



Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu
*Ministerie van Volksgezondheid,
Welzijn en Sport*

Risicobeoordeling van GenX en PFOA in moestuingewassen in Dordrecht, Papendrecht en Sliedrecht

RIVM Briefrapport 2018-0017
M.J.B. Mengelers et al.



Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu
*Ministerie van Volksgezondheid,
Welzijn en Sport*

Risicobeoordeling van GenX en PFOA in moestuingewassen in Dordrecht, Papendrecht en Sliedrecht

RIVM Briefrapport 2018-0017
M.J.B. Mengelers et al.

Colofon

© RIVM 2018

Delen uit deze publicatie mogen worden overgenomen op voorwaarde van bronvermelding: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), de titel van de publicatie en het jaar van uitgave.

DOI 10.21945/RIVM-2018-0017

M.J.B. Mengelers (auteur), RIVM
J.D. te Biesebeek (auteur), RIVM
M. Schipper (auteur), RIVM
W. Slob (auteur), RIVM
P.E. Boon (auteur), RIVM

Contact:
Marcel Mengelers
VPZ/VVH
marcel.mengelers@rivm.nl

Dit onderzoek is verricht in opdracht van de Gemeente Dordrecht, in het kader van het project Moestuinonderzoek

Dit is een uitgave van:
**Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu**
Postbus 1 | 3720 BA Bilthoven
Nederland
www.rivm.nl

Publiekssamenvatting

Risicobeoordeling van GenX en PFOA in moestuingewassen in Dordrecht, Papendrecht en Sliedrecht

Door de uitstoot van het chemiebedrijf DuPont/Chemours in Dordrecht zijn de stoffen GenX en PFOA via de lucht terechtgekomen in het milieu. Naar aanleiding hiervan vragen mensen met een moestuin in de buurt van het bedrijf zich af of het veilig is om zelfgeteelde groenten te eten. De grenswaarden die voor de blootstelling van GenX en PFOA gelden, worden via voedsel niet overschreden, zo blijkt uit onderzoek van het RIVM. Omwonenden komen echter ook via lucht en drinkwater in aanraking met de stoffen. Daarom adviseert het RIVM om moestuingewassen die binnen een straal van 1 kilometer van het bedrijf zijn geteeld, met mate te consumeren (niet te vaak of te veel). Daar zijn wat hogere concentraties aangetroffen. Buiten dit gebied zijn de concentraties dermate laag dat de gewassen veilig kunnen worden gegeten, ook in combinatie met andere blootstellingsbronnen.

De basis van dit onderzoek is de berekening van de blootstelling aan GenX en PFOA via zelfgeteelde groenten bij mensen met een moestuin binnen een straal van 4 kilometer rond de fabriek. Eind augustus 2017 zijn hiervoor op 10 locaties monsters van groenten genomen: in Dordrecht en Papendrecht op drie locaties en op vier in Sliedrecht. Als vergelijking is een locatie in Bilthoven onderzocht. Op alle locaties zijn van drie categorieën groenten (blad-, knol- en vruchtgroenten) monsters genomen. Op een van de locaties zijn ook nog twee fruitgewassen onderzocht. In totaal zijn 81 monsters geanalyseerd.

In ongeveer 40 procent van de monsters rond de fabriek is GenX en/of PFOA aangetoond. In 14 procent van de monsters rond de fabriek is GenX aangetroffen in meetbare hoeveelheden en in 4 procent PFOA. Bij concentraties lager dan 1 nanogram per gram kan de precieze hoeveelheid niet worden aangegeven; alleen de constatering dat het erin zit. Op één locatie, minder dan 1 kilometer ten noordoosten van de fabriek, zijn hogere concentraties GenX in groente (in andijvie, bieten, selderij, sla en tomaten) en PFOA (in bieten) aangetroffen dan op de andere 9 locaties rond de fabriek.

De hoogste concentraties zijn vervolgens gebruikt om de blootstelling te berekenen. Hierbij is aangenomen dat mensen hun leven lang dagelijks uitsluitend groenten uit hun eigen tuin eten. De uitkomsten zijn daardoor waarschijnlijk hoger dan de werkelijke blootstelling van GenX en PFOA bij moestuinhouders rond de fabriek. Onder deze worst-case-omstandigheden overschreed de blootstelling van beide stoffen via voedsel niet de grenswaarden die als veilig worden beschouwd (gezondheidskundige grenswaarden).

Kernwoorden: GenX, PFOA, risicobeoordeling, moestuin, groente en fruit

Synopsis

Risk assessment of GenX and PFOA in vegetable garden crops in Dordrecht, Papendrecht and Sliedrecht

As a result of emissions from the DuPont/Chemours chemicals company in Dordrecht, the substances GenX and PFOA have been emitted into the environment via the air. As a consequence, persons with a vegetable garden in the vicinity of the company are not sure whether it is safe to eat their home-grown vegetables. A study carried out by RIVM concludes that the threshold values of GenX and PFOA that apply to exposure are not exceeded via food. However, residents are also exposed to these substances via air and drinking water. RIVM therefore advises that vegetable garden crops grown within a radius of 1 kilometre from the company should be consumed in moderation (not too often or too much). The concentrations found within this area were somewhat higher. Outside this area, the concentrations were so low that the crops can be safely consumed even if one takes into account the two other sources of exposure.

The study at hand is based on the calculation of the exposure to GenX and PFOA via home-grown vegetables for persons with a vegetable garden located within a radius of 4 kilometres from the factory. At the end of August 2017, samples were taken of vegetables at ten different locations, namely at three locations in Dordrecht and Papendrecht and at four locations in Sliedrecht. A location in Bilthoven was sampled for purposes of comparison. Samples were taken of three categories of vegetables at all the locations, namely leafy vegetables, root vegetables, and fruiting vegetables. At one of the locations, two fruit crops were also sampled. A total of 81 samples were analysed.

