

Luchtkwaliteit in Vlaanderen
Polycyclische aromatische koolwaterstoffen –
jaarrapport 2013



DOCUMENTBESCHRIJVING

Titel

Luchtkwaliteit in Vlaanderen: Polycyclische aromatische koolwaterstoffen – jaarrapport 2013

Samenstellers

Afdeling Lucht, Milieu en Communicatie, VMM
Dienst Lucht

Inhoud

Dit rapport beschrijft de resultaten van de PAK-metingen die de VMM in 2013 in Vlaanderen uitvoerde. Het gaat hierbij om metingen van PAK's in omgevingslucht op 5 meetposten en PAK's in depositie op drie meetposten.

Wijze van refereren

VMM (2014), Luchtkwaliteit in Vlaanderen: Polycyclische aromatische koolwaterstoffen – jaarrapport 2013

Verantwoordelijke uitgever

Michiel Van Peteghem, Afdelingshoofd Lucht, Milieu en Communicatie, Vlaamse Milieumaatschappij

Vragen in verband met dit rapport

Vlaamse Milieumaatschappij

A. Van de Maelestraat 96

9320 Erembodegem

Tel: 053 72 62 10

Fax: 053 71 10 78

info@vmm.be

Depotnummer

D/2014/6871/037

Samenvatting

Dit rapport bevat de resultaten van de metingen van polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK's) in lucht en in depositie in Vlaanderen.

De Vlaamse Milieumaatschappij voerde in 2013 metingen uit van:

- 10 PAK's in omgevingslucht op vijf meetposten;
- 16 PAK's in depositie op drie meetposten.

De meeste aandacht gaat uit naar de metingen van PAK's in omgevingslucht, omdat deze een betrouwbaarder beeld geven van de uitstoot dan depositiemetingen. Deze laatste zijn namelijk erg afhankelijk van de hoeveelheid neerslag. Bovendien legt de EU enkel een streefwaarde op van 1 ng/m^3 als jaargemiddelde in omgevingslucht voor de stof benzo(a)pyreen. **Op geen enkele meetpost overschreden we deze streefwaarde.**

De jaargemiddelden voor benzo(a)pyreen varieerden tussen $0,32 \text{ ng/m}^3$ in Zelzate, een woonzone nabij industrie, en $0,11 \text{ ng/m}^3$ in Houtem, een landelijke meetplaats. Het relatieve verschil in jaargemiddelden toonde aan dat zowel lokale als regionale bronnen een belangrijke rol spelen.

De Wereldgezondheidsorganisatie (WGO) berekende wat het extra risico op kanker is bij een levenslange blootstelling aan een bepaalde concentratie benzo(a)pyreen. Als de benzo(a)pyreenconcentratie van 2013 stabiel zou blijven in de tijd, dan betekent dit gemiddeld over alle Vlaamse meetposten **1 extra kankergeval op 50.000 inwoners**. Het Vlaams Agentschap Zorg en Gezondheid omschrijft die niveaus als gezondheidskundig niet verwaarloosbaar, maar wel maatschappelijk aanvaardbaar mits beleidsmatige afweging.

De PAK-concentraties waren overal duidelijk hoger in de wintermaanden dan in de zomermaanden. Gemiddeld waren de concentraties van benzo(a)pyreen 6 keer hoger in de wintermaanden dan in de zomermaanden. Dit kunnen we verklaren door:

1. een hoge PAK-uitstoot door gebouwenverwarming in de winter;
2. stabielere weer en meer inversies in de wintermaanden;
3. verliezen van PAK's bij de monsterneming door reacties met ozon in de zomermaanden.

De PAK-concentraties in omgevingslucht lagen in 2013 in de lijn van de voorgaande jaren. De eerder gerapporteerde **PAK concentraties uit 2011 en 2012 zijn gecorrigeerd** nadat problemen met betrekking tot de analyse aan het licht waren gekomen. De waarden voor 2011 en 2012 bleken dubbel zo hoog als eerder gerapporteerd.

De resultaten van PAK-depositiemetingen in 2013 toonden net als vorige jaren aan dat er vrij veel variatie is van maand tot maand. Dit geeft aan dat de jaargemiddelden uit het verleden, met slechts 2 maandstalen per jaar, een grote onzekerheid hebben. Het is dan ook moeilijk om nu al uitspraken te doen over de trends in de tijd. We kunnen stellen dat de gemeten **deposities in 2013 in dezelfde grootteorde als de voorbije jaren** lagen. De hoogste meetwaarden maten we op de industriële locatie in Zelzate. De som van de PAK's was er gemiddeld $1,2 \text{ } \mu\text{g/m}^2$ per dag. Dit is ongeveer 6 keer hoger dan op de landelijke locatie in Houtem.

INHOUDSTAFEL

Samenvatting	3
1 Inleiding.....	7
2 PAK's in omgevingslucht	8
2.1 Beschrijving van het meetnet	8
2.1.1 Meetposten	8
2.1.2 Regelgeving.....	9
2.1.3 Monsterneming	9
2.1.4 Analyse	10
2.2 Jaargemiddelden in 2013	10
2.2.1 De absolute waarden.....	10
2.2.2 De relatieve verschillen	12
2.3 Trend in de tijd.....	14
2.3.1 Jaarverloop 2013	14
2.3.2 Verschil winter/zomer	17
2.3.3 Meerjarentrend	18
2.3.4 Invloed windrichting	19
2.4 Meetcampagne nabij een snelweg.....	20
2.5 Aanpassing meetnet vanaf 1 januari 2014.....	22
3 PAK-depositiemetingen	23
3.1 Inleiding	23
3.2 Meetprocedure.....	23
3.2.1 Meetposten	23
3.2.2 Monsterneming	23
3.2.3 Analysemethode	23
3.2.4 Meetstrategie	23
3.2.5 Regelgeving.....	23
3.3 Resultaten PAK-depositie 2013.....	24
3.4 Meerjarentrend	26
4 Besluit.....	27
 Bijlage 1: Informatie over geaccrediteerde metingen (norm ISO/IEC 17025:2005)	 2

FIGUREN

Figuur 1: Ligging van de PAK-meetposten in Vlaanderen	8
Figuur 2: Benzo(a)pyreen	9
Figuur 3: Digitaal DHA-80 bemonsteraar	9
Figuur 4: Jaargemiddelden van de verschillende PAK's per meetpost.....	11
Figuur 5: Boxplots voor benzo(a)pyreen en de som van de PAK's per meetpost in ng/m ³	11
Figuur 6: Relatieve waarden van de jaargemiddelden ten opzichte van de meetpost met het laagste jaargemiddelde	13
Figuur 7: Relatieve waarden van de jaargemiddelden per meetpost ten opzichte van de benzo(a)pyreen-concentratie op die meetpost.....	13
Figuur 8: Jaarverloop van benzo(a)pyreen voor de 5 meetposten in ng/m ³	15
Figuur 9: Jaarverloop van de andere PAK's in ng/m ³	16
Figuur 10: Gemiddelde benzo(a)pyreen-concentratie per seizoen, per meetpost.....	18
Figuur 11: Evolutie van het benzo(a)pyreen-jaargemiddelde tussen 2000 en 2013.....	18
Figuur 12: Boxplot voor benzo(a)pyreen per windsector, per meetpost	19
Figuur 13: Boxplot voor de som van de PAK's per windsector, per meetpost.....	20
Figuur 14: Gemiddelde totale PAK-concentratie in functie van de windafwaartse afstand tot de rand van de snelweg.....	21
Figuur 15: Gemiddelde individuele PAK-concentraties in functie van de windopwaartse afstand tot de rand van de snelweg	21
Figuur 16: Relatieve PAK-concentraties tegenover de meetplaats 15 meter windopwaarts van de snelweg.....	22
Figuur 17: Depositiewaarden per maandstaal voor benzo(a)pyreen	25
Figuur 18: Depositiewaarden per maandstaal voor de som van alle gemeten PAK's	25
Figuur 19: Trend van benzo(a)pyreen depositie van 2004 tot en met 2013	26
Figuur 20: Trend van de totale PAK-depositie van 2004 tot en met 2013	26

TABELLEN

Tabel 1: Overzicht van de PAK-resultaten in lucht in 2013 voor de 5 meetposten.....	12
Tabel 2: Correlatietabel voor de gemeten PAK's	17
Tabel 3: Gemiddelde concentraties voor winter en zomer en de verhouding tussen beide	17
Tabel 4: Gemiddelde depositiewaarden voor de drie meetposten.....	24

1 Inleiding

Omwille van hun kankerverwekkende en mutagene eigenschappen behoren polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK's) tot de belangrijkste luchtverontreinigende stoffen. Ze zijn in hoofdzaak afkomstig van verbrandingsprocessen. De belangrijke bronnen zijn:

- de gebouwenverwarming (vooral onder de vorm van houtverbranding);
- het verkeer;
- de industriële verbrandingsprocessen voor energieproductie.

Er zijn ook enkele zeer specifieke bronnen zoals:

- de cokesproductie;
- de aluminiumproductie;
- het gebruik van bitumen en asfalt voor wegenbouw.

Ook tabaksrook en de rook die ontstaat bij barbecueën en roken van voedsel zijn bronnen van PAK's. Andere vormen van ongecontroleerde of onvolledige verbrandingsprocessen, zoals het verbranden van (groen)afval, kunnen lokaal ook voor belangrijke bijdragen zorgen.

De PAK's komen hoofdzakelijk, gebonden aan fijn stof, voor in de lucht. De meest vluchtige stoffen kunnen ook in de gasfase voorkomen. Hun hoge chemische stabiliteit maakt transport over grote afstanden door de lucht mogelijk. Verwijdering van PAK's uit de lucht gebeurt onder meer via natte en droge depositie. Op deze wijze komen deze stoffen terecht op gewassen, op de bodem en in het oppervlaktewater.

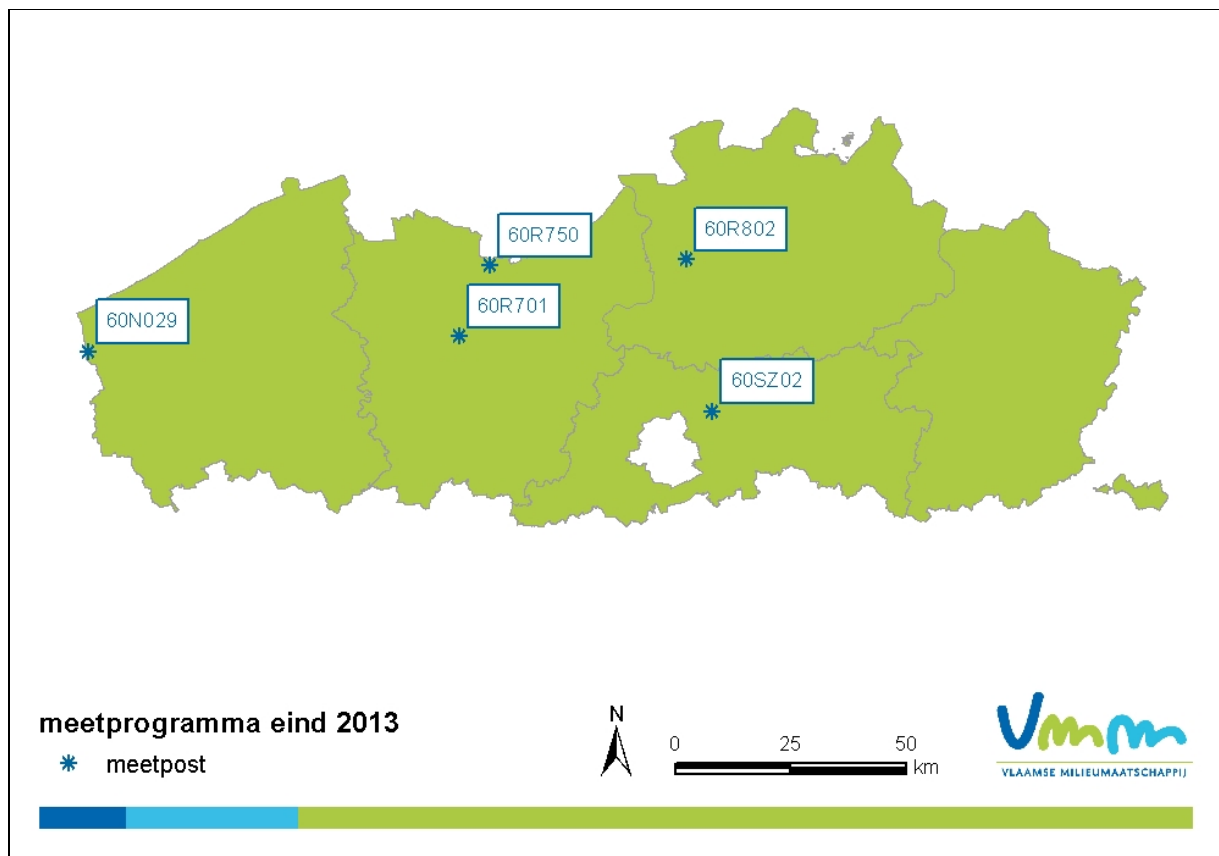
2 PAK's in omgevingslucht

2.1 Beschrijving van het meetnet

2.1.1 Meetposten

In 2013 deed de VMM op 5 meetposten metingen van PAK's:

