

Bezoekadres:
Rijnstraat 8
Den Haag
Postadres:
Postbus 30947
2500 GX Den Haag
Telefoon: 070 - 3393034
Fax: 070 - 3391342

Aan
de Minister van Volkshuisvesting,
Ruimtelijke Ordening en Milieubeheer
Postbus 30945
2500 GX Den Haag

TCB S33(1998)

Den Haag, 28 juli 1998

Betreft: advies Actuele risicobeoordeling van bodemverontreiniging met PAK

Mevrouw de Minister,

In uw brief van 21 april 1998, kenmerk DBO/ 98038006, vroeg u de Technische commissie bodembescherming een advies uit te brengen over de risicobeoordeling van bodemverontreiniging met PAK. Het is mij een genoegen u het advies thans aan te bieden.

Op basis van informatie over blootstellingsmodellen en empirische gegevens over opname van PAK in gewassen is de commissie tot de conclusie gekomen dat blootstelling aan bodemverontreiniging via gewassen slechts marginaal bijdraagt aan de inname van PAK door de mens. PAK kunnen wel in het buitenste deel van de plantwortels worden opgenomen, maar kunnen nauwelijks naar de rest van de plant worden getransporteerd.

Het model CSOIL dat vaak bij actuele risicobeoordelingen wordt gebruikt geeft een overschatting van de bijdrage van de consumptie van gewassen aan de blootstelling aan bodemverontreiniging met PAK. Bij de afleiding van interventiewaarden, waarvoor CSOIL primair is ontwikkeld, is een conservatieve benadering, dat wil zeggen een overschatting van de opname van PAK door consumptiegewassen, gebruikelijk en ook gerechtvaardigd gezien het feit dat PAK in combinatie met andere organische verbindingen kunnen voorkomen die plantopname bevorderen. Bij het schatten van actuele risico's zou dus meer rekening moeten worden gehouden met de aannames die aan het CSOIL model ten grondslag liggen.

Risicobeoordeling bij bodemverontreiniging met PAK is thans beperkt tot de zogenoemde 10 VROM PAK. In diverse bronnen wordt aangegeven dat andere PAK, met name nitro-PAK vanwege hun carcinogeniteit en mutageniteit eveneens relevant zouden kunnen zijn bij een risicobeoordeling voor de mens. De opname van nitro-PAK uit de bodem door gewassen is naar verwachting vergelijkbaar met andere PAK verbindingen. De commissie heeft echter geen inzicht kunnen krijgen hoe relevant deze vorm van PAK is in verband met het vòòrkomen bij gevallen van bodemverontreiniging. De commissie acht het wenselijk dat hier meer informatie over beschikbaar komt, waarbij zij zich realiseert dat het meten van nitro-PAK technisch moeilijk en kostbaar is.

Met de meeste hoogachting,
de voorzitter van de
Technische commissie bodembescherming,
namens deze:
de plaatsvervangend voorzitter,



Prof.dr.ir. F.A.M. de Haan.

ADVIES
ACTUELE RISICOBEOORDELING
VAN BODEMVERONTREINIGING
MET PAK

ADVIES
ACTUELE RISICOBEOORDELING VAN
BODEMVERONTREINIGING MET PAK

Dit advies is vastgesteld op de TCB-vergadering van 13 mei 1998.

Namens de commissie,

De secretaris,



Dr. J.J. Vegter.

De voorzitter,



Ir. W.C. Reij.

INHOUD

1. INLEIDING	1
2. PAK: ACHTERGRONDEN	5
3. MODELMATIGE SCHATTING VAN BLOOTSTELLING	13
4. EMPIRISCHE SCHATTING VAN BLOOTSTELLING	17
5. SAMENVATTING EN CONCLUSIES	23
6. REFERENTIES	25

BIJLAGE: ADVIESAANVRAAG

1 INLEIDING

Bodemverontreiniging met polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK) komt vaak voor in Nederland. PAK komt op of in de bodem terecht door atmosferische depositie van PAK die vrijkomt bij verbranding van fossiele brandstoffen, door deponie van afvalproducten die PAK bevatten (bijvoorbeeld koolteer, residuen van afvalverbranding) en door toepassing van PAK houdende stoffen zoals asfalt en houtverduurzamingsmiddelen. Als op een locatie de interventiewaarde voor PAK wordt overschreden, wordt een actuele risicobeoordeling uitgevoerd om de urgentie van een bodemsanering te bepalen en inzicht te krijgen in de maatregelen die kunnen worden genomen.

Typische gevallen van PAK-verontreiniging doen zich voor op voormalige mijnterreinen in Limburg. Deze zijn na het sluiten van de mijnen bebouwd. In de bodem van de voormalige mijnterreinen bevinden zich grote hoeveelheden mijnstenen, een afvalproduct van de steenkoolwinning. In de mijnsteen kan verontreiniging van met mijnbouw geassocieerde industrie worden aangetroffen. Op het Lauraterrein te Kerkrade is bijvoorbeeld mijnsteen en pek, dat gebruikt werd bij de fabricage van briketten en eierkolen, vermengd geraakt met de op de mijnsteen aangebrachte grond. Er worden lokaal hoge gehalten aan polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK), afkomstig uit de pek, aangetroffen. Ook op andere mijnterreinen wordt PAK-verontreiniging aangetroffen. Het onderzoek en de sanering van het Lauraterrein, waarover de Technische commissie bodembescherming (TCB) in 1991 adviseerde (1), heeft model gestaan voor de aanpak van andere mijnterreinen. De algemene toepasbaarheid van de bevindingen van de commissie over de sanering van PAK verontreiniging op het Lauraterrein zijn onderwerp geweest van het advies Saneringswijze mijnterreinen dat in 1995 is uitgebracht (2).

Inmiddels is de aanpak van de bodemverontreiniging aan het veranderen. Met de rapporten van de commissie Welschen en het kabinetsstandpunt over de vernieuwing van het bodemsaneringsbeleid, komt naast bodemsanering, actief bodembeheer naar voren als strategie voor het omgaan met bodemverontreiniging. Daarbij doet zich met name in Zuid-Limburg de vraag voor hoe met PAK verontreiniging in het kader van actief bodembeheer moet worden omgegaan. Dit heeft tot een nieuwe adviesaanvraag geleid van de Minister van Volkshuisvesting, Ruimtelijke Ordening en Milieubeheer (VROM) aan de commissie (brief d.d. 22 april 1998, kenmerk DBO/ 98038006, zie bijlage).

Deze adviesaanvraag is een uitvloeisel van een brief van 27 november 1997 van het Overlegplatform Milieu Oostelijk Zuid-Limburg (OZL, zie bijlage adviesaanvraag), een samenwerkingsverband van acht gemeenten in die streek. Zes van deze gemeenten willen in 1998 een start maken met de ontwikkeling van integraal bodembeleid, in het kader van het "actief bodembeheer Oostelijk Zuid-Limburg". De gemeenten binnen het overlegplatform kampen met het probleem van diffuse bodemverontreiniging met PAK ten gevolge van de mijnbouwactiviteiten en aanverwante industrie. Het Overlegplatform Milieu OZL acht het vastleggen van een risicogrenswaarde voor PAK in het kader van een actuele risicobeoordeling voor de mens een belangrijk onderdeel van de ontwikkeling van integraal bodembeleid. Een risicogrenswaarde voor PAK is ook landelijk van waarde, omdat met PAK verontreinigde bodems in Nederland vrij algemeen voorkomen.

Bij bodemverontreiniging met PAK wordt voor de mens de blootstelling via ingestie van grond en gewasconsumptie het meest relevant geacht. Een moeilijkheid bij het vastleggen van een risicogrenswaarde voor PAK is het gebrek aan kennis over de opname van PAK uit de bodem door planten. Het blootstellingsmodel CSOIL, dat wordt gebruikt voor de afleiding van potentiële humane blootstellingsrisico's, gebruikt een sterk vereenvoudigd model voor de opname van stoffen door planten vanuit de bodem. Momenteel onderzoekt het Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM) of het opnamemodel verbeterd kan worden. Hoewel het model daar niet voor bedoeld is, wordt CSOIL vaak gebruikt om actuele risico's mee te bepalen. In plaats van generieke gegevens worden locatiespecifieke gegevens gebruikt en uiterekend wat de blootstelling van de mens ter plaatse is. Voor PAK leidt dit tot hoge berekende blootstellingsniveaus.