GenX and/or PFOA were found to be present in approximately 40% of the samples in the vicinity of the factory. GenX was found to be present in measurable quantities in 14% of the samples in the vicinity of the factory, and the same was true of PFOA in 4% of the samples. At concentrations less than 1 nanogram per gram, it was not possible to determine the exact quantity present, but only that the substance was present. At one location, less than 1 kilometre north-east of the factory, higher concentrations of GenX (in endive, beets, celery, lettuce, and tomatoes) and of PFOA (in beets) were found to be present in vegetables than at the other nine locations close to the factory.

The highest concentrations were used to calculate the exposure. The calculation was based on the assumption that the persons in question would eat daily only vegetables from their own garden throughout their lifetime. The calculated results are therefore probably higher than the actual exposure to GenX and PFOA of vegetable garden owners in the vicinity of the factory. Under these worst-case circumstances, the exposure to both substances via food did not exceed the threshold values that are considered safe (the so-called health-based guidance values).

Keywords: GenX, PFOA, risk assessment, home-grown, vegetables and fruit

Inhoudsopgave

Samenvatting — 9

1 Inleiding — 13

- 1.1 Achtergrond — 13
- 1.1.1 Aanleiding — 13
- 1.1.2 Opdrachtgever — 13
- 1.2 Onderzochte stoffen: GenX en PFOA — 13
- 1.3 Doel en vraagstelling van het onderzoek — 13
- 1.4 Studieopzet — 14
- 1.4.1 Fasering van het onderzoek — 14
- 1.4.2 Beoogde studieopzet eerste fase — 14
- 1.5 Uitvoering — 15
- 1.6 Indeling van het rapport — 15

2 Methodiek van de risicobeoordeling — 17

- 2.1 Inleiding — 17
- 2.2 Concentraties — 17
- 2.3 Statistische analyse — 17
- 2.4 Voedselconsumpties — 18
- 2.5 Inname van GenX en PFOA — 18
- 2.5.1 Koppeling gemeten concentraties aan geconsumeerde producten — 18
- 2.5.2 Gebruikte concentraties — 18
- 2.5.3 Gebruikte model voor berekening inname — 19
- 2.6 Toxiciteit van GenX en PFOA — 19
- 2.6.1 Algemeen — 19
- 2.6.2 GenX — 20
- 2.6.3 PFOA — 20
- 2.7 Risicobeoordeling — 21
- 2.7.1 Algemeen — 21
- 2.7.2 Vergelijking blootstelling met de TDI — 21
- 2.7.3 Verfijning van de risicobeoordeling met APROBA-Plus — 21

3 Resultaten — 23

- 3.1 Gemeten concentraties GenX en PFOA in groente en fruit — 23
- 3.2 Statistische analyse — 24
- 3.2.1 Clusters van moestuinlocaties — 24
- 3.2.2 Invloed van wassen op de concentraties van GenX of PFOA — 24
- 3.2.3 Verschillen in concentraties van GenX of PFOA tussen groentesoorten — 24
- 3.2.4 Gevolgen van de statistische analyse voor de innameberekening — 24
- 3.3 Koppeling tussen code en nummering locatie — 25
- 3.4 Inname van GenX en PFOA — 25
- 3.4.1 Concentraties — 25
- 3.4.2 Voedselconsumpties — 26
- 3.4.3 Innameberekeningen — 27
- 3.5 Onzekerheidsanalyse — 28
- 3.5.1 Inname — 28
- 3.5.2 Toxiciteit — 31
- 3.6 Risicobeoordeling — 31
- 3.6.1 GenX — 31

- 3.6.2 PFOA — 32
- 3.6.3 Conclusies — 33

4 Discussie en conclusies — 35

- 4.1 Vergelijking met eerder onderzoek gerelateerd aan voedsel — 35
- 4.2 Gevonden concentraties GenX en PFOA — 35
- 4.3 Onzekerheden in de risicobeoordeling — 36
- 4.4 Blootstelling uit andere bronnen — 37
 - 4.4.1 Blootstelling via lucht — 37
 - 4.4.2 Blootstelling via drinkwater — 38
- 4.5 Bijdrage blootstelling via drinkwater, lucht en moestuingewassen aan totale blootstelling aan GenX en PFOA — 38
- 4.6 Samenvatting en eindconclusies — 39
- 4.7 Aanbevelingen voor vervolgonderzoek — 40

Dankwoord — 41

Referenties — 43

Bijlage 1. Indeling van de geconsumeerde voedingsmiddelen per categorie — 46

Bijlage 2. Afleiding van TDI voor GenX — 49

Bijlage 3. Concentraties van GenX en PFOA in diverse gewassen — 50

Bijlage 4. Statistische analyse van de GenX en PFOA concentraties in gewassen op de verschillende locaties — 54

Bijlage 5. Berekeningen met APROBA-Plus (calculations with APROBA-Plus) — 64

Samenvatting

De Vrije Universiteit Amsterdam (VU) heeft in 2017 een verkennend onderzoek verricht naar het gehalte van GenX en PFOA in gras en bladeren in de omgeving van het bedrijf DuPont/Chemours. Naar aanleiding hiervan vragen mensen met een moestuin in de buurt van het bedrijf zich af of het veilig is om zelfgeteelde groenten te eten. Het RIVM kon op basis van de resultaten van de VU echter geen uitspraak doen hierover. Daarom heeft de Gemeente Dordrecht, voor de samenwerkende overheden (Sliedrecht, Papendrecht, Provincie Zuid-Holland en Rijk) het RIVM gevraagd om onderzoek uit te voeren in moestuinen in de buurt van DuPont/Chemours.