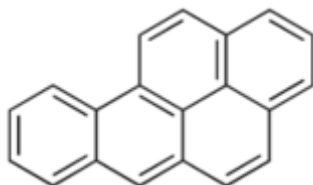
- De meetpost in Borgerhout (60R802) bevindt zich aan de verkeersdrukke Plantin en Moretuslei, ongeveer 15 meter van de straat. Op 500 meter afstand ten oosten van de meetpost ligt de ring rond Antwerpen.
- De meetpost in Gent (60R701) bevindt zich in het Baudelopark in een stedelijke omgeving, met relatief drukke invalswegen en op circa 800 meter van het verkeersknooppunt Dampoort.
- De meetpost in Houtem (60N029) ligt aan de Westmoerstraat in een landelijke omgeving. De industrie van de Franse havenstad Duinkerke bevindt zich op circa 15 kilometer ten westen van de meetpost.
- De meetpost in Steenokkerzeel (60SZ02) bevindt zich in een woonzone in de onmiddellijke buurt van het kasteel van Ham, in een bosrijk parkje, op circa 1,5 kilometer ten oosten van de opstijg- en landingsbanen van de luchthaven van Zaventem.
- De meetpost in Zelzate (60R750) is gelegen in een woonzone aan de Burgemeester Jos Chalmetlaan. De industriezone langs het kanaal Gent-Terneuzen situeert zich hoofdzakelijk in het zuid-zuidwesten tussen 0,5 en 10 kilometer. Op ongeveer 1,7 kilometer ten noordwesten ligt het bedrijf VFT-teerraffinaderijen, met daartussen het centrum van de gemeente. Het terrein van ArcelorMittal Gent bevindt zich ongeveer 3 kilometer ten zuiden van de meetplaats.



Figuur 1: Ligging van de PAK-meetposten in Vlaanderen

2.1.2 Regelgeving

De vierde Docht richtlijn 2004/107/EG definieert een streefwaarde voor benzo(a)pyreen, zie Figuur 2, van 1 ng/m^3 als jaargemiddelde in PM_{10} . Deze waarde werd van kracht op 31 december 2012. In plaats van de som van de PAK's te gebruiken, heeft men gekozen voor een eenvoudigere aanpak waarbij men de concentratie van één merker gebruikt als maatstaf voor de totale PAK-concentratie in de lucht.



Figuur 2: Benzo(a)pyreen

De Wereldgezondheidsorganisatie (WGO) drukt de schadelijkheid van benzo(a)pyreen uit als het aantal extra kankergevallen bij een levenslange blootstelling aan een bepaalde concentratie. Voor benzo(a)pyreen komt dit neer op $1/10.000$ bij $1,2 \text{ ng/m}^3$, $1/100.000$ bij $0,12 \text{ ng/m}^3$ en $1/1.000.000$ bij $0,012 \text{ ng/m}^3$. Op basis van deze cijfers kan men uitrekenen wat het extra risico is indien een bepaalde concentratie constant zou blijven in de tijd.

2.1.3 Monsterneming

De bepaling van de PAK-concentratie gebeurde tot en met 2013 op totaal zwevend stof (TSP – *Total Suspended Particles*). Een grootvolume luchtmonsteraar, voorzien van een TSP-kop, zuigt de lucht gedurende 24 uur door een filter met een debiet van 900 l/min (totaal volume circa 1.300 m^3). De toestellen zijn van het type DIGITEL DHA-80, zie Figuur 3, met een automatische filterwisselaar met een capaciteit van 15 filters. De filters zijn glasvezelfilters (Ederol type 220/1/60, diameter 150 mm).



Figuur 3: Digitel DHA-80 bemonsteraar

De monsterneming op filters gebeurde zonder back-up voor semi-vluchtige PAK's zoals naftaleen, acenafteen, acenaftyleen, fluoreen, fenantreen en anthraceen. Omdat deze PAK's niet volledig bemonsterd werden, bepaalde de VMM enkel de zwaarste 10 componenten van de EPA-prioriteitslijst. In volgorde van oplopend kookpunt zijn dit:

- fluorantheen;
- pyreen;
- benzo(a)anthraceen;
- chryseen;
- benzo(b)fluorantheen;
- benzo(k)fluorantheen;
- benzo(a)pyreen;
- dibenzo(a,h)anthraceen;
- benzo(g,h,i)peryleen;
- indeno(1,2,3-cd)pyreen.

Noot: Voor **dibenzo(a,h)anthraceen** waren de concentraties in 2013 te laag om betrouwbare cijfers te rapporteren. Deze component wordt dus buiten beschouwing gelaten in het verdere vervolg van dit rapport.

Op alle meetposten deden we simultaan om de 3 dagen een bemonstering gedurende 24 uur om aan de Europese verplichting voor vaste meetpunten te voldoen.

2.1.4 Analyse

De analyse van PAK's gebeurt door de dienst Laboratorium van de VMM. Voor deze analyses bezit dit labo een accreditatie door de Belgische accreditatie-instelling (BELAC). Dit is een attest dat verklaart dat de bemonstering en analyses van de VMM voldoen aan strenge kwaliteitsvoorschriften. De specificaties over onder meer het meetprincipe en de meetonzekerheid staan in Bijlage 1: Informatie over geaccrediteerde metingen (norm ISO/IEC 17025:2005).

De analyseprocedure bestaat uit een extractie van de filters en een analyse van het bekomen extract met hogedrukvloeistofchromatografie (HPLC) met fluorescentie-detectie (FD).

De filters extraheren we via ASE (*Accelerated Solvent Extraction*) met dichloormethaan. Het solvent dampen we af onder een zachte stikstofstroom in een Zymarck concentrator. Het extract lossen we opnieuw op in acetonitrile en filteren we. De HPLC-analyse gebeurt door een Vydac 201 TP-kolom (25 cm x 4,6 mm) met een acetonitrile-water gradiënt (50/50% tot 100% acetonitrile in 20 minuten) op een Waters HPLC-systeem.

De kalibratie gebeurt door externe standaardisatie met gecertificeerd standaard referentiemateriaal SRM1647d (*National Institute of Standards & Technology, Gaithersburg, VSA*).

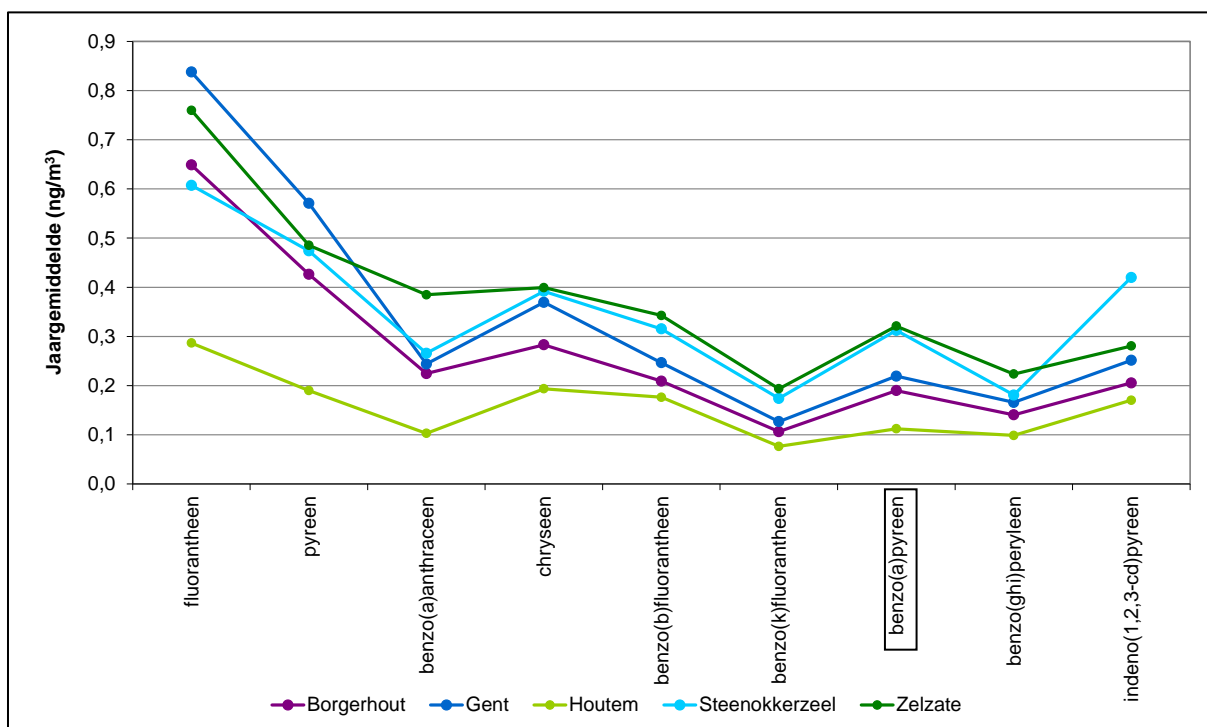
2.2 Jaargemiddelden in 2013

2.2.1 De absolute waarden

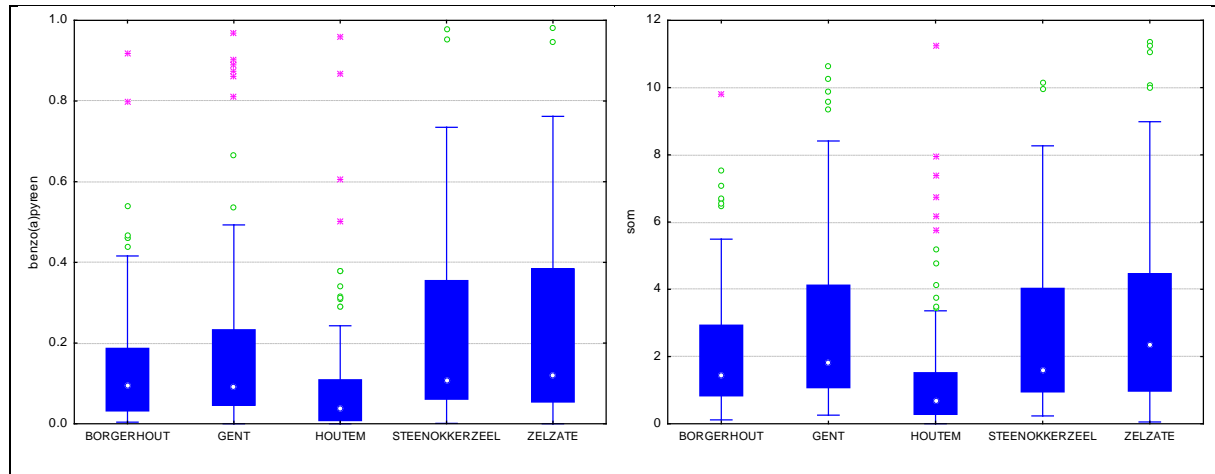
Figuur 4, Figuur 5 en Tabel 1 tonen een overzicht van de jaargemiddelden op de 5 meetposten voor PAK's in 2013. We zien dat de PAK-concentraties gemiddeld het hoogst waren in Zelzate en het laagst in Houtem. Dit is op zich niet verwonderlijk door de aanwezige industrie, het verkeer en gebouwenverwarming in Zelzate en de afwezigheid van lokale bronnen in Houtem. Op geen enkele meetplaats overschreden we de EU-streefwaarde van 1 ng/m^3 voor benzo(a)pyreen.

