aanzienlijk kleiner. Hoogste waarden zijn gevonden in de trajecten vanuit centraal België (Brussel/Luik, ZW, gemiddeld 70 ± 25 fg TEQ/m³) en het Roergebied (Duitsland, NO, 60 ± 15 fg TEQ/m³). Gehalten uit noordwestelijke (Noord-Belgie/Zuid-West Nederland) en zuidoostelijke richting (Duitsland, Eiffel) lagen met waarden rond 50 ± 25 pg TEQ/m³ hier iets onder. Als hierboven besproken heeft een dergelijke, meer gelijkmatige verdeling een positief effect op de schattingsfout in de achtergrondwaarde.

De geschatte achtergrondwaarden zijn weergegeven in tabel 3. Vergelijking van voorkomen van de windrichtingen in monsters met de jaargemiddelde verdeling geeft een relatieve ondervertegenwoordiging te zien voor ZO en een oververtegenwoordiging van de NW richting. Het effect hiervan op de berekende achtergrondwaarde lijkt gering. Dit is afgeleid uit de goede overeenkomst tussen het rekenkundige (X_R) en het lange-termijn gewogen gemiddelde (X_W). Een groot verschil hiertussen zou kunnen duiden op een a-representativiteit van monsters voor de lange-termijn situatie. Een schatting van de bijdragen van sectoren aan de achtergrondwaarde zijn weergegeven in tabel 4. In het noordelijke deel van het land was, in overeenstemming met de verwachting, de bijdrage van de ZW richting aan de achtergrondwaarde het grootst en lag tussen 65-85%.

Tabel 3. Voorkomen van de windrichting en dioxineconcentraties berekend als het rekenkundig (X_R) gemiddelde en het gewogen (X_W) gemiddelde lange termijnwaarden; vergelijking met modelwaarden. T_g : gemiddelde temperatuur tijdens monsternamperiode (periode tussen haakjes achter locatie).

Windsector	NO	ZO	ZW	NW	T_g	X_R	X_W	OPS ¹
			(%)		oC	[fg TEQ/m ³]		
Vlaardingen (V-IX/91)	11	7	50	31	19	61±50	56±30	130
Witteveen (IX-XI/92)	21	25	47	4	12	31±17	28±9	14
Wijnandsrade (III-V/93)	31	9	36	31	19	54±20	60±13	31
Zegveld (VI-VII/93)	22	9	36	31	19	18±18	23±8	36
Lange termijn NL	20	20	40	20				24

¹op basis van emissiegegevens van 1990/91

Tabel 4 . Geschatte bijdrage (%) van sectoren aan achtergrondwaarden (BG).

Windsector	BG (fg TEQ/m ³)	NO	ZO	ZW	NW
		%			
Vlaardingen	56±30	3	3	86	7
Witteveen	28±9	14	14	64	7
Wijnandsrade	60±13	20	16	46	18
Zegveld	23±8	7	17	69	7

Invloed weersomstandigheden. Naast de windrichting zijn er een groot aantal weers- en atmosferische omstandigheden die een rol kunnen spelen op het dioxinegehalte in lucht. Deze invloeden hebben betrekking op de verdunning van de uitstoot in de atmosfeer of de mate van verliezen door depositie. Vanwege het overwegend voorkomen aan deeltjes bestaat er vermoedelijk een goede parallel met het voorkomen van stof (PM 10) in lucht. Belangrijke factoren die hierop een rol spelen zijn de windsnelheid, neerslag, de opbouw van de atmosfeer en de temperatuur. Laatste twee genoemden spelen een rol bij de verdunning door verticale dispersie en menging naar hogere luchtlagen. Ten aanzien van regen, speelt niet alleen de hoeveelheid een rol, maar ook de duur en de positie op het traject tussen bron en meetpunt. Regen bevordert de precipitatie (uitwassing) van deeltjesgebonden dioxinen (natte depositie). Daar het uitgewassen deel niet langer deelneemt aan het transport zal dit verderop langs het traject leiden tot (tijdelijk) verlaagde gehalten. Bij de beoordeling van resultaten, echter, mogen niet slechts de lokale weersomstandigheden betrokken worden maar ook die op voorliggend deel in het traject. Bovendien moet rekening gehouden worden met een zekere vertraging waarmee de verstoring in de steady state op het meetpunt arriveert, hetgeen afhankelijk is van afstand en de windsnelheid. De invloed van regen was het meest duidelijk zichtbaar in de resultaten te Vlaardingen. Een beperkende factor was echter de variabiliteit van andere factoren, waardoor de