Het doel van dit onderzoek was om te achterhalen of mensen de groenten uit een moestuin in de buurt van DuPont/Chemours veilig kunnen eten voor wat betreft de aanwezigheid van GenX en PFOA in de groenten. Daartoe zijn twee specifieke onderzoeksvragen gesteld:

1. Wat zijn de concentraties GenX en PFOA in geselecteerde gewassen uit moestuinen in de buurt van DuPont/Chemours?
2. Wordt de toelaatbare dagelijkse inname (TDI) via voedsel van GenX en PFOA overschreden door consumptie van moestuingewassen bij een gebruikelijk consumptiepatroon?

Eind augustus 2017 zijn hiervoor op 10 locaties in de buurt van de fabriek van Dupont/Chemours monsters van groenten genomen: drie locaties in Dordrecht, drie in Papendrecht en vier in Sliedrecht. Daarnaast is een referentielocatie in Bilthoven bemonsterd. Op alle locaties zijn van drie categorieën groenten (blad-, knol- en vruchtgroenten) monsters genomen. Op een van de locaties zijn ook nog twee fruitgewassen onderzocht. In totaal zijn 81 monsters geanalyseerd door het onderzoeksinstituut RIKILT van de universiteit van Wageningen op de aanwezigheid van GenX en PFOA.

Voor het uitvoeren van een risicobeoordeling van GenX en PFOA aanwezig in groente en fruit in moestuinen is de inname van deze stoffen afgezet tegen de gezondheidkundige grenswaarden (toelaatbare dagelijkse inname; TDI) van GenX en PFOA. Voor de berekening van inname zijn de gemeten concentraties van GenX en PFOA in de monsters gecombineerd met consumptiehoeveelheden van groente en fruit afkomstig uit twee Nederlandse voedselconsumptiepeilingen. De TDI's voor GenX en PFOA zijn in het recente verleden door het RIVM afgeleid. Bij het vergelijken van de inname en de TDI van beide stoffen is, waar mogelijk, bij de interpretatie rekening gehouden met de onzekerheden in de beschikbare gegevens.

Het onderzoek naar de concentraties van GenX en PFOA in de moestuingewassen leverde, samengevat, de volgende resultaten op. Op de referentielocatie zijn in geen van de geanalyseerde gewassen (zeven monsters groenten) GenX of PFOA gedetecteerd. In ongeveer 40% van de overige 74 monsters genomen in de omgeving van de fabriek van DuPont/Chemours is GenX en/of PFOA gedetecteerd. Eén locatie, op minder dan 1 km ten noordoosten van DuPont/Chemours, vertoonde

hogere concentraties GenX en PFOA dan de andere negen locaties. In vijf gewassen (andijvie, bieten, selderij, sla en tomaten) is GenX gekwantificeerd en de hoogste gemiddelde concentratie bedroeg 5,4 nanogram GenX/gram sla. In één gewas (bieten) is PFOA gekwantificeerd en de gemiddelde concentratie bedroeg 2,5 nanogram PFOA/gram biet. De in dit rapport gerapporteerde concentraties GenX en PFOA in gewassen afkomstig uit moestuinen in de omgeving van het bedrijf DuPont/Chemours geven antwoord op de eerste vraag.

De concentraties gemeten in 22 monsters afkomstig van de locatie met de hoogste concentraties zijn als 'worst case' situatie gebruikt om de inname van GenX en PFOA te berekenen. Voor de innameberekening is uitgegaan van een minimaal en een maximaal scenario. In het minimale scenario is de laagst gemeten concentratie per (categorie) gewas gebruikt en in het maximale scenario is het hoogst gemeten gehalte per (categorie) gewas gebruikt. In het maximale scenario bedroeg de opvulling van de TDI voor GenX 36% voor de schatting van de gemiddelde inname en 100% voor schatting van de hoge inname. De opvulling van de TDI voor PFOA varieerde in het maximale scenario van 34% voor de schatting van de gemiddelde inname tot 96% voor de schatting van de hoge inname. Het antwoord op vraag 2 luidt dus: Nee, de toelaatbare dagelijkse inname via voeding van GenX en PFOA wordt niet overschreden door consumptie van moestuingewassen bij een gebruikelijk consumptiepatroon.

De werkelijke inname van GenX en PFOA door het eten van groenten uit de moestuinen is waarschijnlijk lager dan de berekende maximale inname door, onder andere, de volgende factoren:

- de innameberekening is gebaseerd op consumptie van gewassen uit de moestuin met de hoogste concentraties aan GenX en PFOA;
- de innameberekening is gebaseerd op de veronderstelling dat alleen gewassen uit eigen tuin worden gegeten;
- de innameberekening is in een aantal gevallen gebaseerd op concentraties aan GenX en PFOA in ongewassen en/of ongeschildte groenten.

Zoals elk onderzoek, bevat ook dit onderzoek onzekerheden. Waar mogelijk zijn deze onzekerheden in dit onderzoek gekwantificeerd. De inname resultaten worden beïnvloed door onzekerheden in de concentratiegegevens van GenX en PFOA, de consumptiegegevens, de koppeling tussen de gemeten en geconsumeerde producten en het model gebruikt voor de berekening van de inname. De belangrijkste bron van onzekerheid in de inname wordt gevormd door de gemeten concentraties van GenX en PFOA. Dit is hoofdzakelijk te wijten aan het beperkte aantal monsters in combinatie met een hoog percentage monsters met een gehalte onder de detectielimiet en de spreiding in de gehalten per gewas. De afleiding van de TDI van GenX en PFOA is gebaseerd op aspecten die ieder hun eigen onzekerheid kennen. Een onzekerheidsanalyse laat zien dat de grootste bijdrage aan de onzekerheid in de TDI van zowel GenX als PFOA wordt geleverd door verschillen tussen proefdier en mens in de mate van ophoping in het lichaam en de afleiding van de dosering waarbij geen negatieve gezondheidseffecten zijn waargenomen in het proefdier. Bovendien laat

de onzekerheidsanalyse zien dat de optelsom van de kwantificeerbare onzekerheden in de TDI's hoger ligt dan de onzekerheden in de inname.