Volgens de relatie tussen concentratie en extra risico van de WGO zou er in Vlaanderen bij een levenslange blootstelling aan de huidige concentraties een extra risico op kanker zijn tussen 1 op 40.000 (Zelzate) en 1 op 100.000 (Houtem). Wanneer we de situatie uitmiddelen over alle meetposten vinden we een extra risico van ongeveer 1 extra kanker op 50.000 inwoners. Deze waarden geven dus aan dat er wel degelijk een gezondheidseffect zal zijn als de concentraties op het huidige niveau blijven. Het Vlaams Agentschap Zorg en Gezondheid omschrijft die niveaus als gezondheidkundig niet verwaarloosbaar, maar wel maatschappelijk aanvaardbaar mits beleidsmatige afweging.

Voor een uitgebreide vergelijking met meetresultaten uit het buitenland verwijzen we naar het PAK-jaarrapport van 2010¹. Algemeen kunnen we zeggen dat de concentraties in Vlaanderen in de lijn liggen van de concentraties in de ons omringende landen.



Figuur 4: Jaargemiddelden van de verschillende PAK's per meetpost



Figuur 5: Boxplots² voor benzo(a)pyreen en de som van de PAK's per meetpost in ng/m³

¹ VMM (2011), Polycyclische en nitro-polycyclische aromatische koolwaterstoffen in omgevingslucht en depositie in Vlaanderen – jaarrapport 2010

² Samenstelling boxplot:

Middenpunt: mediaan

Box: 25% percentiel tot 75% percentiel (lengte van de box = interkwartielafstand)

Whisker: grootste/kleinste waarde die geen uitbijter is

Groene punten: uitbijters (tussen 1,5 en 3 keer de interkwartielafstand)

Roze punten: extremen (groter dan 3 keer de interkwartielafstand)

Tabel 1: Overzicht van de PAK-resultaten in lucht in 2013 voor de 5 meetposten

PAK (ng/m ³)	Borgerhout	Gent	Houtem	Steenokkerzeel	Zelzate	gemiddeld
fluorantheen	0,65	0,84	0,29	0,61	0,76	0,63
pyreen	0,43	0,57	0,19	0,47	0,49	0,43
benzo(a)anthraceen	0,22	0,24	0,10	0,27	0,38	0,24
chryseen	0,28	0,37	0,19	0,39	0,40	0,33
benzo(b)fluorantheen	0,21	0,25	0,18	0,32	0,34	0,26
benzo(k)fluorantheen	0,11	0,13	0,08	0,17	0,19	0,14
benzo(a)pyreen	0,19	0,22	0,11	0,31	0,32	0,23
benzo(g,h,i)peryleen	0,14	0,17	0,10	0,18	0,22	0,16
indeno(1,2,3-cd)pyreen	0,21	0,25	0,17	0,42	0,28	0,27
Totaal	2,43	3,03	1,41	3,14	3,39	2,68
aantal meetdagen	103	101	100	77	106	
extra risico op kanker bij levenslange blootstelling	1/60.000	1/50.000	1/100.000	1/40.000	1/40.000	1/50.000

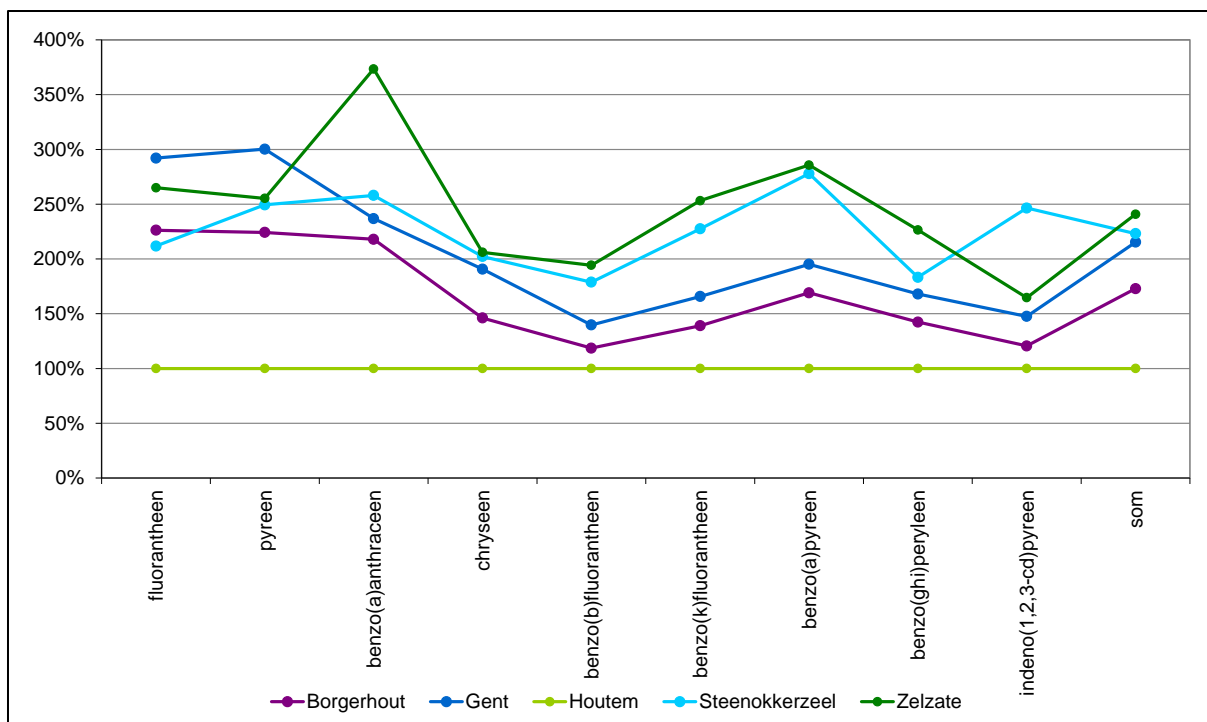
2.2.2 De relatieve verschillen

Figuur 6 toont de relatieve verschillen per component ten opzichte van de plaats met het laagste gemiddelde. Dit is voor alle PAK's telkens het jaargemiddelde van het landelijke Houtem.

In vergelijking met Houtem is de som van de PAK's:

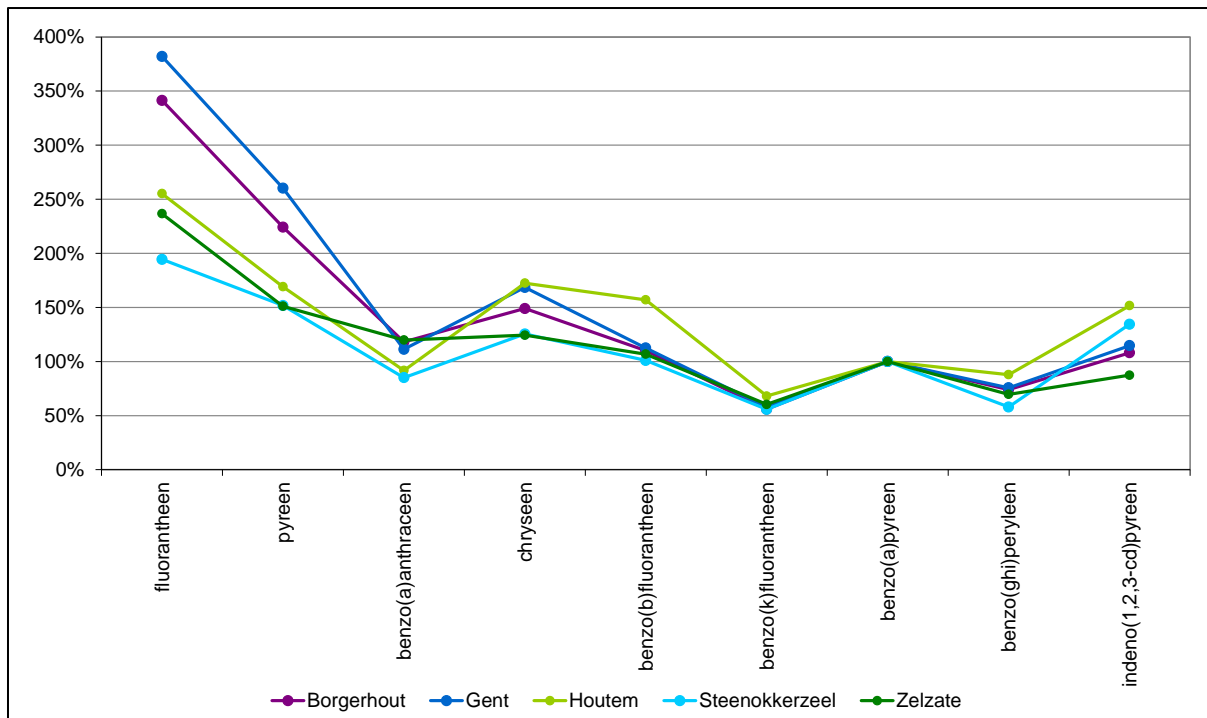
- + 73% in Borgerhout;
- + 115% in Gent;
- + 123% in Steenokkerzeel;
- + 141% in Zelzate.

De relatieve toenames van de verschillende verbindingen waren op de 4 meetposten vrij vergelijkbaar. Vooral Gent en Borgerhout lijken sterk op elkaar wat aangeeft dat de mix van bronnen vergelijkbaar is op deze twee stedelijke meetplaatsen. In Zelzate zien we net als in 2012 een extra relatieve toename voor benzo(a)anthraceen. Hetzelfde geldt voor indeno(1,2,3-cd)pyreen in Steenokkerzeel. Dit geeft dus aan dat er op deze twee plaatsen duidelijke belangrijke lokale bronnen zijn van deze stoffen.



Figuur 6: Relatieve waarden van de jaargemiddelden ten opzichte van de meetpost met het laagste jaargemiddelde

Figuur 7 toont voor alle PAK's de verhouding ten opzichte van benzo(a)pyreen. Het valt op dat de verschillen tussen de meetposten doorgaans klein zijn. Dit betekent dus dat het PAK-profiel, de relatieve verhouding tussen de verschillende PAK's, op de 5 meetposten sterk vergelijkbaar is.



Figuur 7: Relatieve waarden van de jaargemiddelden per meetpost ten opzichte van de benzo(a)pyreen-concentratie op die meetpost

De grootste verschillen in verhoudingen zien we voor de lichtste PAK's, fluorantheen en pyreen. Dit komt omdat die chemisch het meest verschillen met benzo(a)pyreen. Hoe nauwer twee verbindingen verwant zijn, hoe minder hun verhouding zal variëren bij verschillen in vormingsomstandigheden.