Naar aanleiding van het bovenstaande heeft de Minister van VROM de volgende vragen aan de TCB gesteld:

- Welke wetenschappelijke kennis is beschikbaar over de opname van PAK door gewassen, zowel kennis ontleend uit de praktijk als uit blootstellingsmodellen?
- Hoe kan deze kennis enerzijds doorwerken in CSOIL en daarmee in de afleiding van interventiewaarden?
- Hoe kan deze kennis anderzijds doorwerken in actuele risicobeoordeling zowel in het kader van actief bodembeheer als in het kader van functiegericht saneren?

LEESWIJZER

In hoofdstuk 2 komen de eigenschappen en vorming van PAK, normstelling voor PAK en advisering over PAK kort aan de orde, voor zover relevant voor dit advies. Het

spreekt voor zich dat de nadruk hierbij zal liggen op humaan toxicologische risico's van PAK die via de mond worden ingenomen. In hoofdstuk 3 wordt de modelmatige schatting van humane blootstelling aan PAK behandeld. Vervolgens komen in hoofdstuk 4 de praktijkgegevens over de opname van PAK in planten aan de orde. Het advies wordt afgesloten met de beantwoording van de vragen van de Minister en de overige conclusies (hoofdstuk 5).

Ter onderbouwing van het advies is onder leiding van de heer Govers, lid van de TCB, een discussienotitie opgesteld door de afdeling milieu- en toxicologische chemie van de Universiteit van Amsterdam. Hierin wordt met name ingegaan op de opname van PAK door planten en de risico's die met stikstof gesubstitueerde PAK met zich mee kunnen brengen. De gegevens uit deze notitie zijn verwerkt in het advies.

2 PAK: ACHTERGRONDEN

De verspreiding van PAK in het milieu is een gevolg van zowel natuurlijke als antropogene processen. Antropogene bronnen worden vooral gevormd door verbranding van fossiele brandstoffen, afvalverbranding en lekkage van olie en teerhoudende stoffen (3). Voornamelijk deze processen zijn verantwoordelijk voor de stijging van het gehalte aan PAK in het milieu gedurende de afgelopen eeuw (4). Voor wat betreft natuurlijke bronnen worden bosbranden en vulcanisme genoemd.

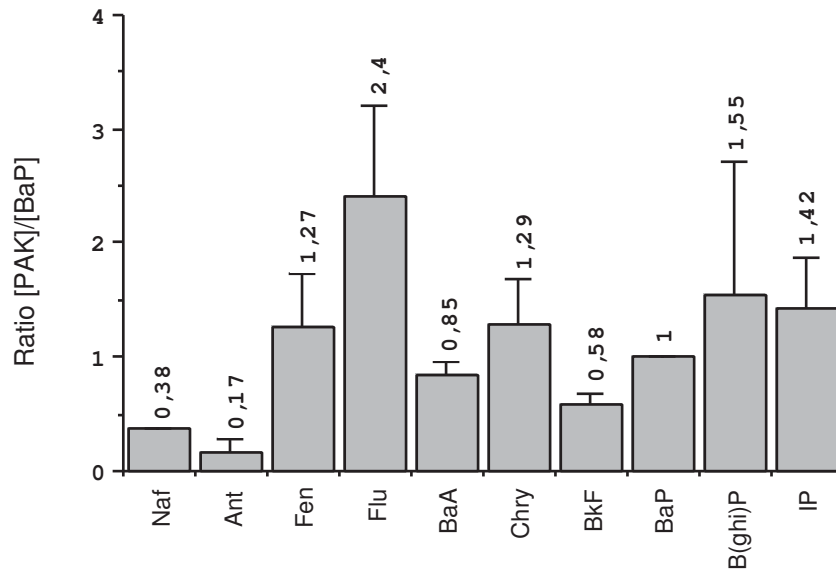
Zoals de naam al aangeeft bestaan polycyclische aromatische koolwaterstoffen uit verbindingen opgebouwd uit 2 of meer aromatische ringen, die uitsluitend uit koolstof en waterstof bestaan. Behalve deze overeenkomst zijn PAK echter ook een groep van stoffen die onderling sterk verschillen in molecuulstructuur en daardoor in eigenschappen en de verspreiding in het milieu. In tegenstelling tot de laagmoleculaire PAK¹ (PAK bestaande uit een rechte keten van 2 à 3 benzeenringen) zijn de hoogmoleculaire PAK (meer dan 3 benzeenringen) minder vluchtig, slecht oplosbaar in water en lipofiel. Er kan ook sprake zijn van substitutie van stikstof of zwavel aan PAK; over deze groep van stoffen is weinig bekend.

Naarmate het aantal ringen in PAK toeneemt, neemt de afbreekbaarheid af. In een langdurig experiment werd een groot aantal keren met PAK gecontamineerd zuiveringsslib aan de bodem toegevoegd. Aan het begin van het experiment (1942) bevatte de bodem een Σ PAK-gehalte van circa 200 $\mu\text{g}/\text{kg}$. In 1960 was dit gehalte gestegen tot 5500 $\mu\text{g}/\text{kg}$, waarna er geen zuiveringsslib meer aan de bodem werd toegevoegd. Het Σ PAK-gehalte nam hierna af, echter in 1984 bevatte de lokatie nog steeds 3 maal zoveel PAK als de controlelokatie. In het experiment bleek benzo(a)pyreen (BaP) de meest persistente PAK. In 1984 bleek de fractie BaP in de bodem nog 36% te bedragen van de totale input ten opzichte van 39% in 1967. De vluchtige PAK waren daarentegen volledig uit de bodem verdwenen (6).

De mate waarin afzonderlijke PAK in de diverse milieucompartmenten voorkomen, verschilt van compartiment tot compartiment. Dicht bij de bron blijken verschillende PAK weliswaar in wisselende concentraties voor te komen, op grotere schaal

¹ Er bestaan verschillen in de plaats waar de grens wordt gelegd tussen laag- en hoogmoleculaire PAK. De scheiding wordt ook wel gemaakt op basis van molecuulgewicht. In het basisdocument PAK (5) wordt de grens gelegd bij een molecuulgewicht van 228, vanaf benz(a)anthraceen.

blijken de verschillende soorten PAK echter vaak in dezelfde verhoudingen tot elkaar voor te komen. Deze verhouding wordt het "PAK-profiel" genoemd. Er zijn verschillende PAK-profielen opgesteld voor de diffuse PAK verontreiniging in Nederland, die redelijk overeenkomstige trends vertonen (zie figuur 1).



Figuur 1. Voorbeeld van een gemiddeld PAK-profiel voor een diffuus verontreinigde bodem, gebaseerd op gemiddelde profielen uit negen gebieden met een niet al te hoge belasting van PAK en afwezigheid van specifieke bronnen. Naf = Naftaleen; Ant = Antraceen; Fen = Fenantreen; Flu = Fluorantreen; BaA = Benzo(a)antraceen; Chry = Chryseen; BkF = Benzo(k)fluorantreen; BaP = Benzo(a)pyreen; B(ghi)P = benzo(ghi)peryleen; IP = Indeno(1,2,3cd)pyreen. Uit referentie 3.

Stikstofhoudende PAK (Nitro-PAK) worden aangetroffen in bijprodukten van de steenkoolindustrie, maar komen waarschijnlijk niet in steenkool voor (7). Nitro-PAK zijn aangetroffen in koolteer, koolvliegias, asfalt, olie uit kolen en (destillaat van) zware olie. Nitro-PAK worden gevormd bij de verbranding van diesel en andere fossiele brandstoffen. Hiervoor zijn een hoge temperatuur en een overmaat zuurstof nodig. Nitro-PAK kunnen ook gevormd worden tijdens fotochemische smog-processen in de atmosfeer (7).

BLOOTSTELLING VAN DE MENS AAN PAK IN VOEDSEL

Uit onderzoek dat in Nederland is gedaan naar de blootstelling van mensen via voedsel blijkt dat de hoogste blootstelling aan PAK afkomstig is van (in aflopende volgorde) vezelrijke produkten (bijvoorbeeld brood, pasta's), zoetwaren (suiker, chocolade en drop) en oliën en vetten (8). Blootstelling via aardappel(producten) en groenten komen slechts op respectievelijk de 7^e en 8^e plaats. Blootstelling via bijvoorbeeld wortels en knolgewassen is verwaarloosbaar. De blootstelling via gewas-

sen aan PAK is dus laag. Uit literatuuronderzoek (9) blijkt dat de gehalten van PAK in het algemeen en benzo(a)pyreen (BaP) in het bijzonder vooral in de groepen "oliën en vetten", "granen" en "groenten" hoog zijn. In dit onderzoek bleken echter vooral de gehalten van niet-wortelgroenten hoog te zijn. Dit zou er op kunnen wijzen dat het grootste deel van de PAK in gewassen afkomstig is van atmosferische depositie en niet van bodemverontreiniging. Voor dit literatuuroverzicht zijn gegevens uit verschillende landen gebruikt.