invloed van regen niet goed kon worden vastgesteld. Globaal gezien vindt een halvering van gehalten plaats tijdens regen. Niet vastgesteld kon worden of deze verlaging in zijn geheel aan het uitwaseffect kan worden toegeschreven. Mogelijk spelen hierbij ook factoren een rol als de afwezigheid van zonne-instraling welke o.a. een afname van de verticale dispersie tot gevolg heeft.

Windsnelheid. Even complex is de invloed van de windsnelheid op het transport en verspreidingsgedrag. Effecten hiervan kunnen sterk variëren afhankelijk van de plaats van beschouwing. Zo zal een toenemende windsnelheid bij de bron resulteren in een grotere verdunning van de emissies: opname in grotere volumina lucht. Daarentegen zullen verderop langs het traject hogere windsnelheden slechts resulteren in een versneld transport, zonder dat dit leidt tot een extra verdunning. Omgekeerd, kan bij lage windsnelheden bij de bron de rookpluim gemakkelijker tot boven de zogenaamde menglaag doordringen, waardoor de verontreiniging bij metingen op het grondniveau niet of minder zal worden waargenomen.

De verkregen resultaten geven onvoldoende informatie op deze punten. Bovendien waren windsnelheden in het algemeen tamelijk constant (5-6 m/s) en daar waar grotere verschillen optraden (Witteveen 1-8 m/s; Vlaardingen 6-13 m/s), variëerde de overige omstandigheden te sterk voor een adequate vergelijking.

Seizoensinvloeden. Een belangrijk, niet in dit onderzoek betrokken grootheid is de invloed van het seizoen. In dit onderzoek is gekozen voor meting op meerdere locaties verspreid over het land welke na elkaar en door de seizoenen heen hebben plaatsgevonden. Recente lange-termijn metingen tonen duidelijk lagere waarden in lucht tijdens de zomermaanden [18]. De grootste afname werd waargenomen in periode juli/augustus tot circa 20% van normale waarden in de wintermaanden. Een verklaring hiervoor ligt in een toename van het mengvolume (verticale dispersie) door intensievere zonne-instraling en een warmer aardoppervlak tijdens de zomer. Verdunning tot in de hogere luchtlagen leidt gemiddeld tot een grotere verblijftijd en transportafstand. Een zelfde verschijnsel is bekend voor stofconcentraties. In Nederland gemeten PM 10 concentraties zijn over het winterhalfjaar circa een factor twee hoger dan gedurende het zomerhalfjaar [19].

Vergelijking met modelberekeningen. De experimenteel verkregen waarden komen als geheel redelijk tot goed overeen met de voorspelde waarden. Verschillen tussen gemeten en berekende waarden lagen gemiddeld binnen een factor twee (tabel 3). Een goede vergelijking wordt door een aantal zaken bemoeilijkt. In de eerste plaats betreft dit het tijdsverschil tussen de uitvoering ervan. Modelberekeningen zijn gebaseerd op de emissiegegevens van 1990/91, terwijl de metingen zijn uitgevoerd in de periode 1991-93. Gelet op de voortgaande implementatie van verbeterde verbrandingstechnologiën en rookgasreiniging, is er vermoedelijk sprake geweest van een neerwaardse trend in emissies, zowel in Nederland als in het buitenland. Met name in Duitsland (Roergebied) is er in de afgelopen periode een duidelijke afname geconstateerd in dioxine-gehalten in lucht [18]. Indien ook in Nederland sprake is van een dergelijke daling, dan zal het effect hiervan het meest merkbaar zijn voor de laatst bemonsterde locaties (Zegveld, Wijnandsrade).