Daarnaast weten we ook dat verkeer een relatief grotere rol speelt bij de lichte PAK's. Bijgevolg komen de verschillen in types meetplaats – met veel of weinig verkeer – duidelijker tot uiting bij de lichte PAK's. Het is dan ook geen toeval dat de lichte PAK's relatief meer verhoogd waren op de twee stedelijke meetplaatsen Gent en Borgerhout.

Het feit dat de jaargemiddelde PAK-profielen onderling al bij al weinig verschillen, kan meerdere oorzaken hebben:

- verschillende bronnen geven aanleiding tot vergelijkbare PAK-profielen;
- het aandeel van verschillende bronnen nabij de meetposten is vergelijkbaar;
- één type bron domineert op alle meetposten;
- er is een belangrijke, uniforme achtergrondbijdrage.

Waarschijnlijk spelen al deze zaken wel een rol. Het is echter niet eenvoudig om te achterhalen welke oorzaak het belangrijkste is en of dit gedurende een heel jaar constant is. De relatieve verschillen in concentratie tussen de meetposten geven wel aan dat lokale bronnen sowieso een belangrijke rol spelen.

De vergelijkbaarheid van de profielen geeft ook aan dat men op basis van één merker, vrijwel altijd benzo(a)pyreen, inderdaad een vrij goed beeld kan krijgen van de trends bij alle PAK's. Bij de verdere besprekingen beperken we ons daarom vaak tot benzo(a)pyreen.

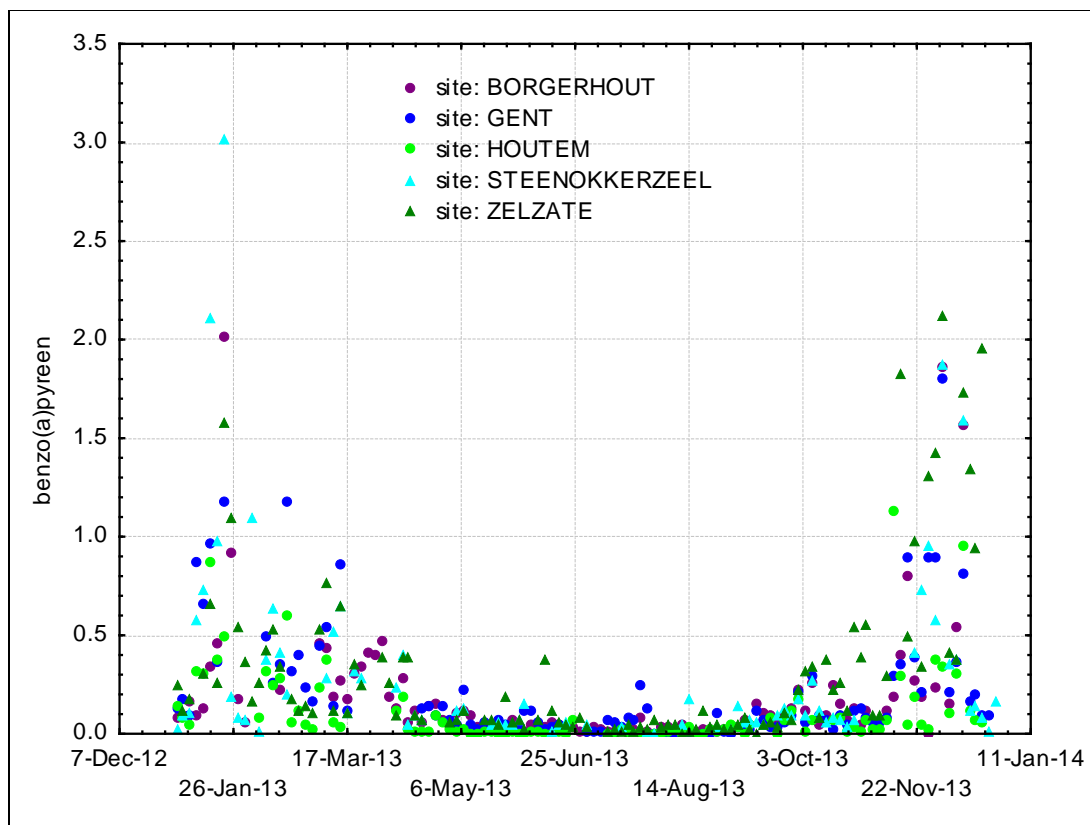
2.3 Trend in de tijd

2.3.1 Jaarverloop 2013

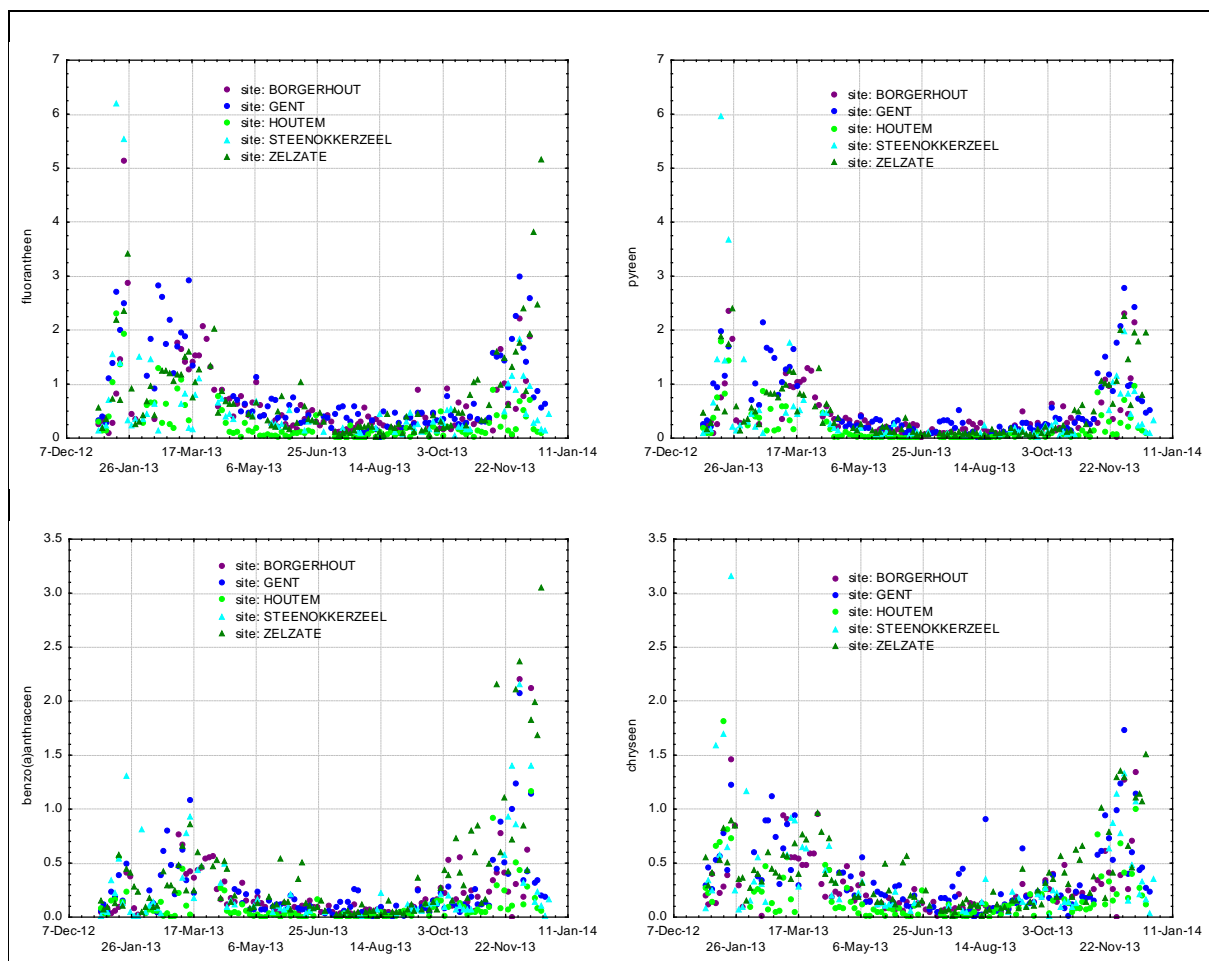
De jaarprofielen per PAK tonen aan dat alle PAK-concentraties een stuk hoger waren in de winter dan in de zomer. Hiervoor zijn er drie mogelijke redenen:

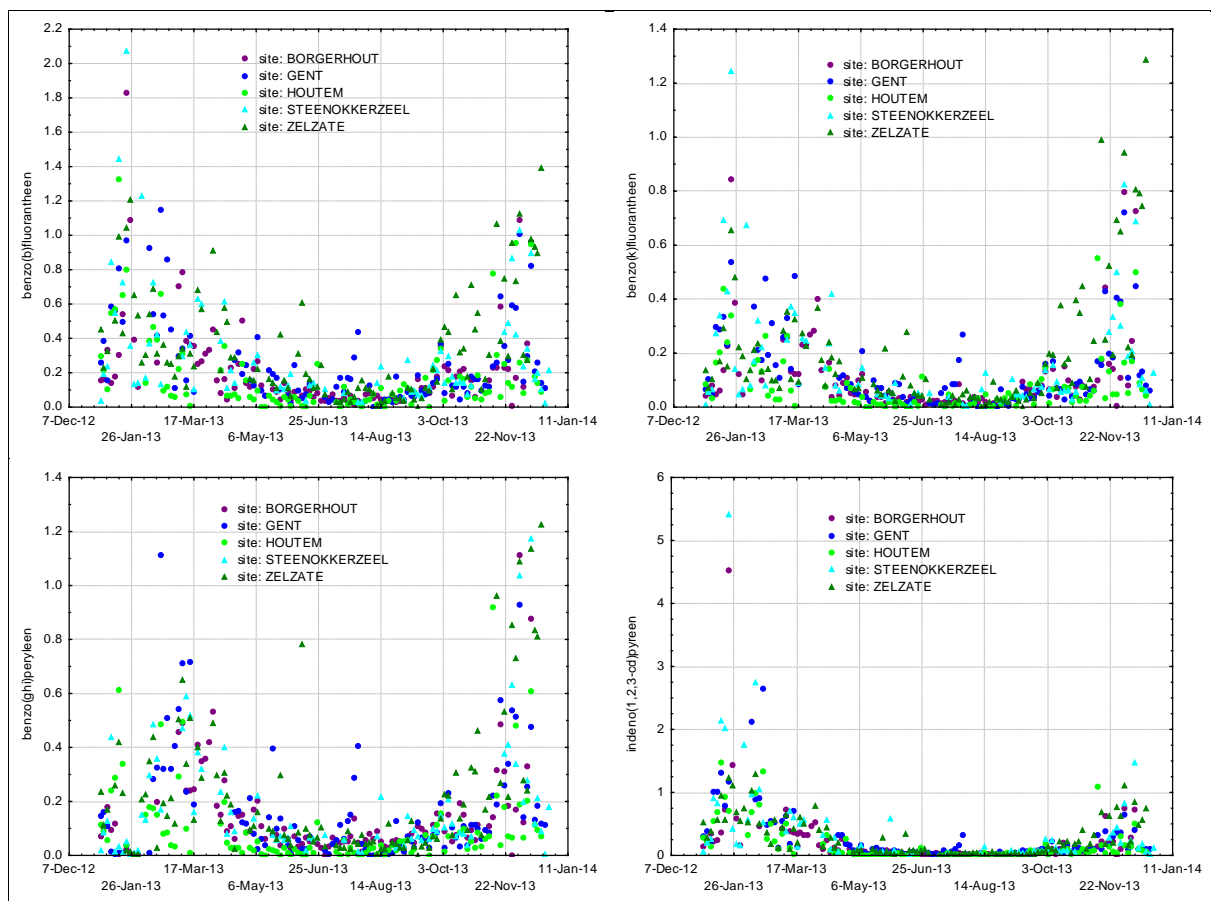
- een hogere PAK-uitstoot door gebouwenverwarming in de winter;
- stabielere weer en meer inversies in de wintermaanden;
- verliezen van PAK's bij de monsterneming in de zomermaanden door een combinatie van hogere temperaturen en hogere ozonconcentraties.