BASISDOCUMENT EN ADVIES GEZONDHEIDSRAAD

In 1989 bracht het RIVM het basisdocument PAK uit (5). Hierin is, ook op verzoek van het Ministerie van VROM, een reeks van 10 PAK geselecteerd om het aantal te evalueren PAK te beperken. De 10 PAK zijn geselecteerd uit andere PAK-reeksen op basis van een aantal criteria. Deze criteria zijn onder andere het gemak waarmee de individuele PAK kunnen worden bepaald, de carcinogeniteit van de verbinding en de relatie van de PAK-reeks met emissie-profielen van bronnen. Er komen in deze reeks geen gesubstitueerde PAK voor. De normstelling in Nederland beperkt zich tot de 10 VROM-PAK (zie tabel 1).

Tabel 1. De 10 VROM-PAK en enkele chemische eigenschappen (5). Log K_{ow} is de octanol-watervedelingscoëfficiënt, de Henry constante is een dimensieloze coëfficiënt voor de verdeling tussen lucht en water.

	Mol. gewicht	Log K_{ow}	Henry constante
Naftaleen	128	3,5	$7,8 \cdot 10^{-3}$
Antraceen	178	4,5	$2,6 \cdot 10^{-4}$
Fenantreen	178	4,5	$2,9 \cdot 10^{-4}$
Fluoranteen	202	5,1	$1,5 \cdot 10^{-4}$
Benzo(a)antraceen	228	5,6	$7,6 \cdot 10^{-5}$
Chryseen	228	5,6	$2,5 \cdot 10^{-5}$
Benzo(k)fluoranteen	252	6,0	$9,3 \cdot 10^{-7}$
Benzo(a)pyreen	252	6,0	$9,3 \cdot 10^{-6}$
Benzo(ghi)peryleen	276	6,6	$2,0 \cdot 10^{-6}$
Indeno (1,2,3cd)pyreen	276	6,4	$6,1 \cdot 10^{-6}$

Verder werd in het basisdocument voorgesteld om BaP aan te wijzen als een gidsstof voor PAK in het algemeen. Als de concentratie BaP bekend is dan zou aan de hand van het in het basisdocument opgegeven PAK-profiel de concentraties van andere PAK kunnen worden berekend. Daarnaast werd voorgesteld om bij de beoordeling van inhalatoire en orale blootstelling gebruik te maken van een somwaarde voor de groep van 10 PAK in plaats van advieswaarden voor de afzonderlijke PAK, vanwege de beperkte beschikbaarheid van gegevens. Hierbij wordt gebruik gemaakt van

schalingsfactoren die de relatieve carcinogene potentie van verschillende PAK ten opzichte van BaP aangeven (BaP-equivalenten). Voor orale blootstelling wordt in het basisdocument een lifetime risico² van 10^{-6} berekend bij orale opname van 20-40 ng BaP per kg lichaamsgewicht per dag gedurende het hele leven.

De Gezondheidsraad heeft in 1990 advies uitgebracht over het basisdocument PAK (10). Volgens de Gezondheidsraad zijn de 10 VROM-PAK wat betreft hun kanker-
verwekkend vermogen beperkt representatief voor het mengsel van PAK waaraan de bevolking in het algemeen kan blootstaan. Er wordt niet uitgesloten dat zich onder de andere PAK sterk kankerverwekkende verbindingen bevinden. Het is ook niet zeker of BaP de meest geschikte gidsstof voor de blootstelling aan PAK is. Er wordt op gewezen dat er nitro-PAK bestaan die wellicht even kankerverwekkend zijn als BaP. De Gezondheidsraad beveelt aan om geregeld een aantal PAK in voedsel, water en lucht te meten. Voorlopig kan men hierbij BaP als gidsstof nemen. Andere PAK moeten echter ook steekproefsgewijs worden onderzocht om na te gaan of de verschillende PAK zich inderdaad tot elkaar verhouden als volgens het PAK-profiel mag worden verwacht. De Gezondheidsraad geeft aan dat een steekproef uit de selectie van de 10 VROM-PAK hiervoor een goede richtlijn geeft.

Ten aanzien van de somwaarde voor PAK geeft de Gezondheidsraad aan voorkeur te hebben voor advieswaarden voor de afzonderlijke PAK, onder meer vanwege het ontbreken van eenduidige gegevens over combinatie-effecten. Aangezien gegevens slechts beperkt beschikbaar zijn, ziet de Gezondheidsraad echter geen alternatief voor de somwaarde bij de beoordeling van inhalatoire blootstelling. Het berekenen van het totale risico van blootstelling aan een mengsel van PAK via de mond met behulp van schalingsfactoren wijst zij echter af in verband met de grote onzekerheden: het risico voor de mens van opname van PAK via voedsel en drinkwater kan slechts met enige zekerheid worden afgeleid voor BaP. De raad kan instemmen met het afgeleide lifetime risico van 10^{-6} voor orale opname van BaP.

NORMSTELLING VOOR PAK

Voor de som van de 10 VROM-PAK in de bodem is een streefwaarde van 1 mg/ kg en een interventiewaarde van 40 mg/ kg vastgesteld. Bij de beoordeling wordt geen onderscheid gemaakt door aan de verschillende verbindingen weegfactoren op basis van de mate van toxiciteit mee te geven. Bij het bepalen van de saneringsurgentie worden in een aantal standaardsituaties grenzen gehanteerd voor de som van 9 PAK

² Een lifetime risico van 10^{-6} wil zeggen: één extra kankergeval per miljoen blootgestelden, na blootstelling gedurende het hele leven.

(10 VROM-PAK met uitzondering van naftaleen). Beneden de volgende grenzen is er in deze situaties geen sprake van urgentie: openbaar groen < 1200 mg/ kg; huizen met tuin < 140 mg/ kg; moestuinen < 10 mg/ kg. De hoogte van deze criteria komt overeen met het bereiken van het maximaal toelaatbaar risiconiveau (MTR) voor de mens als gevolg van bodemverontreiniging in deze situaties (zoals berekend met CSOIL). Bij de afleiding van de interventiewaarden voor bodem is een MTR van 1110 mg/ kg voor BaP bepaald. Het verwaarloosbaar risiconiveau is dan gelijk aan 11 mg/ kg (MTR/ 100).

Meer informatie over PAK en de normstelling voor PAK is te vinden in de TCB-adviezen "Saneringswijze mijnterreinen" en "Aanpassing interventiewaarde PAK" (2, 11) en in het TCB-rapport "Combinatie-toxiciteit in het terrestrische milieu" (3), waarin PAK als een case study zijn opgenomen.

EFFECTEN VOOR MENS

Niet-carcinogene toxische effecten van PAK zijn gevonden in dierproeven na blootstelling aan hoge concentraties PAK. De uitkomsten van deze proeven zijn niet zonder meer extrapoleerbaar naar de mens. Het is niet duidelijk welke betekenis de gevonden resultaten hebben voor gezondheidsrisico's voor de mens. Bovendien traden de effecten pas op bij concentraties waarbij (voor carcinogene PAK) ook carcinogene effecten zijn beschreven.

Van de 10 VROM-PAK wordt BaP als de meest carcinogene beschouwd. Als de carcinogeniteit van de overige 9 PAK wordt gerelateerd aan die van BaP dan is de carcinogene potentie van deze stoffen tenminste 11-33 x lager (met uitzondering van chryseen waarover onduidelijkheid bestaat en waarvan de carcinogene potentie in het meest ongunstige geval gelijk is aan die van BaP, referentie 5). De International Agency on Research of Cancer (IARC) heeft een evaluatie gemaakt van 45 individuele koolteercomponenten (12). Op grond van de evaluatie van dierexperimenteel onderzoek en screeningsonderzoek is een indeling gemaakt van stoffen waarvoor "voldoende", "beperkt", "onvoldoende" en "geen bewijs" is voor carcinogeniteit. Voor 15 PAK werd voldoende bewijs gevonden voor carcinogeniteit. In deze groep komen vier nitro-PAK voor. Volgens referentie 12 kunnen nitro-PAK carcinogeen en mutageen zijn. Het is echter niet mogelijk om een uitspraak te doen over hoe de carcinogene potentie van deze nitro-PAK zich verhoudt tot die van bijvoorbeeld BaP. Voor een algemene risicobeoordeling voor de mens lijken deze PAK op basis van hun toxiciteit van belang te zijn. Deze groep is echter niet vertegenwoordigd in de 10 VROM-PAK.