Echter, concrete aanwijzingen voor een significante daling over de periode 1990-1993 zijn niet voorhanden. Zo zijn gehalten in koemelk in de omgeving van Vlaardingen (Lickebaertpolder) ten noordwesten van de afvalverbrandingsinstallaties (figuur 2) niet of nauwelijks gedaald, hetgeen zou kunnen duiden op een vrij constant emissieniveau door een van de grootste bronnen in Nederland. afgezien van seizoenschommelingen, toont de curve geen duidelijk neerwaardse trend. De sterke daling in het voorjaar van 1995 valt samen met de in gebruikname van een nieuwe gasreiningsinstallaties bij de betreffende AVI. Een tweede probleem bij de interpretatie betreft de invloeden van de seizoenen. Modelberekeningen hebben betrekking op de jaargemiddelde situatie, terwijl de meetresultaten een -kwantitatief onbekende- seizoensafhankelijkheid bevatten, waarvoor niet kon worden gecompenseerd. Extrapolatie van seizoens-specifieke resultaten naar jaargemiddelde waarden kan dan ook tot een zekere systematische fout leiden. In dit verband representeren de resultaten van Witteveen (september-november 1992) en Wijnandsrade (maart-mei 1993), mogelijk het best de jaargemiddelde situatie, terwijl die van Zegveld en Vlaardingen (beide zomer) mogelijk tot een onderschatting leiden van de jaargemiddelde waarde.

Buitenlands transport. De resultaten van Witteveen en vooral van Wijnandsrade duiden op het voorkomen van vergelijkbare gehalten in Nederland, Duitsland en België. Op basis hiervan kan een redelijke schatting worden gemaakt van het grensoverschrijdend transport (in- en uitvoer) namelijk door weging van de gemeten concentraties in de grensgebieden met het voorkomen van de betreffende windrichting. In Wijnandsrade (Zuid-Limburg) wordt de achtergrondwaarde in belangrijke mate bepaald door het transport uit België (50%). De bijdrage van Duitse en Nederlandse emissies bedragen elk circa 25%. De gehalten in dit gebied komen goed overeen met recent (1994) gevonden waarden in het Roergebied (40 - 80 fg TEQ/m³) [20]. Van het voorkomen in België zijn geen gegevens bekend.