Hoogstwaarschijnlijk is de bijdrage door houtverbranding in de winter de belangrijkste reden voor de waargenomen trend. Uit enquêtes blijkt dat het houtverbruik het hoogst is in de wintermaanden, en niet in de tussenseizoenen zoals men soms denkt. De metingen lijken deze vaststelling dus te bevestigen.



Figuur 8: Jaarverloop van benzo(a)pyreen voor de 5 meetposten in ng/m³





Figuur 9: Jaarverloop van de andere PAK's in ng/m³

Het jaarverloop van de verschillende PAK's lijkt in grote lijnen op elkaar en toont aan dat de verschillende PAK's vaak sterk gecorreleerd zijn. Dit bleek ook wanneer we de Pearson correlatiecoëfficiënten berekenen, zie Tabel 2. In de tabel zien we ook dat de coëfficiënt tussen benzo(a)pyreen en de andere PAK's in 6 van de 8 gevallen groter is dan 0,8. Deze laatste waarde beschouwen we doorgaans als een richtwaarde om van een 'sterke correlatie' te spreken.

Tabel 2: Correlatietabel voor de gemeten PAK's

PAK (ng/m ³)	fluorantheen	pyreen	benzo(a)anthraceen	chryseen	benzo(b)fluorantheen	benzo(k)fluorantheen	benzo(a)pyreen	benzo(g,h,i)peryleen	indeno(1,2,3-cd)pyreen
fluorantheen	1,00								
pyreen	0,93	1,00							
benzo(a)anthraceen	0,67	0,69	1,00						
chryseen	0,83	0,85	0,79	1,00					
benzo(b)fluorantheen	0,81	0,80	0,71	0,90	1,00				
benzo(k)fluorantheen	0,80	0,80	0,88	0,89	0,91	1,00			
benzo(a)pyreen	0,82	0,85	0,83	0,88	0,90	0,96	1,00		
benzo(g,h,i)peryleen	0,55	0,58	0,85	0,70	0,65	0,78	0,71	1,00	
indeno(1,2,3-cd)pyreen	0,72	0,68	0,39	0,72	0,82	0,71	0,76	0,38	1,00

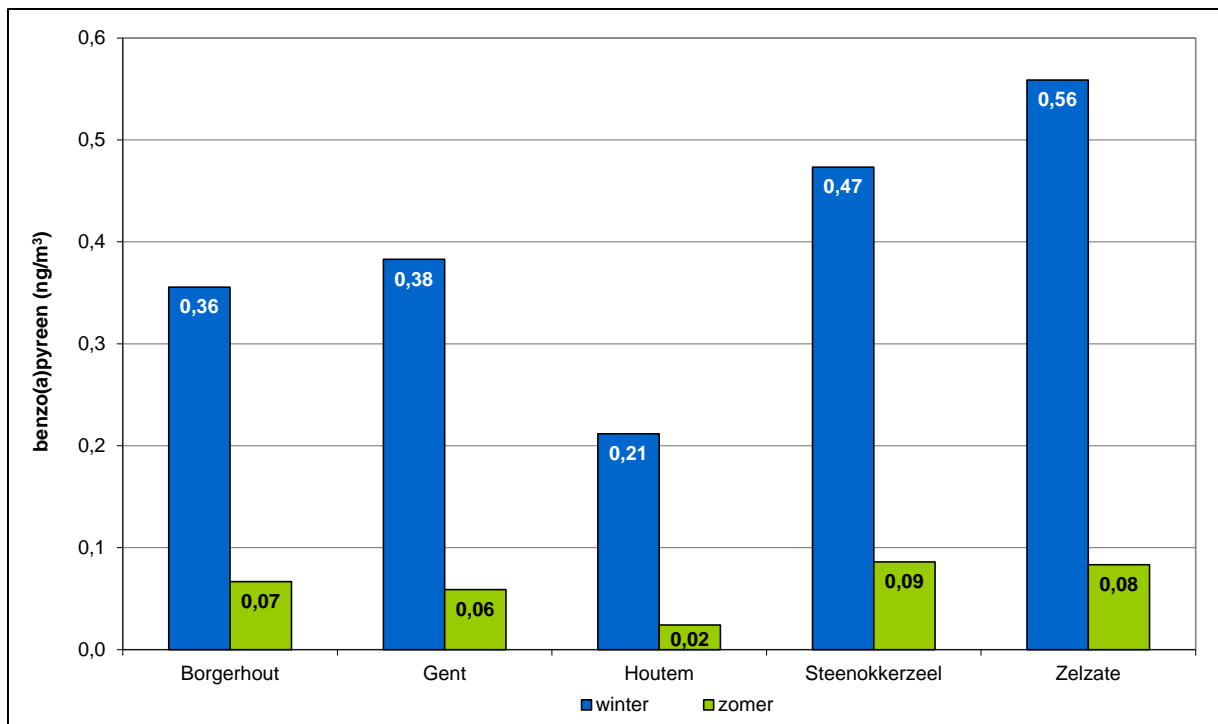
2.3.2 Verschil winter/zomer

Uit Tabel 3 blijkt dat de gemiddelde concentraties voor alle PAK's 3 tot 6 keer hoger waren in de winter (oktober-maart) dan in de zomer (april-september). De grootste verschillen tussen winter en zomer zien we bij benzo(a)pyreen en indeno(1,2,3-cd)pyreen, wat aangeeft dat het relatieve belang van houtverbranding voor deze 2 PAK's waarschijnlijk het hoogst is.

Tabel 3: Gemiddelde concentraties voor winter en zomer en de verhouding tussen beide

ng/m ³	winter	zomer	winter/zomer
	0,94	0,324	2,9
pyreen	0,70	0,159	4,4
benzo(a)anthraceen	0,39	0,101	3,8
chryseen	0,48	0,173	2,8
benzo(b)fluorantheen	0,39	0,126	3,1
benzo(k)fluorantheen	0,21	0,056	3,8
benzo(a)pyreen	0,40	0,064	6,2
dibenzo(a,h)anthraceen	0,08	0,032	2,7
benzo(g,h,i)peryleen	0,25	0,080	3,1
indeno(1,2,3-cd)pyreen	0,45	0,074	6,1
Totaal	4,21	1,156	3,6

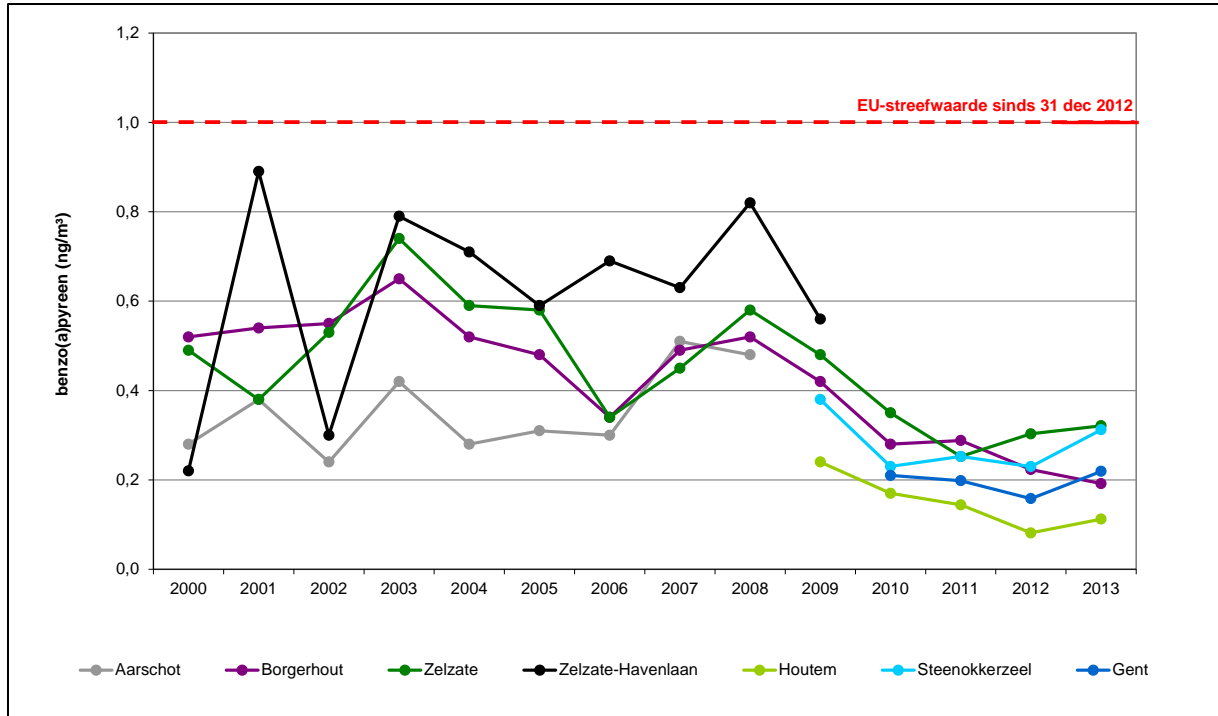
Figuur 10 toont voor benzo(a)pyreen het verschil tussen zomer en winter per meetpost. De grootste absolute toename tussen winter en zomer zien we in Zelzate (+ 0,48 ng/m³), de grootste relatieve toename zien we in Houtem (x 8,7).



Figuur 10: Gemiddelde benzo(a)pyreen-concentratie per seizoen, per meetpost

2.3.3 Meerjarentrend

Figuur 11 toont dat de benzo(a)pyreen-concentraties in 2013 overall ruim onder de EU-streefwaarde van 1 ng/m³ lagen.



Figuur 11: Evolutie van het benzo(a)pyreen-jaargemiddelde tussen 2000 en 2013

De concentraties van benzo(a)pyreen lagen globaal gezien in de lijn van de voorgaande jaren. Op Borgerhout na zien we op de meeste plaatsen een lichte stijging in vergelijking met 2012. Het is momenteel nog niet duidelijk of deze stijging het gevolg is van toegenomen uitstoot (bijvoorbeeld door

meer houtverbranding) of louter het gevolg is van de jaarlijkse verschillen in meteorologische omstandigheden die zorgen voor meer/minder verdunning van de vervuiling.

Belangrijke noot: de historische data van 2011 en 2012 zijn tijdens de opmaak van dit rapport gecorrigeerd nadat er problemen met betrekking tot de analyse aan het licht waren gekomen. Het bleek dat de toen gerapporteerde waarden ongeveer 50% te laag waren. De opvallende en niet te verklaren daling waarvan sprake was in de vorige rapporten is bij deze verdwenen. Deze figuur verschilt dus van deze uit vroegere rapporten.