Tot slot, de blootstelling via moestuingewassen was en is niet de enige bron van blootstelling aan GenX en PFOA. Ook drinkwater en lucht zijn bronnen van blootstelling. Daarom is er een inschatting gemaakt van de bijdrage van de bronnen drinkwater, lucht en moestuingewassen aan de totale blootstelling door elke bijdrage afzonderlijk uit te drukken als percentage van de TDI. De totale bijdrage van drinkwater, lucht en moestuingewassen aan de TDI varieerde in het maximale scenario voor GenX van ongeveer 57% tot 124% en voor PFOA van 46 tot 108%. Gelet op de lage bijdrage van drinkwater en de onvermijdelijke bijdrage van lucht aan de blootstelling adviseert het RIVM om moestuingewassen die binnen een straal van 1 kilometer van het bedrijf zijn geteeld, met mate te consumeren (niet te vaak of te veel). Buiten dit gebied zijn de concentraties dermate laag dat de gewassen veilig kunnen worden gegeten, ook in combinatie met andere blootstellingsbronnen.

1 Inleiding

1.1 Achtergrond

1.1.1 Aanleiding

De Vrije Universiteit Amsterdam (VU) heeft in 2017 een verkennend onderzoek gedaan naar het gehalte van GenX en PFOA in gras en bladeren in de omgeving van het bedrijf DuPont/Chemours (Brandsma et al., 2017). De hoogste concentraties in bladeren en gras werden gevonden op 50 m afstand van het bedrijf (Brandsma et al., 2017). Vanaf 200 tot 3000 m varieerden de GenX concentraties van 1,0-12,8 ng/g en voor PFOA van 0,4-19,8 ng/g.

Naar aanleiding van dit onderzoek is onduidelijkheid ontstaan over de veiligheid van het eten van groenten en fruit uit (moes)tuinen in deze omgeving. Het RIVM kon op basis van de resultaten van de VU geen uitspraak doen over de hoeveelheden GenX en PFOA aanwezig in of op eetbare gewassen. Daarom heeft de Gemeente Dordrecht, voor de samenwerkende overheden, het RIVM gevraagd om onderzoek uit te voeren in moestuinen in de buurt van de fabriek DuPont/Chemours.

1.1.2 Opdrachtgever

De opdrachtgever voor dit onderzoek is de Gemeente Dordrecht, voor de samenwerkende overheden (Sliedrecht, Papendrecht, Provincie Zuid-Holland en Rijk) bij monde van het college van B&W.

1.2 Onderzochte stoffen: GenX en PFOA

GenX is strikt genomen geen stof, maar een technologie die wordt gebruikt bij het produceren van fluorhoudende polymeren, zoals polytetrafluoretheen (PTFE; merknaam Teflon). Bij de GenX-technologie wordt de stof *2,3,3,3-tetrafluoro-2-(heptafluoropropoxy)-propaan* (FRD-903) gebruikt, dat na reactie met ammoniumhydroxide (ammonia) wordt omgezet in het ammoniumzout daarvan: *ammonium 2,3,3,3-tetrafluoro-2-(heptafluoropropoxy)-propanoaat* (FRD-902). Dit onderscheid tussen het zuur en het (ammonium)zout is voor de schadelijkheid (toxiciteit) minder relevant omdat de effecten in het lichaam bij beide stoffen worden veroorzaakt door het anion (*2,3,3,3-tetrafluoro-2-(heptafluoropropoxy)-propanoaat*). In dit rapport wordt met GenX dus het anion van FRD-902 of FRD-903 bedoeld.

PFOA is de afkorting voor perfluorooctaan zuur (van het Engelse *perfluorooctanoic acid*) en is ook een hulpstof in de bereiding van teflon. Vanwege de aanwezigheid van acht koolstofatomen wordt ook wel de minder specifieke afkorting C8 gebruikt.

1.3 Doel en vraagstelling van het onderzoek

Doel

Het doel van dit onderzoek is om te achterhalen of mensen de groenten uit een moestuin in de buurt van DuPont/Chemours veilig kunnen eten voor wat betreft de GenX en PFOA concentraties in de groenten.

Vraagstellingen

Voor het moestuinonderzoek naar GenX en PFOA zijn twee vraagstellingen geformuleerd:

1. Wat zijn de concentraties GenX en PFOA in geselecteerde gewassen uit moestuinen in de buurt van DuPont/Chemours?
2. Wordt de toelaatbare dagelijkse inname via voedsel van GenX en PFOA overschreden door consumptie van moestuingewassen bij een gebruikelijk consumptiepatroon? (Gevonden concentraties GenX en PFOA in gewassen worden vergeleken met de gezondheidsnormen voor levenslange inname via voedsel).