TOXICITEIT VAN PAK VOOR PLANTEN

Uit een recent overzicht van de biobeschikbaarheid en ecotoxiciteit van PAK (13) blijken er zeer weinig gegevens beschikbaar te zijn over de toxiciteit voor planten. Alleen gegevens voor naftaleen en antraceen werden gevonden. De EC_{50} ³ van naftaleen voor de groei van bovengrondse delen van sla (*Latuca sativa*) bedraagt ± 100 mg/ kg. De EC_{50} van antraceen voor de groei van haver (*Avena sativa*) en augurk (*Cucumis sativus*) bedraagt 30 mg/ kg en 720 mg/ kg. De EC_{50} 's voor groei en LC_{50} 's van antraceen voor vier andere plantensoorten waren hoger dan 1000 mg/ kg.

TCB-ADVISING OVER MIJNTERREINEN

In 1990 vroeg de Minister van VROM de TCB advies over de voorgenomen saneringsmaatregelen voor het Lauraterrein te Kerkrade. Dit voormalige mijnterrein was plaatselijk ernstig verontreinigd met PAK, dat afkomstig was uit de voormalige pekopslag op het mijnterrein. Ten behoeve van de onderbouwing van de saneringsmaatregelen waren risico-evaluaties uitgevoerd door het RIVM (14), dat gebruik maakte van gegevens uit het nader onderzoek en saneringsonderzoek van het Projectbureau voor Industrieel Afval (15, 16). Hierbij werden de opname via de huid, via inademing en via de mond (spelende kinderen) beschouwd. De conclusies uit deze risico-evaluatie waren als volgt.

- Voor opname van PAK via de huid, zowel door kinderen als volwassenen, ligt het risico van lokale effecten op de huid hoogstens rond het "verwaarloosbaarheidsniveau".
- Uit de (schaarse) meetgegevens kon niet worden afgeleid of er in binnen- of buitenlucht op het Lauraterrein verhoogde PAK-concentraties voorkomen ten opzichte van "achtergrondwaarden".
- Ten aanzien van opname via de mond werd gesteld dat er in principe drie mogelijke blootstellingswegen waren: via drinkwater, via op het terrein geteelde groente en via opname van grond door spelende kinderen. In grond- en drinkwater werd echter geen PAK aangetroffen. Het RIVM achtte opname van PAK door de wortels van planten verwaarloosbaar en opname via groenten zou alleen van belang zijn wanneer PAK-houdend stof zich op groenten afzet. De gemeten PAK-concentraties in luchtstof gaven echter geen aanleiding om te veronderstellen dat

³ EC_{50} = concentratie waarbij 50% effect wordt gevonden (50% prestatievermindering). LC_{50} = concentratie waarbij 50% van de proeforganismen in een bepaalde tijdsduur is gestorven.

dit een rol speelt. De route via opname van grond door spelende kinderen werd relevant geacht en uitgewerkt voor BaP als gidsstof.

De TCB kon zich vinden in deze benadering voor het Laura-terrein, en stelde voor om uitgaande van het risico voor spelende kinderen een op het gedrag van het kind aangepaste bemonstering uit te voeren. Zij stelde daarnaast dat indien het PAK-gehalte in deze mengmonsters, uitgedrukt als BaP-equivalenten, meer dan 7 mg/ kg bedroeg, maatregelen overwogen konden worden vanwege het aanwezig zijn van bodemverontreiniging. Bij 7 mg/ kg wordt het verwaarloosbare risiconiveau voor BaP bereikt, gebaseerd op het lifetime risico van 10^{-6} berekend bij orale opname van 20-40 ng BaP per kg lichaamsgewicht per dag gedurende het hele leven. Bij overschrijding kan volgens de commissie echter niet onmiddellijk worden gesproken van "ernstig gevaar voor de volksgezondheid".

In haar advies "Sanering mijnterreinen" geeft de commissie aan dat gezien de huidige invulling van het beleid en de criteria die daarbij worden gehanteerd de keuze van de kwaliteit van een deklaag op een voormalig mijnterrein beperkt lijkt te worden tussen de lokale achtergrond⁴ en het beleidsmatig voorgestelde urgentie criterium voor huizen met tuin⁵. De commissie ziet geen bezwaar in het handhaven van de op basis van het TCB-advies over het Laura-terrein gekozen terugsaneernorm van 7 mg/ kg. De commissie stelde wel dat deze grens ten onrechte de status heeft gekregen van een door de TCB opgelegde vaste norm.

De waarde van 7 mg/ kg komt in de praktijk overeen met het verwaarloosbaar risiconiveau van 11 mg/ kg voor BaP dat kan worden berekend uit het MTR-humaan dat is afgeleid in het kader van de interventiewaarden. Op de mijnterreinen komt 7 mg/ kg BaP-equivalenten ongeveer overeen met 35 mg/ kg PAK (2). Hierbij moet nog worden aangetekend dat het onduidelijk is hoe groot de carcinogene potentie van chryseen ten opzichte van die van BaP is. In het basisdocument PAK (5) wordt gesteld dat de carcinogene potentie van chryseen in het ongunstigste geval gelijk is aan die van BaP. Dit standpunt is ook terug te vinden bij de afleiding van humane MTR's in het kader van de interventiewaarden (17, 18). De commissie vindt echter dat de onderzoeksresultaten die hieraan ten grondslag liggen dermate onzeker zijn dat er onvol-

⁴ 3,5 mg/kg EPA-PAK; op de mijnterreinen komt dit overeen met ongeveer 0,5 mg/kg BaP-equivalenten. De EPA-PAK zijn 16 PAK; de 10 VROM-PAK en acenafteen, acenaftyleen, fluoreen, pyreen, benzo(b)fluorantheen en dibenzo(a,h)anthraceen.

⁵ 800 mg/kg 10 VROM-PAK met uitzondering van naftaleen; op de mijnterreinen komt dit overeen met ongeveer 160 mg/kg BaP equivalenten.

doende reden is om de carcinogene potentie van chryseen gelijk te stellen aan die van BaP.

CONCLUSIE

Bij de risico-evaluaties voor de voormalige mijnterreinen in Oostelijk Zuid-Limburg is de blootstellingsroute via gewas in een vroeg stadium als niet-relevant terzijde geschoven. De adviesgrens voor terugsaneren of voor de kwaliteit van afdeklagen is gebaseerd op de risico's voor blootstelling via de mond door het opnemen van grond door spelende kinderen. In het volgende hoofdstukken zal worden ingegaan op de vraag waarom de gewasroute modelmatig toch een rol speelt en of het negeren van deze route bij een actuele risicobeoordeling terecht is.

3 MODELMATIGE SCHATTING VAN BLOOTSTELLING

Voor de potentiële risicobeoordeling voor blootstelling van de mens aan PAK wordt thans het blootstellingsmodel CSOIL gebruikt. De bodem-gewasrelatie speelt hierbij een rol. In CSOIL wordt hiervoor gebruik gemaakt van een sterk vereenvoudigd opnamemodel. Het RIVM onderzoekt momenteel of dit opnamemodel kan worden verbeterd. Bovendien start het RIVM binnenkort met een uitgebreide wetenschappelijke evaluatie van de bestaande interventiewaarden bodemsanering. Ook hierbij komt aan de orde of het opnamemodel aanpassing behoeft.