LITERATUUR

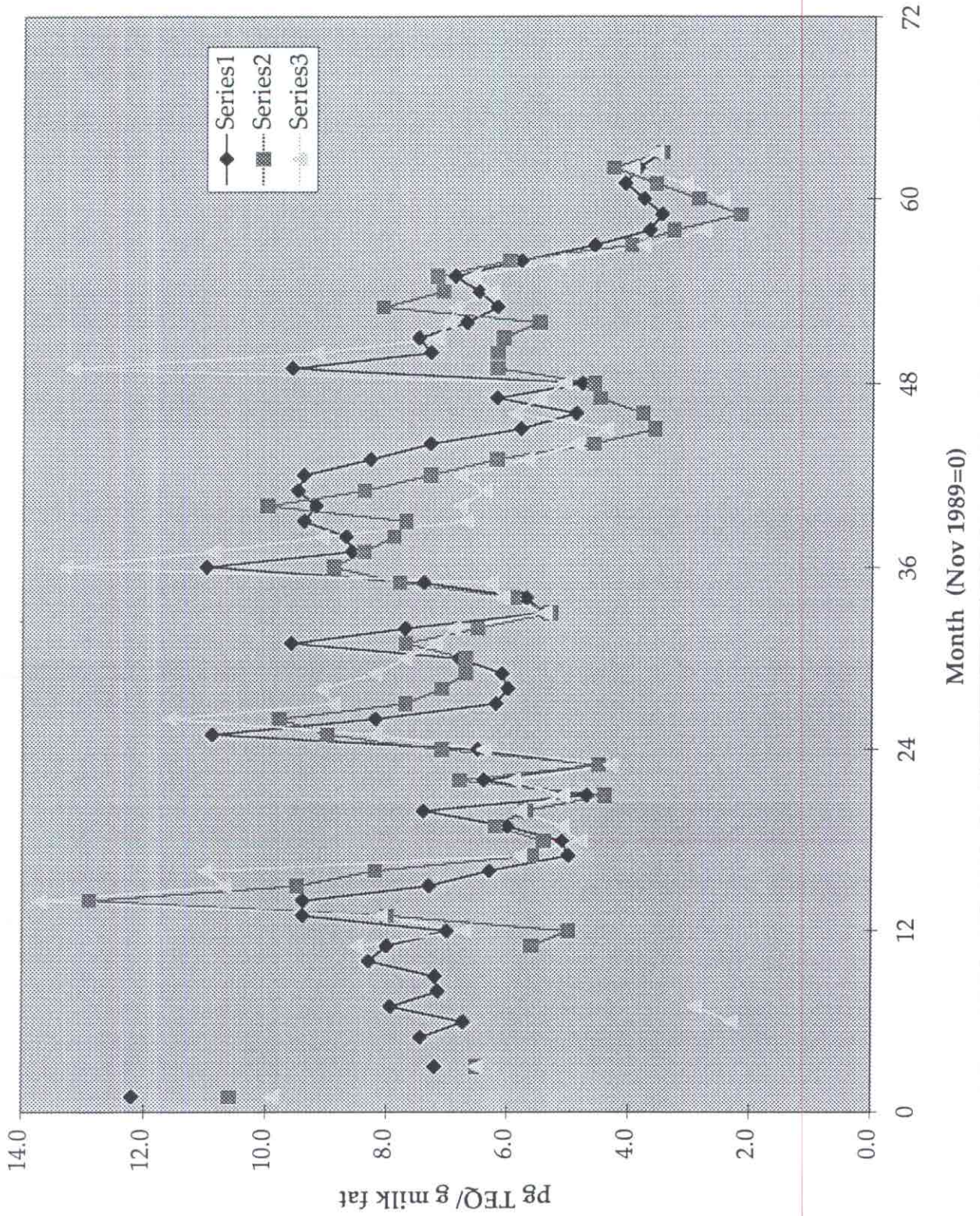
1. Olie K., Vermeulen P.C., Hutzinger O. *Chemosphere* 1977; 6:455-459
2. Riss A., Hagenmaier H., Weberruss U., Schlatter C., Wacker R. *Chemosphere* 1990; 21:1451-1456
3. Rappe Ch., Nygren M., Lindström G., Buser H.R., Blaser O., Wüthrich C. *Environ Sci Technol* 1987; 21:964-970
4. Liem A.K.D., Hoogerbrugge R., Kootstra P.R., Van der Velde E.G., de Jong A.P.J.M. *Chemosphere* 1991; 23:1675-1684
5. Liem A.K.D., van de Berg R., Bremmer H.J., Hesse J.M., Slooff W. (eds) Basisdocument dioxinen. RIVM rapport 710401024, 1993
6. Bremmer H.J. Voorkomen van dioxinen in Nederland. Werkdocument. RIVM-rapport 730501014, 1991
7. Bremmer H.J., Hesseling W.F.M. Inventarisatie van processen waarbij dioxines kunnen ontstaan. RIVM-rapport 730501010, 1991
8. Bremmer H.J., Troost L.M., Kuipers G., de Koning J., Sein A.A. Emissies van dioxinen in Nederland. RIVM-rapport 770501003, 1993
9. Jaarsveld J.A. van. Een operationeel atmosferisch transportmodel voor prioritare stoffen, specificatie en aanwijzingen voor gebruik. RIVM-rapport 228603008, 1989
10. Schutter M.A.A., van Jaarsveld J.A. Verspreiding en depositie van dioxinen in Nederland. RIVM-rapport 730501036, 1993
11. Bolt A., de Jong A.P.J.M. Ambient air dioxin measurement in the Netherlands. *Chemosphere* 1993; 27: 73-81
12. Bolt A., de Jong A.P.J.M. Onderzoek naar buitenlucht concentraties van 2,3,7,8-chloorgesubstitueerde dioxinen en furanen in Nederland. Deel I: Methodeontwikkeling. RIVM-rapport 730501038, 1992
13. Bolt-Moekoet A., de Jong A.P.J.M. Onderzoek naar buitenlucht concentraties aan 2,3,7,8-chloorgesubstitueerde dioxinen en furanen in Nederland. Deel II:

- Gehalten in een ruraal gebied (nulpuntsmeting). RIVM-rapport 770501008, 1993
14. Bolt-Moekoet A., de Jong A.P.J.M. Onderzoek naar buitenlucht concentraties aan 2,3,7,8-chloorgesubstitueerde dioxinen en furanen in Nederland. Deel III: Gehalten in een stedelijk gebied. RIVM-rapport 770501013, 1993
 15. Bolt-Moekoet A., de Jong A.P.J.M. Onderzoek naar buitenlucht concentraties aan 2,3,7,8-chloorgesubstitueerde dioxinen en furanen in Nederland. Deel IV: Gehalten in een randstedelijk gebied (Zegveld). RIVM-rapport 770501016, 1994
 16. Liem A.K.D., de Jong A.P.J.M., Marsman J.A., de Boer A.C., Groenemeijer G.S., den Hartog R.S., de Korte G.A.L, Hoogerbrugge R., Kootstra P.R., van't Klooster H.A. *Chemosphere* 1990; 20: 843-850
 17. Ryan J.J., Conacher H.B.S., Panopio L.G., Lau B.P.Y., Hardy J.A.. *J Chromatogr.* 1991; 541: 131-183
 18. Hiester E. *Aus der Tätigkeit der LIS (Essen).* 1993; 43-54
 19. Aben J.M.M., Bleeker A. et al. *Luchtkwaliteit. Jaaroverzicht 1993.* RIVM-rapport 722101014, 1994
 20. König J., Theisen J., Günther W.J., Liebl K.H., Büchen M. *Chemosphere* 1993; 26: 851-86

FIGUUR 2

Verloop van dioxinegehalten in koemelk van drie melkveebedrijven in de tijd.

Time courses for PCDD/Fs in cows milk of three dairies in a MSW deposition area



BIJLAGE 1

Tabel 1: Gemeten gehalten PCDD/F in luchtmonsters; voorkomen van windrichting in monsters verdeeld naar 4 sectoren alsmede neerslag en windsnelheid tijdens bemonstering.

Windsector Monstercode	N-O	O-Z	Z-W [%]	W-N	Var	Neerslag [mm]	Wind [m/s]	PCDD/F [fg TEQ/m3]
Vlaardingen								
13	10	0	6	84	0	0	6	6±2
14	47	0	0	53	0	0	6	8±2
15	17	0	0	82	1	0	6	13±3
19	0	3	95	2	0	18	13	64±13
20	0	4	74	18	4	14	6	51±10
22	0	13	81	3	3	20	13	34±7
25	32	12	45	7	4	15	6	64±13
26	0	20	68	12	0	7	6	99±20
27	0	0	72	28	0	0	6	141±28
29	0	20	58	21	1	0	6	133±26
Gemiddelde	11	7	50	31	1			
Witteveen								
41	3	59	20	0	18	1	1	26±5
42	0	75	23	0	2	0	3	21±4
43	50	50	0	0	0	0	2	18±4
44	47	32	19	0	2	0	2	40±8
45	82	7	2	0	9	0	5	17±3
46	45	0	30	20	5	1	8	9±2
48	11	3	80	3	3	2	3	22±4
49	0	5	93	2	0	1	3	58±12
50	0	40	54	5	1	14	3	32±7
51	8	27	60	0	5	0	5	48±10
52	0	0	100	0	0	0.4	3	63±13
56	0	0	88	12	0	14	5	22±4
Gemiddelde	21	25	47	4	4			
Wijnandsrade								
59	0	0	100	0	0	0.2	6	99±19
60	0	0	90	10	0	0.3	7	48±10
62	0	0	98	2	0	0.3	6	64±13
63	11	0	18	71	0	1	5	39±8
64	82	10	0	5	3	0.1	3	52±10
66	0	31	65	4	0	1	4	32±7
68	0	15	74	11	0	13	8	26±5
70	0	2	83	14	1	3	4	71±14
71	0	34	62	0	4	0	4	65±13
74	86	2	10	0	2	0	4	40±8
76	93	0	0	7	0	0	4	45±9
77	95	0	0	5	0	0	5	75±15
Gemiddelde	31	8	50	11	1			
Zegveld								
78	5	75	10	7	3	15	5	21±4
80	0	0	92	8	0	18	5	59±12
81	0	0	68	32	0	3	4	17±3
82	37	0	0	63	0	0	3	7±2
83	0	0	22	76	2	0.2	3	4±2
84	0	14	26	55	5	1	4	11±2
85	92	0	0	2	6	0	4	5±2
86	100	0	0	0	0	0	5	4±2
88	6	0	22	72	0	0	4	9±2
89	0	0	86	14	0	0	5	44±9
90	0	14	70	12	4	3	4	20±4
Gemiddelde	22	9	36	31	2			