1.4 Studieopzet

1.4.1 Fasering van het onderzoek

Verschillende variabelen zijn mogelijk van invloed op de gehalten GenX en PFOA in groenten: type groente, locatie ten opzichte van de fabriek (afstand, windrichting), GenX en PFOA concentratie in bodem en GenX en PFOA concentratie in water gebruikt voor besproeiing. Deze variabelen worden gefaseerd meegenomen in het onderzoek. In de eerste fase worden de GenX en PFOA concentraties bepaald in geselecteerde gewassen uit verschillende moestuinen. Met behulp van de gevonden concentraties GenX en PFOA wordt de dagelijkse inname via voedsel bepaald en vergeleken met de toelaatbare dagelijkse inname van GenX en PFOA. In de tweede fase worden bodem- en watermonsters geanalyseerd als uit het gewasonderzoek blijkt dat de concentraties GenX en PFOA dusdanig verhoogd zijn dat aanvullende analyses in bodem en water nodig zijn om de herkomst (via bodem of via water) te onderzoeken. De resultaten van de eerste fase van het onderzoek (het gewasonderzoek) worden in dit rapport beschreven.

1.4.2 Beoogde studieopzet eerste fase

Het voorgestelde onderzoek heeft een ingeperkte opzet (ingeperkt in aantal locaties, te onderzoeken gewassen en tijdinterval). In overleg met de gemeenten wordt een aantal locaties geselecteerd met een verschillende afstand en windrichting van de DuPont/Chemours fabriek. Door de keuze van de monsterlocaties ontstaat een indicatief beeld voor (moes)tuinen in het gebied Dordrecht, Sliedrecht en Papendrecht. Er wordt een referentielocatie opgenomen in het onderzoek.

Van de groentegewassen wordt een selectie gemaakt van gewassen die een relatief groot aandeel vormen in het moestuinmenu (een bladgroente, een knolgroente en een vruchtgroente per locatie). Fruitgewassen (zowel uit de moestuin als in het 'wild' bijvoorbeeld bramen) worden niet (overal) meegenomen in de analyses, omdat de fruitconsumptie naar verwachting een geringer aandeel vormt van de consumptie van moestuingewassen. Bij de voorziene aanvang van bemonstering (eind augustus) is het oogstseizoen voor een groot deel voorbij; bemonstering van vroege gewassen is niet meer mogelijk.

Indien mogelijk wordt op elke geselecteerde locatie van elke categorie groente (blad-, knol- en vruchtgroente) één representatieve groente genomen. Als voorbeeld: voor de categorie vruchtgroenten worden courgettes, komkommers of tomaten genomen. Van elke representatieve groente worden, indien aanwezig, vijf planten (of meer)

bemonsterd. In het analyselaboratorium zal hier een mengmonster van worden gemaakt (dus vijf planten van één representatieve groente vormen één monster). Indien voldoende planten per groente voorhanden zijn, zullen deze voorafgaand aan het mengen worden gesplitst in een behandeld (wassen of schillen) en een onbehandeld deelmonster.

Op één van de bovengenoemde locaties, met mogelijk de hoogste belasting door de fabriek, worden per categorie groente twee representatieve groenten en twee fruitgewassen bemonsterd. Dit gebeurt om enig inzicht te krijgen in de variatie binnen een categorie groente.

1.5 Uitvoering

Eind augustus 2017 zijn in de omgeving van de fabriek van Dupont/Chemours monsters van groenten genomen op 10 locaties. Het betrof drie locaties in Dordrecht, drie in Papendrecht en vier in Sliedrecht. De locaties zijn aangewezen door de betreffende gemeenten. Daarnaast is een referentielocatie in Bilthoven bemonsterd.

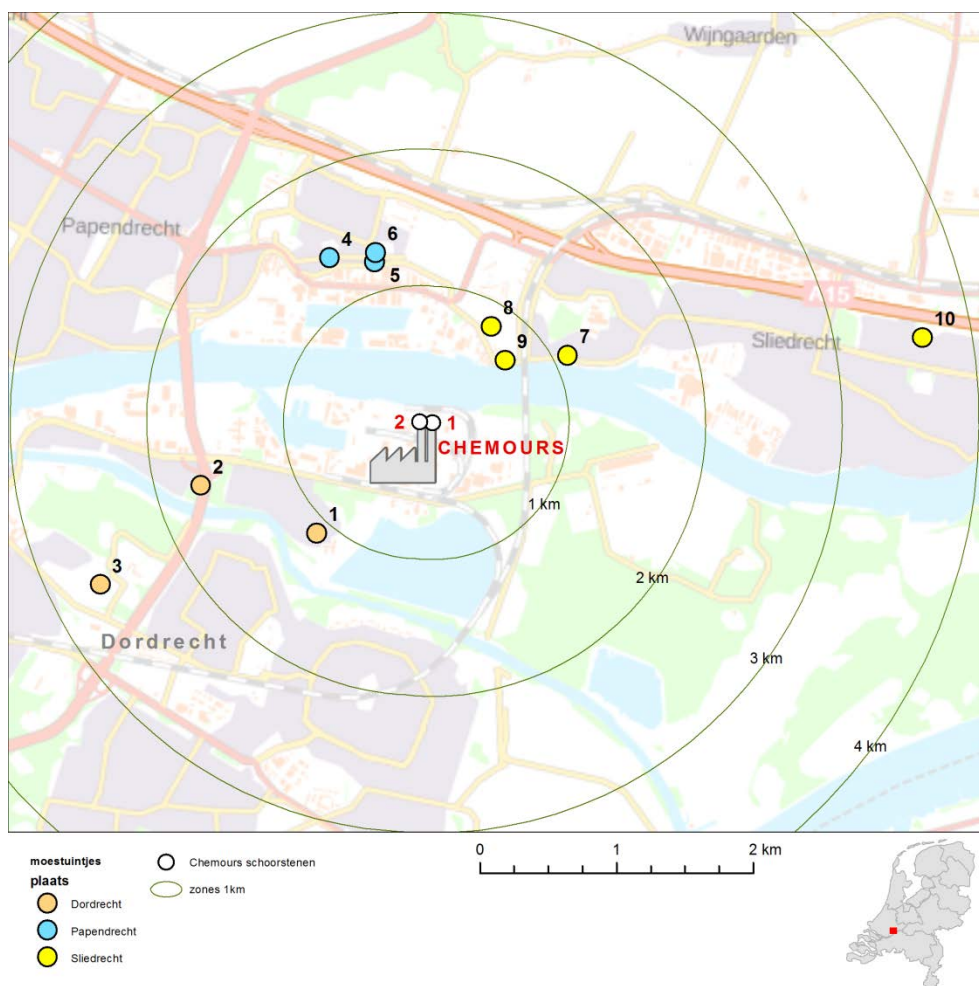
Het bleek mogelijk om op alle locaties van de drie geselecteerde categorieën groenten (blad-, knol- en vruchtgroenten) monsters te nemen. Op één van de locaties zijn meer gewassen bemonsterd, namelijk zes groenten (twee per categorie) en twee fruitgewassen (appel en peer). Bovendien bleek het mogelijk om van bijna elke groente meerdere planten te nemen en te splitsen in een onbehandeld en behandeld deelmonster. Alleen het enige monster pompoen is niet opgesplitst. Om verwarring te voorkomen worden deze gesplitste deelmonsters verderop in het rapport steeds 'monster' genoemd.