Er zijn twee stappen in het CSOIL-model die de opname door planten bepalen:

1. de berekende concentratie in het bodemvocht die afhankelijk is van de lipofiliteit van een verbinding. De lipofiliteit wordt uitgedrukt in de octanol-waterverdelings-coëfficiënt (K_{OW}). Verbindingen met een $\log K_{OW}$ groter dan nul hebben een voorkeur voor de octanol-fase boven de waterfase, en verplaatsen zich van de bodemoplossing naar de plantenwortel (19);
2. het opnamepotentieel van een plant voor PAK aanwezig in het bodemvocht, de bioconcentratiefactor (BCF). De BCF wordt berekend uit de K_{OW} met een formule volgens Briggs et al. (20, 21); deze legt een positief verband tussen BCF en K_{OW} . Voor lage K_{OW} -waarden zou dit volgens Briggs et al. op gaan. De 10 VROM-PAK hebben echter hoge $\log K_{OW}$ -waarden, variërend van 3,4 tot 6,6. De PAK met de hoogste carginogene potentie, benzo(a)pyreen en mogelijk chryseen, hebben een $\log K_{OW}$ van respectievelijk 6,0 en 5,6. Bij toepassing van de formule kan de opname dus sterk worden overschat.

Desondanks worden zowel voor de schatting van PAK-concentraties in de boven- als ondergrondse delen van de planten de relaties van Briggs et al. als de best bruikbare gezien (22). Een alternatief zou de relatie van Travis en Arms zijn (23). Deze relatie wijst op een lagere BCF bij hogere K_{OW} . Maar ook deze benadering kent problemen, met name de grote spreiding in de relatie. Bovendien wordt in deze functie geen relatie met de fractie organische stof van de bodem gelegd (22).

De VNG heeft in haar uitgave "Bouwen op verontreinigde grond" een lijst van gebruiksspecifieke toetsingswaarden opgenomen (24). De invloed van de gewascon-

sumptie (wonen met moestuin) op de hoogte van de met CSOIL berekenende toetsingswaarden is groot. In tabel 2 zijn voor een aantal PAK de waarden vermeld.

Tabel 2. Gebruiksspecifieke toetsingswaarden in mg/ kg d.s. (24).

Stofnaam	Bodemgebruik			
	wonen met moestuin	wonen met tuin	recreatie, groenvoorziening	wonen zonder tuin, verkeer, maatschappelijk, cultureel
chryseen	<u>10</u>	420	<u>1200</u>	<u>4700</u>
fenantreen	27	<u>140</u>	11000	44000
fluoranteen	46	230	12000	47000

Omdat de interventiewaarden voor PAK gebaseerd zijn op de ecotoxicologie, speelt het belang van PAK bij de humane risicobeoordeling, en dus de gewasroute, pas een rol bij de bepaling van het actuele risico en de urgentie van de sanering. In de urgentiesystematiek zijn getallen opgenomen voor PAK(9)-gehalten (10 VROM-PAK, met uitzondering van naftaleen) voor gevallen van ernstige bodemverontreiniging waarbij, uitgaande van gestandaardiseerde vormen van bodemgebruik, geen actuele humane risico's optreden (tabel 3, referentie 25). Ook deze gehalten zijn gebaseerd op berekeningen met CSOIL. Het verschil met tabel 2 is dat de toetsingswaarde voor PAK niet wordt uitgedrukt in een waarde per individuele PAK maar in een somwaarde.

Tabel 3. Gestandaardiseerde vormen van bodemgebruik volgens de urgentiesystematiek (25).

Afwijking blootstellingsroutes t.o.v. afleiding interventiewaarden	Gestandaardiseerde vormen van bodemgebruik	PAK(9)-gehalte (mg/ kg droge stof)
- geen gewasconsumptie	- infrastructuur	4700
- lager aantal dagen per jaar aanwezig buiten (20%)	- wonen zonder tuin	
- geen gewasconsumptie	- werken/ industrie	
	- natuur	1200
	- openbaar groen	
	- recreatie	
	- braakliggende terreinen	
- alle routes (geen afwijkingen)	- wonen met tuin (10% gewasconsumptie)	140
	- landbouw	
- meer gewas uit eigen tuin	- wonen met moestuin	10

Als de tabellen 2 en 3 met elkaar worden vergeleken, wordt duidelijk dat in de urgentiesystematiek steeds is gekozen voor de strengste norm (onderstreept in tabel 2). Voor de 10 VROM-PAK is in het algemeen de norm voor chryseen het strengst, met

uitzondering van fenantreen voor de categorie wonen met tuin. Bij de hantering van de huidige modellen blijkt dat wonen met moestuin en ook wonen met tuin op een bodem met een laag organisch stofgehalte bezwaarlijk kan worden bij relatief lage gehalten voor chryseen (10 mg/ kg), fenantreen (27 mg/ kg) en fluoranteen (46 mg/ kg). Zowel door de VNG-brochure als door de urgentiesystematiek wordt dus de suggestie gewekt dat gewasconsumptie voor PAK een belangrijke blootstellingsroute is.

Ook in het rapport Actief Bodembeheer in Limburg wordt twijfel geuit over de validiteit van CSOIL voor met name de opname van PAK door gewassen, relevant voor de gebruiksfuncties "wonen met tuin" en "wonen met moestuin" (26). Om te illustreren dat de plantopname zoals berekend via CSOIL sterk wordt overschat, is met dit model voor verschillende PAK de gewasconcentratie berekend bij een bodemconcentratie gelijk aan de streefwaarde. De berekende gehalten in knolgewassen (aardappels, knollen en wortels) liggen een factor 10-100 hoger dan de literatuurgegevens over gemiddelde concentraties in Nederlandse knolgewassen. De overschatting van de gewasconcentratie is zo groot dat het berekende bodemgehalte waarbij geen overschrijding van het verwaarloosbare risiconiveau optreedt via consumptie van gewas, onder de streefwaarde voor PAK komt te liggen (26).

In 1996 is bij het RIVM het deelproject "Accumulatie in planten" gestart als onderdeel van het project "Risico's in relatie tot bodemkwaliteit". Doel van het project is om het formulier voor CSOIL-module "Humane blootstelling via consumptie van gewassen" geschikt te maken voor het bepalen van actuele risico's. Over de evaluatie van CSOIL en suggesties voor verbetering is een RIVM rapport verschenen (27). De formules van CSOIL zijn in de evaluatie doorgelicht voor 3 verschillende groepen stoffen, onder andere organische stoffen. Als onderdeel van de studie zijn bestaande modellen die de accumulatie van stoffen in planten beschrijven, vergeleken om te kijken welke alternatieve modellen er bestaan en welke modellen bruikbaar zouden zijn voor een verbetering van CSOIL. Het RIVM constateert dat een aantal aannamen die in CSOIL zijn gedaan, verfijnd kunnen worden. Voorbeelden zijn:

- de invloed van bodemparameters zou kunnen worden meegenomen;
- er zou rekening moeten worden gehouden met fytotoxiciteit;
- voor het transport van organische stoffen naar bovengrondse plantendelen zou het model een betere schatting moeten geven, bovendien zou er onderscheid moeten worden gemaakt in het soort plantendelen dat wordt geconsumeerd;
- er zou onderscheid moeten worden gemaakt in verschillende soorten planten.

Verder constateerde het RIVM dat de berekening van de opname van organische stoffen in wortels door CSOIL bevredigend was. Men was echter niet tevreden over

de manier waarop CSOIL het transport naar bovengrondse delen en de verdere verdeling over de plant beschreef.

In het vervolg van het project zou een verbeterde module voor plantopname worden uitgewerkt. De uitwerking van deze module is met enige vertraging opgestart en wordt naar verwachting aan het eind van 1998 afgerond. Het eindrapport zal dus niet op tijd beschikbaar zijn voor de TCB om daar in haar advies nog op in te gaan.

CONCLUSIE

Zoals uit het bovenstaande blijkt wordt het model CSOIL gebruikt voor het berekenen van gebruiksspecifieke normen (onder andere voor de urgentiebepaling) een toepassing waarvoor het model niet in eerste instantie is ontwikkeld. Voor de functies "wonen met tuin" en "wonen met moestuin" blijkt het plantopname model van CSOIL te leiden tot aanzienlijk strengere normen dan voor de andere functies. Er is een duidelijke aanwijzing dat CSOIL veel hogere PAK-gehalten in gewassen berekent dan in werkelijkheid optreden. In hoofdstuk 4 zal hier verder op worden ingegaan. Inmiddels is ook het RIVM gestart met een project waarin zal worden getracht om een verbeterde formule voor plantopname uit te werken, met name gericht op het transport van organische stoffen vanuit de wortels naar de bovengrondse plantendelen.