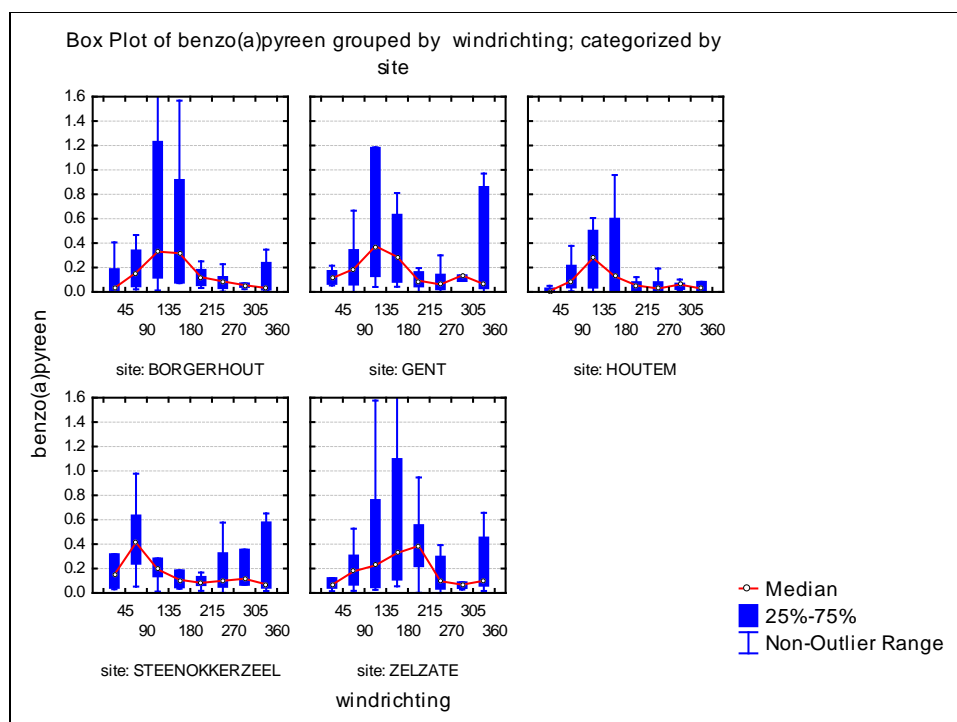
2.3.4 Invloed windrichting

Figuur 12 en Figuur 13 tonen per meetpost een boxplot voor benzo(a)pyreen en de som van de PAK's. De situatie in Houtem geeft waarschijnlijk een goed beeld van de Vlaamse achtergrond, met een duidelijke verhoging bij wind uit de twee sectoren tussen oost (90°) en zuid (180°). Daarnaast zien we op verschillende plaatsen ook verhogingen in andere sectoren wat wijst op lokale bronnen. Op basis van een 100-tal meetdagen is het echter niet eenvoudig om de situatie duidelijk te analyseren.

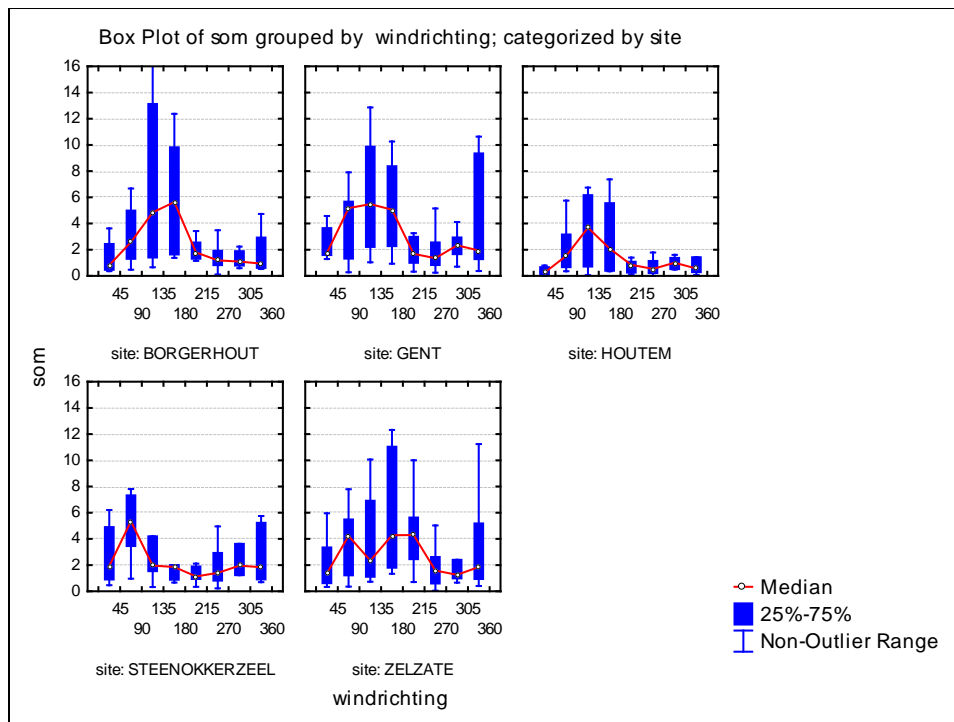
In Borgerhout en Gent leek er een algemene verhoging en is de sector tussen oost (45°) en zuid (180°) veel meer uitgesproken dan op de achtergrond in Houtem.

In Steenokkerzeel zien we de hoogste waarden in de sector tussen noord-oost (45°) en oost (90°). Hier was waarschijnlijk een lokale bron voor verantwoordelijk. De schouw van het nabijgelegen gebouw leek de meest waarschijnlijke oorzaak. In de sector tussen zuidwest (215°) en noord (360°) waren er soms ook hoge waarden, wat op een bijdrage van de luchthaven kan wijzen.

In Zelzate zien we de hoogste mediaan voor de sector tussen zuid (180°) en zuidwest (215°), dit wijst in de richting van ArcelorMittal.



Figuur 12: Boxplot voor benzo(a)pyreen per windsector, per meetpost



Figuur 13: Boxplot voor de som van de PAK's per windsector, per meetpost

2.4 Meetcampagne nabij een snelweg

Eind 2012 deed de VMM in het kader van het Life+ project 'ATMOSYS'³ metingen van fijn stof nabij een autosnelweg, namelijk de E40 in Affligem. Hierbij bemonsterde de VMM de PM₁₀-fractie van fijn stof op vier verschillende afstanden van de weg. Voor 7 dagen begin december, met telkens wind vanaf de autosnelweg, bepaalde de VMM de PAK-concentraties voor de 4 beschikbare meetplaatsen. Hierna beperken we ons tot de resultaten van deze PAK-analyses, maar meer info over de campagne is beschikbaar in een apart rapport.⁴

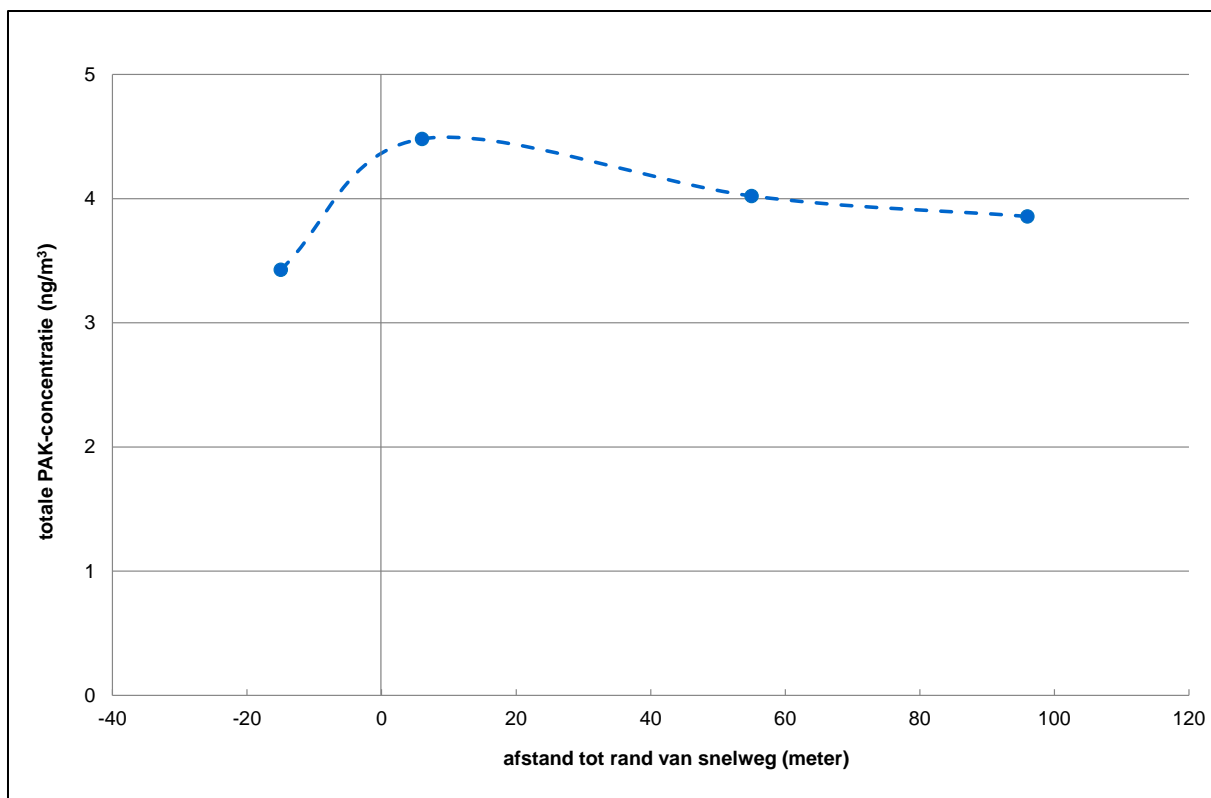
Figuur 14 toont de gemiddelde concentratie van de som van de 9 bepaalde PAK's in functie van de windafwaartse afstand tot de wegrand. Hierbij zagen we dat de concentratie op de meetplaats 6 meter windafwaarts van de autosnelweg ongeveer 1 ng/m³ hoger was dan op de meetplaats 15 meter windopwaarts. Op 55 meter en op 96 meter zagen we gemiddelde concentraties die respectievelijk 0,6 en 0,4 ng/m³ hoger waren dan op de windopwaartse meetplaats.

Figuur 15 en Figuur 16 tonen de absolute cijfers voor de individuele PAK's en de relatieve waarden tegenover de meetplaats windopwaarts. Hierbij zien we dat de algemene trend min of meer vergelijkbaar is maar dat er toch aanzienlijke absolute en relatieve verschillen zijn tussen de PAK's onderling. De grootste toenames, vlak bij de autosnelweg, zien we voor chryseen, benzo(a)anthraceen en indeno(1,2,3-cd)pyreen. De verhoging van die laatste 'zware' PAK-verbinding is opvallend aangezien we verkeer doorgaans associëren met de 'lichtere' PAK's. Het vreemde profiel voor deze verbinding – met een hogere concentratie op 96 meter dan op 55 meter – zou kunnen betekenen dat er nog een andere bron aanwezig was. Op basis van de beschikbare data kunnen we hier echter geen uitspraken over doen.