Op deze manier zijn van 11 locaties (inclusief de referentielocatie) 81 monsters verkregen en geanalyseerd door het onderzoeksinstituut RIKILT van Wageningen University & Research (WUR) op de aanwezigheid van GenX en PFOA.

De locaties rondom de fabriek van Dupont/Chemours zijn in Figuur 1 genummerd als 1 t/m 10 en, om privacyredenen, niet nader omschreven.

1.6 Indeling van het rapport

Volgend op dit inleidend hoofdstuk wordt in hoofdstuk 2 de methodiek van de risicobeoordeling beschreven. In hoofdstuk 3 worden de resultaten beschreven en in hoofdstuk 4 is een discussie aangeleverd en worden de conclusies getrokken.



Figuur 1. Weergave van de 10 locaties van moestuinen rondom de fabriek van DuPont/Chemours waar in augustus 2017 monsters van gewassen zijn genomen.

2 Methodiek van de risicobeoordeling

2.1 Inleiding

Voor het uitvoeren van een risicobeoordeling van GenX en PFOA aanwezig in groente en fruit in moestuinen is de inname van deze stoffen afgezet tegen de toelaatbare dagelijkse inname (TDI) van GenX en PFOA. Voor de berekening van inname zijn de gemeten concentraties in de bemonsterde moestuingewassen gecombineerd met consumptiehoeveelheden van groenten en fruit afkomstig uit twee voedselconsumptiepeilingen die in Nederland zijn uitgevoerd. Waar mogelijk zijn de onzekerheden in de gebruikte gegevens gekwantificeerd meegenomen bij de interpretatie van de resultaten.

2.2 Concentraties

De monsters zijn geanalyseerd volgens de methode beschreven in RIKILT SOP-A-1114. Tijdens de monsteropwerking werden de interne standaarden (13C-PFOA en 13C-GenX) toegevoegd aan de monsters alvorens er een extractie en solid-phase extraction (WAX-SPE) clean-up plaats vond. De monsterextracten zijn vervolgens geanalyseerd m.b.v. LC-MSMS (LC - Shimadzu Nexera X2 LC-30AD UHPLC; MS - AB Sciex Qtrap 5500 triple quadrupole mass).

In Tabel 1 zijn de detectielimiet (LOD) en kwantificeringslimiet (LOQ) gegeven voor de analyse van GenX en PFOA in de onderzochte groenten en fruit.

Tabel 1. Detectielimiet (LOD) en kwantificeringslimiet (LOQ) voor GenX en PFOA in de onderzochte gewassen (in ng/g nat gewicht).

Stof	Gewas	LOD	LOQ
GenX	Alle	0,5	1,0
PFOA	Aardappelen	0,4	1,0
	Overig	0,1	

Drie types meetresultaten konden worden onderscheiden:

1. De concentratie lag boven de LOQ en daarom is de concentratie uitgedrukt in een getal,
2. De concentratie lag beneden de LOD en dan is dat monster aangeduid als kleiner dan de detectielimiet (<LOD),
3. De gemeten concentratie lag onder de LOQ maar boven de LOD en dit monster is aangegeven met een plus (+).

Per monster zijn twee metingen verricht, zgn. duplometingen. Wanneer de concentratie in beide metingen boven de LOQ lag is een gemiddelde concentratie berekend (zie paragraaf 2.5.2).

2.3 Statistische analyse

Op basis van de chemische analyses van de groente bemonsterd op alle locaties (inclusief referentie) is een statistische analyse uitgevoerd op de data. Vanwege het zeer beperkte aantal monsters fruit (genomen op één locatie) zijn de meetresultaten van het fruit niet meegenomen in de statistische analyse.

Aan de hand van een statistische analyse is getracht op de volgende vragen een antwoord te krijgen:

1. Zijn er clusters te ontdekken in de moestuinlocaties op basis van de aangeleverde gegevens over het gehalte van GenX of PFOA in de diverse groentenmonsters?
2. Is er een verschil in de hoogte van het gehalte van GenX of PFOA tussen gewassen en ongewassen producten?
3. Is er een verschil in de hoogte van het gehalte van GenX of PFOA tussen de verschillende groentensoorten?