4 EMPIRISCHE SCHATTING VAN BLOOTSTELLING

In het algemeen wordt de biobeschikbaarheid van PAK bepaald door (11):

- het gehalte en de samenstelling van organische stof in de bodem en in poriënwater opgelost organisch koolstof;
- de duur van het contact tussen PAK en het substraat voorafgaande aan blootstelling;
- de heterogeniteit en gelaagdheid van de bodem;
- eigenschappen van het organisme die blootstelling beïnvloeden.

Bij opname van PAK door planten zijn naast de omgevingsfactoren de eigenschappen van de plant en de stofeigenschappen als K_{OW} en Henry constante van belang. De K_{OW} is de belangrijkste eigenschap bij het voorspellen van de opname via de wortels, terwijl de Henry constante bepalend is voor de opname via het blad (28). Uit onderzoek naar de opname van PAK door wortelen (*Daucus carota*) blijkt dat er wel sorptie aan de wortel, maar nauwelijks opname in de plant plaatsvindt. Het PAK-gehalte van de bodem heeft een verwaarloosbare invloed op het PAK-gehalte van de bladeren, omdat opname uit de atmosfeer veel belangrijker is (29). In de volgende paragrafen worden achtereenvolgens de opnameprocessen via de wortels en de lucht beschreven.

OPNAME VAN PAK VIA DE WORTELS

In de opname van PAK in planten via de wortels zijn verschillende vormen te onderscheiden. Dit heeft enerzijds te maken met de plantstructuur en anderzijds met de K_{OW} . De combinatie van beide factoren bepaalt of PAK al dan niet in de wortels worden opgenomen en of PAK vervolgens al dan niet naar de bovengrondse delen van de plant worden getransporteerd.

Of een organische verbinding door de plantenwortel wordt opgenomen is afhankelijk van de lipofiliteit van de verbinding. De lipofiliteit wordt uitgedrukt in de octanol-waterverdelingscoëfficiënt (K_{OW}). Verbindingen met een $\log K_{OW}$ groter dan 0 hebben een voorkeur voor de octanol-fase boven de waterfase, en verplaatsen zich van de bodemoplossing naar de plantenwortel (19). Over het algemeen geldt dat hoe hoger de K_{OW} (lipofiliteit) is, hoe groter de opname door de wortel is.

Verbindingen met een $\log K_{OW} \leq 1$ worden goed wateroplosbaar genoemd. Deze verbindingen spoelen uit naar het grondwater en verplaatsen zich met vrijwel dezelfde snelheid als water. De meeste plantenwortels zijn niet in staat om deze verbindingen te absorberen. Verbindingen met een $\log K_{OW}$ tussen 1 en 4 worden redelijk goed door de plantenwortel opgenomen en verbindingen met een $\log K_{OW} \geq 4$ worden goed opgenomen in de plantenwortel (19).

Een plantenwortel bestaat van buiten naar binnen uit achtereenvolgens (zie figuur 2): de schors (de cortex), de endodermis, het xyleemparenchym en, centraal in de wortel gelegen, het xyleem (de houtvaten). Stoffen kunnen op twee manieren naar het centrum van de wortel worden getransporteerd: via de apoplast (tussen de cellen door) of via de symplast (nadat de celmembraan is gepasseerd volgt opname in, en transport door de cellen). Om naar bovengrondse delen van een plant te worden getransporteerd moeten stoffen in de houtvaten in de kern van de wortel terecht kunnen komen. De cellen van de endodermis zijn omgeven door een wasachtig laagje, het bandje van Caspary, waardoor het transport door de apoplast sterk wordt belemmerd (19). Dit betekent dat stoffen door de celmembraan heen moeten om vervolgens via het cytoplasma van de cellen verder te worden getransporteerd om in de houtvaten terecht te komen. Overigens geldt dit niet voor de jongste delen van de worteltop. In dit geval zijn er nog geen barrières voor verbindingen om in het centrale deel van de wortel terecht te komen.

Voor hydrofiele stoffen vormt het transport door de endodermis geen probleem. Dit betekent dat als deze verbindingen eenmaal in de wortel zijn opgenomen (wat vrij moeizaam gaat), zij zich zowel opwaarts (via de houtvaten) als vanuit de bladeren naar andere delen van de plant gemakkelijk kunnen verplaatsen. Voor stoffen die slecht in water oplossen (hydrofobe stoffen) vormt de endodermis echter een ondoordringbare barrière. Verbindingen met een $\log K_{OW}$ tussen 1 en 4 worden door de plantenwortel opgenomen en kunnen via de houtvaten opwaarts worden getransporteerd. Het transport vanuit het blad naar andere plantendelen is echter niet groot. Verbindingen met een $\log K_{OW} \geq 4$ worden goed opgenomen in de plantenwortel. Deze stoffen worden echter in de plant slecht geabsorbeerd (19). Dit betekent dat deze verbindingen in de buitenste lagen van de wortel (epidermis en schors) worden opgeslagen. Zie voor de effecten van de K_{OW} op de opname en transport van verbindingen in en door de plant figuur 3. De $\log K_{OW}$ van de 10 VROM-PAK varieert volgens het basisdocument PAK van 3,4 tot 6,6 (5). Uitgezonderd naftaleen hebben alle andere PAK een K_{OW} hoger dan 4. Deze stoffen worden dus aan de buitenkant van de wortel opgeslagen. Volgens de literatuur leidt substitutie van stikstof tot een geringe verandering in

de log K_{OW} (7), en zullen nitro-PAK zich in dat opzicht niet veel anders gedragen dan niet gesubstitueerde PAK.

Figuur 2. De wortelstructuur (19).

Figuur 3. De rol van de octanol-watervedelingscoëfficiënt (K_{OW}) (19).

Wortels en knollen groeien beide onder de grond, maar kunnen heel verschillende concentraties aan verontreinigde stoffen bevatten. Oorzaak hiervan is dat wortels zelf stoffen kunnen opnemen. Voor knollen geldt echter dat verbindingen alleen via transport vanuit de bovengrondse delen van de plant in de knollen terecht kunnen komen (19).

Zowel de vorm waarin PAK voorkomt als de historie van de PAK-verontreiniging kunnen invloed hebben op de beschikbaarheid van PAK. PAK komt in de bodem

vaak voor als kooldeeltjes. Te verwachten is dat deze grove fractie minder beschikbaar is dan de in de bodemoplossing aanwezige (opgeloste) PAK. De historie van de verontreiniging is van belang, omdat de mate van veroudering van een verontreiniging met PAK invloed heeft op het gemak waarmee PAK door planten kunnen worden opgenomen. PAK kunnen zijn vastgelegd aan humusdeeltjes. Zowel het vastleggen van deze deeltjes als het weer loskomen van deze deeltjes hangt samen met de instelling van evenwichten tussen verschillende fasen van de bodem. Dit betekent dat deze processen in eerste instantie heel snel verlopen en in latere instantie langzaam. Er treedt echter ook een veroudering op van bindingen. Een stof die voor langere tijd aanwezig is, kan zich gaan binden aan bodemdeeltjes op moeilijker bereikbare plaatsen. Dit betekent tevens dat een verontreiniging die al langer bestaat ook moeilijker loslaat van een bodemdeeltje.

OPNAME VAN PAK IN PLANTEN VIA DE LUCHT

In een aantal studies zijn metingen verricht naar de gehalten van PAK in planten en landbouwgewassen. Veel metingen aan planten zeggen meer over de blootstelling van een plant aan PAK vanuit de lucht dan over de PAK-concentratie in de bodem. Relatieve gehalten van PAK in groenten blijken bijvoorbeeld redelijk overeen te komen met de relatieve gehalten in lucht. Wel blijkt de verhouding te verschillen afhankelijk van of het om hoog- of laagmoleculaire PAK gaat. Voor laagmoleculaire PAK blijkt de verhouding beter overeen te komen dan voor de hoogmoleculaire PAK. Dit verschil kan worden veroorzaakt door de manier waarop de PAK door planten worden opgenomen. Hoogmoleculaire PAK komen met name aan aerosolen gebonden voor. Waarschijnlijk worden deze aan aerosolen gebonden PAK in eerste instantie opgenomen door de cuticula (de waslaag van een blad) alvorens ze via de huidmondjes worden opgenomen. Terwijl de laagmoleculaire PAK direct via de huidmondjes worden opgenomen. Uit een onderzoek naar PAK-gehalten in Nederlandse landbouwgewassen is gebleken dat de invloed van lokale bronnen als industrie of verkeer op PAK-gehalten van spinazie en boerenkool groot kan zijn (30). Ook blijkt dat het wassen van groente grote invloed kan hebben op het PAK-gehalte, alhoewel dit wel sterk afhankelijk is van het soort groente (bijv. bladoppervlak) en de eigenschappen van een stof. Zo blijkt wassen bij spinazie grote invloed te kunnen hebben op de PAK-concentratie en blijkt dat de hoogmoleculaire PAK beter worden verwijderd door wassen dan laagmoleculaire PAK. Echter bij boerenkool blijken PAK door wassen nauwelijks te worden verwijderd (30). Waarschijnlijk is dit een gevolg van het erg onregelmatige oppervlak en de dikke wasachtige laag van bladen van boerenkool. Mogelijk speelt hierbij ook het verschil in blootstellingsduur een rol.