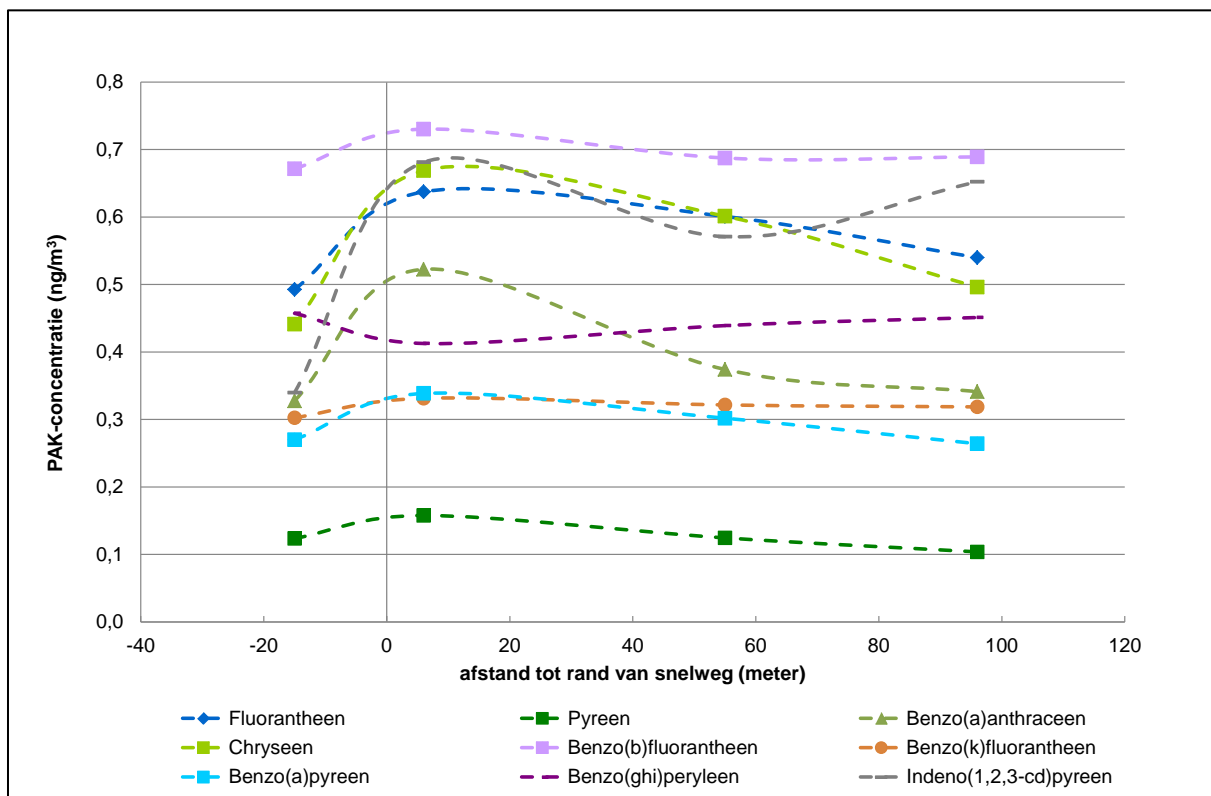
Noot: Het reële profiel ziet er vrijwel zeker anders uit dan de stippellijn omdat de maximale concentratie zich op de snelweg zelf zal bevinden. Ook het verloop aan de windopwaartse kant is onmogelijk af te leiden uit de metingen.

³ <http://atmosys.eu>

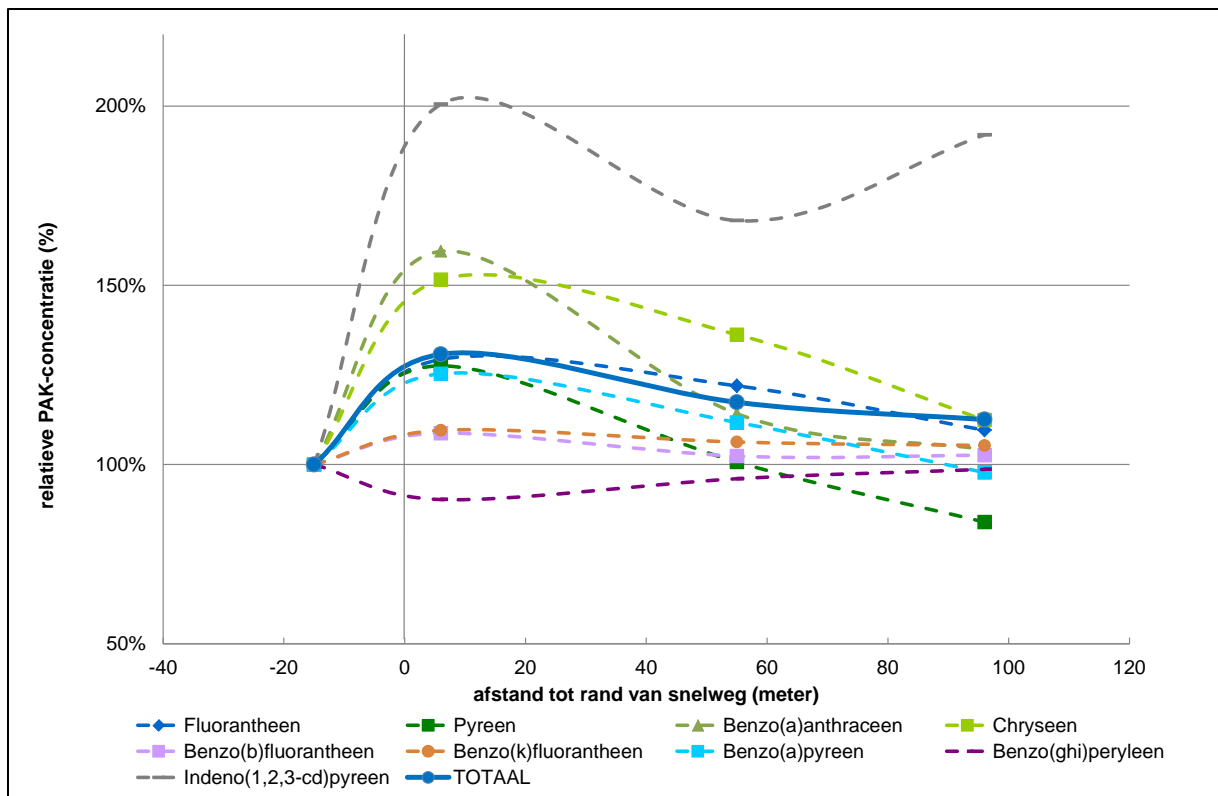
⁴ <http://www.vmm.be/pub/life-atmosys-snelwegcampagne-luchtkwaliteit-nabij-de-e40-snelweg-in-affligem/view>



Figuur 14: Gemiddelde totale PAK-concentratie in functie van de windafwaartse afstand tot de rand van de snelweg



Figuur 15: Gemiddelde individuele PAK-concentraties in functie van de windopwaartse afstand tot de rand van de snelweg



Figuur 16: Relatieve PAK-concentraties tegenover de meetplaats 15 meter windopwaarts van de snelweg

2.5 Aanpassing meetnet vanaf 1 januari 2014

Na een interne evaluatie van de meetstrategie voor PAK's besloot de VMM om vanaf 2014 het meetnet als volgt aan te passen:

Overschakeling van hoog volume TSP naar laag volume PM₁₀ monsterneming

Laag volume bemonstering is de officiële referentiemethode voor de bemonstering van PM₁₀ in Europa. De aard van het toestel maakt dat er minder opwarming is van de filters waardoor er minder verliezen van PAK's door vervluchtiging zouden optreden dan bij een groot volume bemonsteraar. Omdat de toestellen minder lucht bemonsteren, zijn de absolute hoeveelheden van de PAK's wel lager, maar normaal gezien toch nog voldoende hoog voor onze doeleinden.

Wijziging meetposten

Na analyse van gekende industriële emissies van benzo(a)pyreen en na overleg met het Steunpunt Milieu en Gezondheid besloot de VMM om drie meetposten extra op te starten (in Berendrecht, Genk en Sint-Kruis-Winkel) en één meetpost te schrappen (in Steenokkerzeel).

3 PAK-depositiemetingen

3.1 Inleiding

De zwaardere PAK's in de lucht hechten zich door hun beperkte vluchtigheid gemakkelijk aan fijn stof. De verwijdering van deze PAK's uit de lucht kan via natte en droge depositie gebeuren. Op deze wijze komen de PAK's terecht op gewassen en bodem en in het oppervlaktewater.

Bij depositiemetingen meten we het stof dat neervalt uit de lucht. Hierbij analyseren we alle 16 EPA-PAK's. Depositieingen zeggen iets over de kwaliteit van de omgevingslucht en over de verspreiding van PAK's in het milieu. De waarden zijn wel sterk afhankelijk van de hoeveelheid neerslag tijdens de meetperiode en zijn daarom minder geschikt om trends te volgen.

3.2 Meetprocedure

3.2.1 Meetposten

Op 3 van de 5 meetposten voor PAK's in lucht, voerde de VMM ook depositiemetingen uit, namelijk in Borgerhout, Zelzate en Houtem.

3.2.2 Monsterneming

De monsterneming gebeurde met een Bergerhoff kruik. Deze methode, op basis van een eenvoudige beker met gekende diameter, past men ook in het buitenland vaak toe. In 2011 verscheen er een nieuwe standaard voor het meten van PAK-depositie (EN15980) waaruit blijkt dat er bij de Bergerhoff kruik verliezen kunnen optreden in vergelijking met een *Funnel-bottle bulk collector*. De VMM schakelde op 1 januari 2014 over op deze nieuwe methode.

3.2.3 Analyseprocedure

De VMM startte de metingen in 2001 op. Een gedetailleerde beschrijving van de bemonsteringsmethode, de opwerking van de stalen en de analyse die tot 2005 door SGS werd uitgevoerd, vindt u in het PAK-jaarrapport van 2006⁵. Vanaf 2005 voert de VMM zelf de analyses uit. Hierbij gebruiken we hogedrukvlloeistofchromatografie (HPLC) en fluorescentie-detectie (FD).

3.2.4 Meetstrategie

De VMM voert sinds 2001 PAK-depositiemetingen uit. Tot en met 2010 gebeurden de metingen tweemaal per jaar gedurende circa één maand op tal van plaatsen. Omdat het weer vaak voor grote verschillen zorgde van maand tot maand, gaf deze aanpak moeilijk te interpreteren resultaten.

Vanaf april 2011 voert de VMM op alle meetposten jaarrond metingen uit zoals al sinds 2010 voor Houtem het geval was. Dit resulteerde voor 2013 in 13 'maand'stalen van telkens min of meer 4 weken. Op deze manier hebben we voor de meetposten een exact beeld van de totale depositie over een volledig jaar.

3.2.5 Regelgeving

De vierde EU-dochterrichtlijn Lucht (2004/107/EG) vraagt de lidstaten om de depositie van PAK's te meten, maar legt geen grens- of richtwaarden vast. Op één plaats per 100.000 km² moet er een monsterneming op een achtergrondlocatie gebeuren. De VMM gebruikt hiervoor de meetpost in Houtem.