2.4 Voedselconsumpties

Voor de berekening van de inname van GenX en PFOA via moestuingewassen zijn de consumptiegegevens gebruikt van twee Nederlandse voedselconsumptiepeilingen (VCP's): de peiling onder kinderen van 2 t/m 6 jaar (Ocké et al., 2008) en de peiling onder personen van 7 t/m 69 jaar (Van Rossum et al., 2011). In deze peilingen hebben individuen op twee dagen aangegeven wat zij hebben geconsumeerd en gedronken, inclusief de geconsumeerde en gedronken hoeveelheden.

2.5 Inname van GenX en PFOA

2.5.1 *Koppeling gemeten concentraties aan geconsumeerde producten*

Voor de berekening van de inname van GenX en PFOA op basis van de gemeten concentraties in moestuingewassen is een koppeling gemaakt met de geconsumeerde producten afkomstig uit de beide VCP's. De groenten die zijn gemeten zijn hiervoor ingedeeld in drie categorieën: blad-, knol- en vruchtgroenten. Het gemeten fruit betrof appels en peren en deze zijn ingedeeld in de categorie pitvruchten. Het is bekend dat er nog meer groenten in de desbetreffende moestuinen worden geteeld die echter niet aanwezig waren tijdens de bemonstering. Daarom zijn er nog twee extra groentencategorieën toegevoegd: kool- en peulgroenten. Voor de inname via fruit zijn alleen de consumpties van appel en peer meegenomen in de analyse.

Voor de indeling van de geconsumeerde groenten in de verschillende categorieën, zie Bijlage 1.

2.5.2 *Gebruikte concentraties*

Het aantal bemonsterde gewassen per categorie was beperkt (n=3 voor diverse groentencategorieën en n=2 voor fruit). Voor de berekening van de inname is daarom uitgegaan van een minimaal en maximaal scenario. In het minimaal scenario is de laagst gemeten concentratie per gewas of categorie gebruikt voor de innameberekening en in het maximale scenario het hoogst gemeten gehalte per gewas of gewascategorie.

Zoals beschreven in paragraaf 2.2 zijn de gemeten concentraties van GenX en PFOA in de moestuingewassen niet alleen gerapporteerd als een positieve concentratie (boven de LOQ), maar ook als een waarde tussen de LOQ en LOD (+), of als een waarde onder de LOD. Per

Tabel 2. Toekenning GenX en PFOA concentraties per duplometing

Resultaat van de duplometing	Minimale concentratie	Maximale concentratie
$2 \times < \text{LOD}$	$\frac{1}{2} \times \text{LOD}$	LOD
$1 \times < \text{LOD}$ en $1 \times < \text{LOQ}^1$	LOD	LOQ
$2 \times < \text{LOQ}$	LOD	LOQ
$1 \times < \text{LOQ}$ en getal ($= 1 \times > \text{LOQ}$)	LOQ	Getal
$2 \times \text{getal}$ ($= 2 \times > \text{LOQ}$)	Geometrisch gemiddelde ²	

LOD = detectielimiet; LOQ = kwantificeringslimiet

¹ $< \text{LOQ}$ = waarde tussen LOD en LOQ

² Berekende concentratie verschilt niet tussen het minimale en maximale scenario

gemeten monster is een duplometing uitgevoerd. Zie Tabel 2 voor de toekenning van een minimale en maximale concentratie per duplometing. In het geval van twee positieve concentraties (boven de LOQ) is het geometrisch gemiddelde berekend.

Na toekenning van de concentraties aan de gemeten duplo's is per gewas, ongeacht bereiding, of per categorie de minimale en maximale concentratie geselecteerd en gekoppeld aan de relevante consumptiehoeveelheden voor de berekening van de inname volgens een minimaal en maximaal scenario.

2.5.3 Gebruikte model voor berekening inname

GenX en PFOA kunnen bij langdurige blootstelling nadelig zijn voor de gezondheid. Voor de berekening van deze langdurige inname is het Observed Individual Mean (OIM) model, zoals geïmplementeerd in het Monte Carlo Risk Assessment (MCRA) software versie 8.2 (De Boer et al., 2016), gebruikt.

Met dit model zijn de geconsumeerde hoeveelheden van producten door individuen per dag vermenigvuldigd met de gemeten GenX en PFOA concentratie per product. De inname per product is vervolgens per persoon gesommeerd over de producten heen, resulterend in de inname per persoon per dag. Deze inname is vervolgens gedeeld door het lichaamsgewicht (lg) van het betreffende individu. Omdat de inname over een langere periode van belang is, is vervolgens per persoon de gemiddelde inname berekend over de twee dagen aanwezig in de VCP's (paragraaf 2.4). Dit resulteerde in een verdeling van individuele gemiddelde dagelijkse innamen. De inname is vervolgens gekwantificeerd als de gemiddelde, mediane (50^e percentiel; P50) en hoge (95^{ste} percentiel; P95) inname voor de hele Nederlandse populatie van 2 t/m 69 jaar.

Deze berekening is uitgevoerd voor GenX en PFOA met zowel de minimale als maximale concentraties per gewas of categorie (paragraaf 2.5.2).

2.6 Toxiciteit van GenX en PFOA

2.6.1 Algemeen

Voor de risicobeoordeling is de berekende inname afgezet tegen de toelaatbare dagelijkse inname (TDI) voor GenX en PFOA zoals deze zijn afgeleid door het RIVM (Janssen, 2017; Zeilmaker et al., 2016). De TDI's voor GenX en PFOA zijn respectievelijk 21,0 en 12,5 ng/kg lg/dag.