VELDEXPERIMENTEN

De beschikbaarheid van onderzoeken waarbij zowel het PAK-gehalte in de plant als het gehalte in de bodem gemeten zijn, is zeer beperkt. In de onderstaande tabel 4 zijn de in de literatuur aangetroffen gegevens voor BaP gehalten in bodem en planten opgenomen, afkomstig van experimenten waarbij opname vanuit de lucht waarschijnlijk een minder grote rol speelt. Er zijn ook experimenten beschreven waaruit blijkt dat toediening van BaP geen toename van het gehalte in de plant tot gevolg had (5).

Tabel 4. Een overzicht van gegevens over BaP in planten en BaP in de bodem (5).

BaP in bodem $\mu\text{g}/\text{kg}$	BaP in plant $\mu\text{g}/\text{kg}$	Plant/ bodem verhouding	Experimentele omstandigheden
3,3	0,13 - 0,20 in tarwe (blad)	0,04 - 0,06	30 dagen blootstelling BaP in olie opgelost
500	300 in worteltjes	0,6	17,5 weken blootstelling BaP in benzeen opgelost zandige bodem
>500	50 in worteltjes (200 in blad)	0,1 (0,4)	17,5 weken blootstelling BaP in benzeen opgelost zand/ compost mengsel
85	0,12	0,001	80 dagen blootstelling
130	0,15	0,001	BaP toegevoegd aan bodem met compost
185	0,07 in worteltjes	0,0004	
1430	6,5 - 11,8 in worteltjes (7,6 - 11,2 in blad)	0,004-0,008 (0,005-0,008)	BaP toegevoegd als compost

Belangrijkste conclusies die uit bovenstaande tabel kunnen worden getrokken, zijn:

- Het toevoegen van surfactanten (bijvoorbeeld benzeen of olie) kan de opname van PAK versterken (vergelijk de plant/ bodem verhouding van de bovenste drie experimenten met de twee er onder). De gegevens uit de tabel suggereren dat BaP beter beschikbaar is voor planten als het wordt opgelost in benzeen, en minder goed als het is opgelost in olie (vergelijk eerste rij tabel met 2^e en 3^e rij). Dit wordt ook bevestigd door ander onderzoek (31);
- Vanuit een zandige bodem wordt relatief meer BaP opgenomen dan vanuit een bodem waardoor compost is gemengd;
- Uit de vergelijking van de opname van BaP tussen opname in worteltjes en de opname in het blad van de worteltjes zou kunnen worden geconcludeerd dat BaP - mits opgelost in benzeen - relatief beter in blad wordt opgenomen dan in de wortels zelf;

CONCLUSIES

Op basis van stoffeïenschappen zal de opslag van PAK in planten voornamelijk in de cortex plaatsvinden. Transport binnen de plant zal naar verwachting nauwelijks plaats vinden. Het schillen van ondergrondse plantendelen, zoals knollen en wortels, ter bereiding voor consumptie is in het geval van bodemverontreiniging met lipofiele stoffen zoals PAK een zinvolle behandeling. Uit beperkt onderzoek naar de relatie tussen bodemgehalten van PAK en gehalten van PAK in gewassen blijkt inderdaad dat onder normale omstandigheden slechts geringe opname van PAK plaats vindt. Bij metingen aan wortels is helaas niet bepaald of de gemeten gehalten zich in de cortex danwel in de gehele wortel bevonden. Door toevoeging van surfactanten blijkt de opname verhoogd te worden.

5 SAMENVATTING EN CONCLUSIES

Op basis van informatie over blootstellingsmodellen en empirische gegevens over opname van PAK in gewassen is de commissie tot de conclusie gekomen dat de uitkomsten van modelberekeningen voor humane risico's van PAK met CSOIL in tegenpraak zijn met de praktijk. Uit de praktijk blijkt dat blootstelling aan bodemverontreiniging via gewassen slechts marginaal bijdraagt aan de inname van PAK door de mens. Het lijkt praktisch onmogelijk dat het humane risico door PAK uit de bodem als gevolg van de consumptie van gewassen uit eigen teelt wordt overschreden.

In het onderstaande worden de vragen van de Minister beantwoord.

- Welke wetenschappelijke kennis is beschikbaar over de opname van PAK door gewassen, zowel kennis ontleend uit de praktijk als uit blootstellingsmodellen?

PAK kunnen wel in plantenwortels worden opgenomen, maar kunnen nauwelijks naar de rest van de plant worden getransporteerd. De kans dat de mens via planten aan deze stoffen worden blootgesteld blijkt klein te zijn. De aanwezigheid van een nitro-groep beïnvloedt de opname en transport van PAK in het gewas naar verwachting niet noemenswaardig. In diverse bronnen wordt aangegeven dat nitro-PAK vanwege hun carcinogeniteit en mutageniteit relevant zouden kunnen zijn bij een risicobeoordeling voor de mens. De commissie heeft echter geen inzicht kunnen krijgen hoe relevant deze vorm van PAK is in verband met het voorkomen bij gevallen van bodemverontreiniging. De commissie acht het wenselijk dat hier meer informatie over beschikbaar komt, waarbij zij zich realiseert dat het meten van nitro-PAK technisch moeilijk en kostbaar is.

CSOIL is primair ontwikkeld voor de afleiding van interventiewaarden. Voor dergelijke algemene normen is een conservatieve benadering, dat wil zeggen een overschatting van de opname van PAK door planten, gebruikelijk en ook gerechtvaardigd gezien het feit dat PAK in combinatie met andere organische verbindingen kunnen voorkomen die plantopname bevorderen. Door de commissie is al in eerdere adviezen gewezen op de risico's van het gebruik van CSOIL bij het schatten van actuele risico's. Bij het schatten van actuele risico's kan CSOIL niet tot "een van overheidswege opgelegde norm" worden verheven. Het feit dat dit in de praktijk algemeen gebeurt, leidt tot communicatieproblemen. Nadat eenmaal met een CSOIL-berekening

een normoverschrijding is geconstateerd, wordt nuanceren met name voor de overheid moeilijk, als dit een minder vergaande sanering en minder kosten voor de overheid met zich meebrengt.

- Hoe kan deze kennis enerzijds doorwerken in CSOIL en daarmee in de afleiding van interventiewaarden?

Ondanks de beperkte toepasbaarheid van CSOIL bij actuele risicobeoordelingen beveelt de commissie aan om het opnamemodel voor organische verbindingen in planten zoals dat in CSOIL is verwerkt te verbeteren. Het RIVM heeft een haalbaarheidsstudie uitgevoerd waarin staat beschreven wat de opties zijn om het model te verbeteren. Tevens is het de bedoeling dat het RIVM uiteindelijk een voorstel presenteert hoe het opnamemodel verbeterd zou moeten worden. Het project is echter wat vertraagd waardoor een verbeterd plantopnamemodel voor CSOIL nog niet is uitgewerkt. De commissie heeft kennis genomen van de documenten die tot op dit moment over dit onderwerp zijn verschenen. Het is echter op dit moment nog te vroeg om hier uitspraken over te doen.

Indien de modellering van de plantopname van PAK in CSOIL niet kan worden verbeterd, dienen de partijen die bij de uitvoering van risicobeoordelingen en bodemsaneringen zijn betrokken beter te worden voorgelicht over de beperkingen van de modelbenadering, teneinde de risicoperceptie meer in overeenstemming te brengen met de objectief vast te stellen gezondheidsrisico's.

- Hoe kan deze kennis anderzijds doorwerken in actuele risicobeoordeling zowel in het kader van actief bodembeheer als in het kader van functiegericht saneren?