⁵ VMM (2007), Polycyclische en nitro-polycyclische aromatische koolwaterstoffen in de omgevingslucht in Vlaanderen

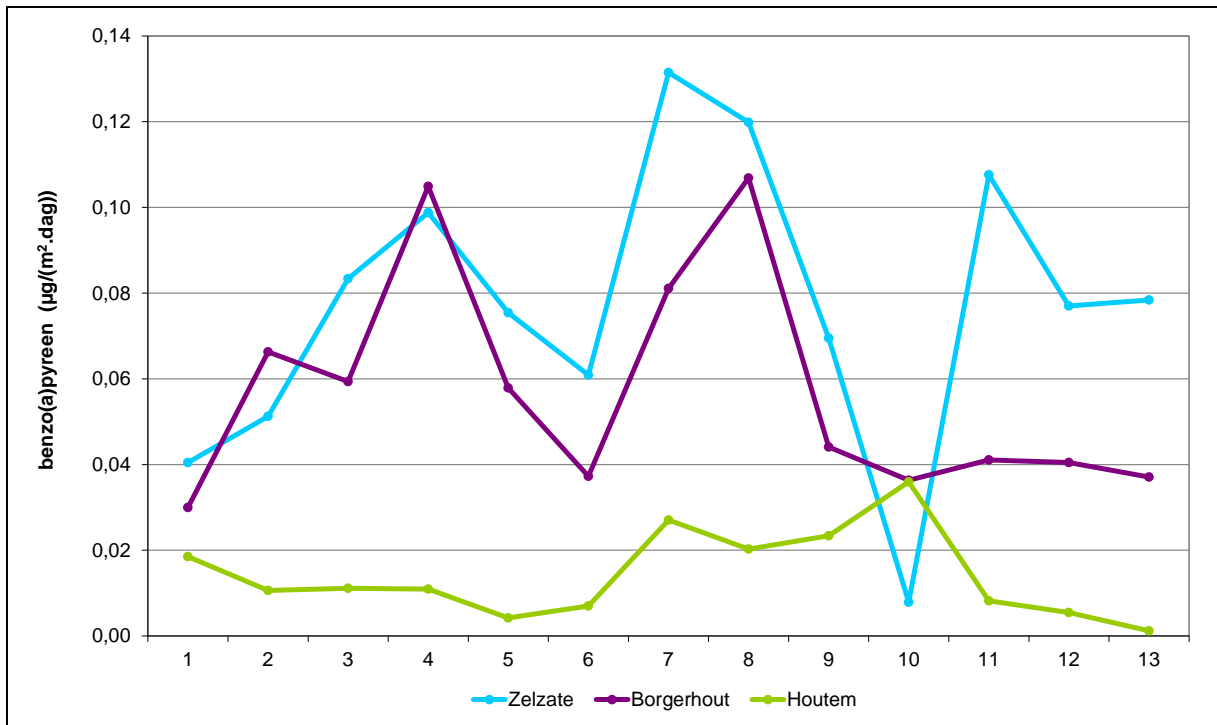
3.3 Resultaten PAK-depositie 2013

Uit de verschillende maandelijkse stalen en het exact aantal dagen van bemonstering, berekenden we de gemiddelde depositie per dag, uitgedrukt in μg per m^2 . Uit het gemiddelde van deze waarden berekenden we daarna de jaargemiddelde depositie, eveneens uitgedrukt 'per dag'. Tabel 4 toont deze resultaten voor de drie meetposten. De maandelijkse waarden per meetpost worden getoond in Figuur 17 en Figuur 18.

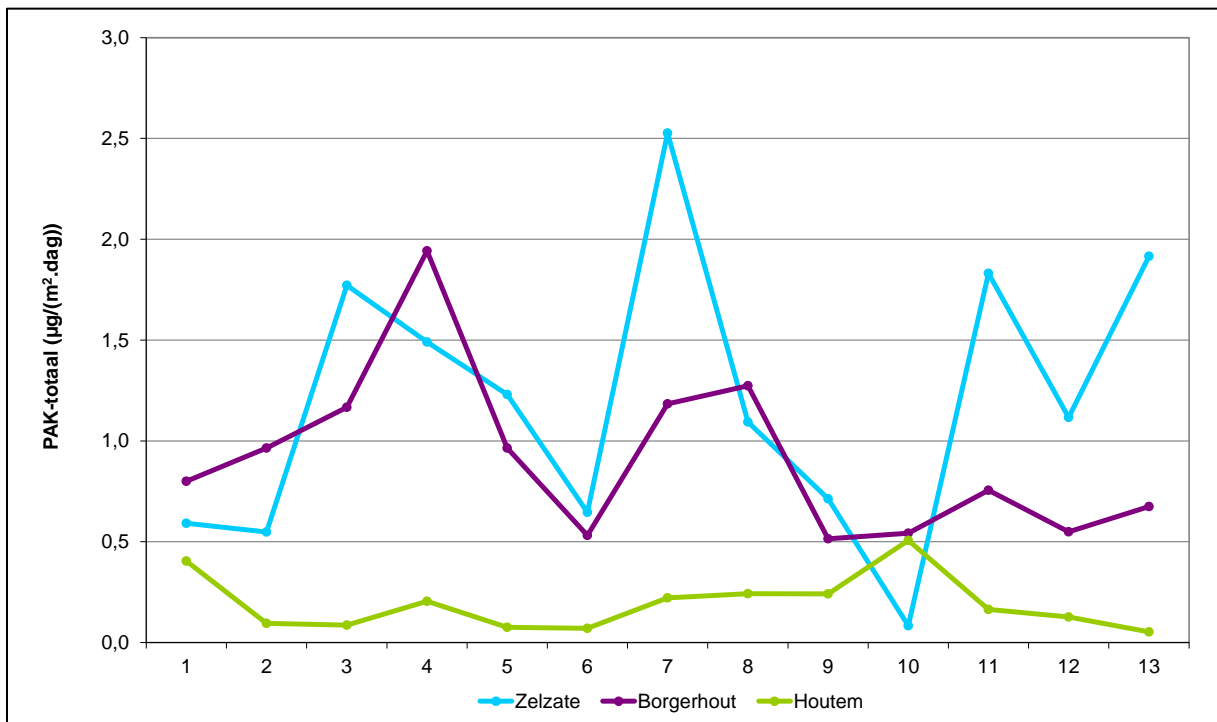
Tabel 4: Gemiddelde depositiewaarden voor de drie meetposten

$\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{dag})$	Borgerhout	Houtem	Zelzate
Naftaleen	0,044	0,005	0,155
acenaftyleen	0,003	0,004	0,009
acenaftteen	0,018	0,003	0,005
Fluoreen	0,005	0,003	0,009
fenantreen	0,091	0,019	0,138
anthraceen	0,011	0,001	0,014
fluorantheen	0,167	0,031	0,170
Pyreen	0,132	0,021	0,159
benzo(a)anthraceen	0,051	0,007	0,058
chryseen	0,084	0,018	0,094
benzo(b)fluorantheen	0,085	0,022	0,103
benzo(k)fluorantheen	0,037	0,010	0,043
benzo(a)pyreen	0,057	0,014	0,077
dibenzo(a,h)anthraceen	0,010	0,002	0,014
benzo(g,h,i)peryleen	0,063	0,015	0,083
indeno(1,2,3,-cd)pyreen	0,054	0,015	0,066
Totaal	0,913	0,192	1,197

De individuele maandresultaten per meetpost kunnen soms sterk verschillen. Dit geeft aan dat de jaargemiddelden uit het verleden, met slechts 2 maandstalen per jaar, een grote onzekerheid hadden. De relatieve verschillen in het jaargemiddelde tussen de 3 meetposten geven, net als bij de metingen in omgevingslucht, aan dat lokale bronnen ook bij depositie een belangrijke rol spelen.



Figuur 17: Depositiewaarden per maandstaal voor benzo(a)pyreen



Figuur 18: Depositiewaarden per maandstaal voor de som van alle gemeten PAK's

3.4 Meerjarentrend

Figuur 19 en Figuur 20 tonen het verloop van de jaargemiddelde depositiewaarden van de laatste 10 jaar voor zowel benzo(a)pyreen als voor de som van de gemeten PAK's. Omdat we tot 2011 met slechts twee maandcampagnes per jaar werkten, is het niet eenvoudig om uitspraken te doen over de trend in de tijd. In vergelijking met 2012 zien we vergelijkbare niveaus in Borgerhout en Houtem, maar een verdubbeling in Zelzate.



Figuur 19: Trend van benzo(a)pyreen depositie van 2004 tot en met 2013



Figuur 20: Trend van de totale PAK-depositie van 2004 tot en met 2013

4 Besluit

De belangrijkste conclusies uit dit rapport zijn:

- De concentratie van benzo(a)pyreen in de omgevingslucht lag in 2013 op alle meetposten **onder de EU-streefwaarde van 1 ng/m³**. De jaargemiddelden varieerden tussen 0,32 ng/m³ in Zelzate en 0,11 ng/m³ in Houtem.
- Aan het niveau van 2013 waren er nog steeds gezondheidseffecten van PAK's. De WGO berekende het **extra risico op kanker** bij een levenslange blootstelling. Aan de huidige concentraties betekent dit gemiddeld over alle meetposten **1 extra kankergeval op 50.000 inwoners**. Het Vlaams Agentschap Zorg en Gezondheid omschrijft die niveaus als gezondheidskundig niet verwaarloosbaar, maar wel maatschappelijk aanvaardbaar mits beleidsmatige afweging.
- De PAK-concentraties in omgevingslucht waren voor alle verbindingen en op alle meetposten een stuk **hoger in de wintermaanden** dan in de zomermaanden. Voor benzo(a)pyreen waren de meetwaarden gemiddeld 6 keer hoger in de winter dan in de zomer. Houtverbranding was hier vrijwel zeker de hoofdoorzaak van.
- De onderlinge verhouding tussen de PAK's op de verschillende meetposten was vrij goed vergelijkbaar en de concentraties van alle PAK's waren vrij **sterk gecorreleerd**.
- De PAK-concentraties in omgevingslucht lagen in 2013 **in de lijn van de voorgaande jaren**.
- De **PAK concentraties uit 2011 en 2012 zijn gecorrigeerd** nadat problemen met betrekking tot de analyse aan het licht waren gekomen. De waarden voor 2011 en 2012 bleken dubbel zo hoog als eerder gerapporteerd.
- De meetresultaten van **PAK-depositie** lagen in **dezelfde grootteorde als de vorige jaren**.

BIJLAGEN

Bijlage 1: Informatie over geaccrediteerde metingen (norm ISO/IEC 17025:2005)

Parameter	Toesteltype	Meetprincipe analyse	Volgens norm	Meet-onzekerheid	Bepaling meet-onzekerheid	Onder-accreditatie	Onder-aanname	uitbesteding
Naftaleen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC	accreditatie volgens eigen methode voor 16 EPA-PAKs "Belac-nummer 163-TEST"	20%	$CV_{tot} = \sqrt{(CV_R)^2 + \sum (CV_{sup,i})^2}$	ja ¹	nee	nee
Acenaftyleen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		13%		ja ¹	nee	nee
Fluoreen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		19%		ja ¹	nee	nee
Fenantreen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		20%		ja ¹	nee	nee
Anthraceen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		29%		ja ¹	nee	nee
Fluorantheen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		20%		ja ¹	nee	nee
Pyreen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		27%		ja ¹	nee	nee
Chryseen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		17%		ja ¹	nee	nee
Benzo(a)anthraceen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		18%		ja ¹	nee	nee
Benzo(b)fluorantheen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		19%		ja ¹	nee	nee
Benzo(k)fluorantheen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		29%		ja ¹	nee	nee
Dibenzo(a,h)anthraceen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		16%		ja ¹	nee	nee
Benzo(g,h,i)peryleen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		22%		ja ¹	nee	nee
Benzo(a)pyreen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC		21%		ja ¹	nee	nee
Indeno(1,2,3-cd)pyreen	Digitel DHA-80	ASE + HPLC	16%	ja ¹	nee	nee		
Naftaleen	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	38%		nee	nee	nee
Acenaftteen	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	36%		nee	nee	nee
Acenaftyleen	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	28%		nee	nee	nee
Fluoreen	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	38%		nee	nee	nee

Fenantreen	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	30%		nee	nee	nee
Anthraceen	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	30%		nee	nee	nee
Fluorantheen (b)	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	34%		nee	nee	nee
Pyreen	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	33%		nee	nee	nee
Chryseen	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	46%		nee	nee	nee
Benzo(a)anthraceen	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	37%	$CV_{tot} = \sqrt{(CV_R)^2 + \sum (CV_{sup,i})^2}$	nee	nee	nee
Benzo(b)fluorantheen (b)	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	40%		nee	nee	nee
Benzo(k)fluorantheen (b)	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	24%		nee	nee	nee
Dibenzo(a,h)anthraceen	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	35%		nee	nee	nee
Benzo(g,h,i)peryleen (b)	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	34%		nee	nee	nee
Benzo(a)pyreen (b)	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	35%		nee	nee	nee
Indeno(1,2,3-cd)pyreen (b)	Bergerhoff kruik	ASE + HPLC	NBN EN 15980	40%		nee	nee	nee

¹: BELAC 163-TEST - VMM labo Gent