De commissie acht kans op blootstelling aan de 10 VROM-PAK via gewas gering. Bij bodemgebruiksfuncties waarbij consumptie van gewas relevant is, zou hiermee rekening moeten worden gehouden bij een actuele risicobeoordeling. Blootstelling via ingestie van grond is bij deze bodemgebruiksfuncties dan de meest relevante route die onderzocht moet worden, omdat het bijna altijd om tuinen gaat waarin kinderen kunnen spelen. Om zekerheid te verkrijgen zouden steekproefsgewijs metingen van het PAK-gehalte in gewassen bij actuele risicobeoordeling kunnen worden uitgevoerd. Deze gehalten weerspiegelen bij bovengrondse plantendelen weliswaar blootstelling aan PAK zowel vanuit de bodem als vanuit de lucht, maar geven toch een betere schatting van de actuele blootstelling van de mens aan PAK via gewassen dan een modelberekening.

6 REFERENTIES

1. Advies sanering Lauraterrein te Kerkrade, 1991. TCB S90/ 194 en TCB S91/ 56. Technische commissie bodembescherming, Leidschendam.
2. Advies Saneringswijze mijnterreinen, 1995. TCB A14(1995). Technische commissie bodembescherming, Den Haag.
3. Hensbergen, P.J. en C.A.M. van Gestel, 1995. Combinatie-toxiciteit in het terrestrische milieu. TCB R04(1995). Technische commissie bodembescherming, Den Haag.
4. Jones, K.C., J.A. Stratford, P. Tidridge and K.S. Waterhouse, 1989. Polynuclear aromatic hydrocarbons in an agricultural soil: Long term changes in profile distribution. *Environmental Pollution* 56: 337-351.
5. Slooff, W., J.A. Janus, A.J.C.M. Matthijsen, G.K. Montizaan en J.P.M. Ros, 1989. Basisdocument PAK. RIVM rapport 758474007. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieuhygiëne, Bilthoven. Met appendix: Integrated criteria document PAH, effects of 10 selected compounds.
6. Wild, S.R., K.S. Waterhouse, S.P. McGrath en K.C. Jones, 1990. Organic contaminants in an agricultural soil with a known history of sewage sludge amendments: polynuclear aromatic hydrocarbons. *Environmental Science and Technology* 24: 1706-1711.
7. Govers, H.A.J. en N. Jonkers, 1998. PAK afkomstig van mijnbouw en aanverwante industrie en opname in gewassen. Interne discussienotitie Technische commissie bodembescherming, Den Haag.
8. Vos, R.H. de, W. van Dokkum, A. Schouten en P. de Jong-Berkhout, 1990. Polycyclic aromatic hydrocarbons in Dutch total Diet Samples (1984-1986), *Fd. Chem. Toxic.* 28: 263-268.
9. Goor, B.J. van, P. van Lune en D. Wiersma, 1985. Onderzoek over gehalten aan polycyclische aromaten in Nederlandse land- en tuinbouwproducten; 1. Enige literatuurwaarden. Nota 141. Instituut voor Bodemvruchtbaarheid, Haren.
10. Gezondheidsraad, 1990. Polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK), toetsing van een basisdocument. Nr. 1990/ 23. Gezondheidsraad, Den Haag.
11. Advies Aanpassing interventiewaarde PAK. TCB A13(1995). Technische commissie bodembescherming, Den Haag.
12. Visschers, M. en K. Verschueren, 1988. Teer- en PAK-problematiek bij onderzoek van bodemverontreinigingsgevallen met teerachtige stoffen. Reeks bodembescherming nr. 72. Staatsuitgeverij, Den Haag.
13. Brummelen, T.C. van, B. van Hattum, T. Crommentuijn en D.F. Kalf, 1998. Bioavailability and ecotoxicity of PAHs. In: *The handbook of environmental chemistry Vol. 3 Part J, PAHs and related compounds*, A.H. Nielson (ed). Springer-Verlag Berlin Heidelberg.

14. Brinkman, F.J.J., A.G.A.C. Knaap, P.G.W. 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. Vaessen, J.IJ. Warmes en A.A.M.M. Wilbers, 1989. Onderzoek naar gehalten aan polycyclische aromaten in binnen het voormalige Lauraterrein te Kerkrade verzamelde monsters. Uitloogbaarheidsproeven. Risico-evaluatie met betrekking tot de volksgezondheid. Rapport nr. 748704018. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieuhygiëne, Bilthoven.
15. PBI, 1988. Nader onderzoek op het voormalige Lauraterrein te Kerkrade. Rapport nr. R 88.065. Projectbureau voor Industrieel Afval, Sittard.
16. PBI, 1989. Saneringsonderzoek Lauraterrein te Kerkrade. Fase 1a: aanvullend onderzoek ten behoeve van risico-evaluatie. Rapport nr. R 88.93. Projectbureau voor Industrieel Afval, Sittard.
17. Vermeire, T.G., M.E. van Apeldoorn, J.C. de Fouw en P.J.C.M. Janssen, 1991. Voorstel voor de humaan-toxicologische onderbouwing van C-(toetsings)waarden. Rapportnr. 725201005. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieuhygiëne, Bilthoven.
18. Vermeire, T.G., 1993. Voorstel voor de humaan-toxicologische onderbouwing van C-(toetsings)waarden, Addendum op rapportnr. 725201005. Rapportnr. 7158011001. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieuhygiëne, Bilthoven.
19. Breunis, P., 1998. Fytoremediatie, een veelbelovende techniek om met behulp van planten verontreinigde bodems te saneren. Doctoraalverslag Vakgroep Bodemkunde en Plantevoeding onder begeleiding van Th. Lexmond. Landbouwuniversiteit, Wageningen.
20. Briggs, G.G., R.H. Bromilow and A.A. Evans, 1982. Relationships between lipophilicity and root uptake and translocation of non-ionised chemicals by barley. *Pesticide Science* 13: 495-504.
21. Briggs, G.G., R.H. Bromilow, A.A. Evans and M. Williams, 1983. Relationships between lipophilicity and the distribution of non-ionised chemicals in barley shoots following uptake by roots. *Pesticide Science* 14: 492-500.
22. Berg, R. van den, 1991. Blootstelling van de mens aan bodemverontreiniging: Een kwalitatieve en kwantitatieve analyse, leidend tot voorstellen voor humaan toxicologische C-toetsingswaarden. Rapport nr. 725201006. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieuhygiëne, Bilthoven.
23. Travis, C.C. en A.D. Arms, 1988. Bioconcentration of organics in beef, milk and vegetation. *Environmental Science and Technology* 22: 271-274.
24. Moet, D., 1995. Bouwen op verontreinigde grond: een gebruiksspecifieke benadering. Vereniging van Nederlandse Gemeenten, Den Haag.
25. Koolenbrander, J.G.M., 1995. Urgentie van bodemsanering: de handleiding. Sdu Uitgeverij, Den Haag.
26. Actief Bodembeheer in Limburg, 1998. Werkgroep Actief Bodembeheer Limburg, Maastricht.
27. Versluijs, C.W., R. Koops, P. Kreule en M.F.W. Waitz, 1998. The accumulation of soil contaminants in crops, location-specific calculation based on the CSOIL

-
- module. Part 1, Evaluation and suggestions for model development. Rapportnr. 711701008. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu, Bilthoven.
28. Paterson, S., D. Mackay, D. Tam and W.Y. Shiu, 1990. Uptake of organic chemicals by plants: a review of processes, correlations and models. *Chemosphere* 21: 297-331.
 29. Wild, S.R. et al., 1991. Uptake of PAHs by carrots grown in sewage sludge amended soils. Proceedings of the 13th international symposium on polynuclear aromatic hydrocarbons. Bordeaux, pp. 119-126.
 30. Naald, W.G.H. van der, W. Tamis en M.M.H.H. van den Berg, 1987. Polycyclische aromatische koolwaterstoffen in het Nederlandse Milieu. Coördinatiecommissie voor de metingen van radioactiviteit en xenobiotische stoffen, Leidschendam.
 31. Leemkule, M.A. van de, S. van Hesteren en M.A. Pruiksma, 1998. Minimale bodemkwaliteit: een gebruikgerichte benadering vanuit de ecologie. Deel 2: Immobiele organische microverontreinigingen. TCB R09(1998). Technische commissie bodembescherming, Den Haag.