In twee RIVM rapporten is aangegeven dat in het (recente) verleden verschillende gerenommeerde, internationale instanties verschillende gezondheidkundige grenswaarden voor PFOA hebben afgeleid (Zeilmaker et al., 2016; Oomen & Herremans, 2017). Naar verwachting zal de Europese Autoriteit voor Voedselveiligheid (EFSA) in 2018 een (nieuwe) wetenschappelijke opinie uitbrengen over de risicobeoordeling van PFOA in voedsel.

In de paragrafen 2.6.2 en 2.6.3 zal kort worden beschreven op welke grondslagen het RIVM de TDI's voor GenX en PFOA heeft afgeleid.

2.6.2 GenX

In het rapport van Beekman et al. (2016) is een limietwaarde voor de inhalatie van FRD-903 voor de algemene populatie afgeleid. Aangezien alle beschikbare toxiciteitsstudies zijn uitgevoerd met het ammoniumzout (FRD-902) en niet met het zuur (FRD-903), is de limietwaarde van FRD-903 gebaseerd op de gegevens van FRD-902. Het is gerechtvaardigd om de gegevens van FRD-902 te gebruiken voor FRD-903, omdat de effecten in het lichaam bij beide stoffen veroorzaakt worden door het anion (zie paragraaf 1.2).

Deze limietwaarde voor inhalatie is gebaseerd op de dosering waarbij geen negatieve gezondheidseffecten zijn waargenomen in het proefdier, een zogenoemde No Observed Adverse Effect Level (NOAEL) van 0,1 mg/kg lg/dag. Deze NOAEL is afkomstig van een orale, chronische rattenstudie met de stof FRD-902 en is gebaseerd op een immunotoxisch effect (effect op albumine/globuline ratio). Op basis van deze NOAEL in ratten en enkele onzekerheidsfactoren is voor GenX een voorlopige TDI afgeleid van 21 ng/kg lg/dag. De TDI is als 'voorlopig' gekwalificeerd vanwege de onzekerheid over kinetiek van GenX in de mens. Voor details over de afleiding van deze TDI, zie Bijlage 2.

2.6.3 PFOA

Het RIVM heeft in 2016 voor PFOA een gezondheidkundige grenswaarde afgeleid waarbij rekening is gehouden met het ophopen van deze stof in het menselijk lichaam bij langdurige blootstelling (Zeilmaker et al., 2016). Uit studies met proefdieren is gebleken dat levertoxiciteit het gevoeligste effect van PFOA is. Op basis van een zogenoemde NOAEL in ratten en enkele onzekerheidsfactoren is voor PFOA een TDI afgeleid van 12,5 ng/kg lg/dag (Zeilmaker et al., 2016).

In het rapport van Oomen en Herremans is een overzicht gegeven van een aantal gezondheidkundige grenswaarden voor de langdurige blootstelling aan PFOA (Oomen & Herremans, 2017). Deze waarden variëren van 2 tot 1500 ng/kg lg/dag. De hoogste waarde is afkomstig uit een EFSA opinie van 2008 en naar verwachting zal deze, vanwege voortschrijdend wetenschappelijk inzicht, naar beneden worden bijgesteld. De laagste waarde is afkomstig van het New Jersey Drinking Water Quality Institute (NJDWQI) (NJDWQI, 2016).

2.7 Risicobeoordeling

2.7.1 Algemeen

Zowel bij de innameberekening als de risicobeoordeling wordt uitgegaan van een dagelijkse consumptie van moestuingewassen gedurende het gehele leven, een zogenoemde chronische inname van zowel GenX als PFOA. Voor de risicobeoordeling is het daarbij gebruikelijk om de inname af te zetten tegen de TDI. Een kanttekening daarbij is dat de gehanteerde gehalten in groenten en fruit in de tijd zullen variëren. Deze variaties kunnen afhankelijk zijn van algemene factoren zoals weersinvloeden en seizoensvariatie maar ook van stofspecifieke factoren zoals in dit geval het feit dat het gebruik van PFOA in de fabriek van DuPont/Chemours in 2012 is gestopt en het gebruik van GenX in 2012 is gestart. Het is dus goed om te beseffen dat de bepaalde gewas/productconcentraties, en daarmee de berekende innames, een momentopname zijn.

2.7.2 Vergelijking blootstelling met de TDI

In eerste instantie is de berekende blootstelling van GenX en PFOA (conservatieve waarde) vergeleken met de TDI. Voor GenX is hierbij de TDI van 21,0 ng/kg lg/dag gehanteerd en voor PFOA de TDI 12,5 ng/kg lg/dag. Dit is de gebruikelijke methode.

Een kanttekening bij het gebruik van de door het RIVM afgeleide TDI voor PFOA is, zoals aangegeven in paragraaf 2.6.1, dat EFSA in de nabije toekomst wellicht een andere TDI zal afleiden. De kanttekening bij de TDI van GenX, eveneens afgeleid door het RIVM, is de (grote) onzekerheid over kinetiek van GenX in de mens (paragraaf 2.6.2).

2.7.3 Verfijning van de risicobeoordeling met APROBA-Plus

De risicobeoordeling waarbij de inname wordt vergeleken met de TDI is verfijnd met de APROBA-Plus methode. Met deze methode worden de onzekerheden in de inname (blootstelling) en toxiciteit op kwantitatieve wijze expliciet geëvalueerd (Bokkers et al., 2017). Deze methode is een uitbreiding van een door de Wereldgezondheidsorganisatie (WHO) ontwikkelde methodologie (WHO-IPCS, 2014) en resulteert in een beter inzicht in risico's van blootstelling aan stoffen. De APROBA-Plus methode is in dit onderzoek ook gebruikt om inzicht te krijgen in de bijdrage van de diverse bronnen van onzekerheid aan de totale onzekerheid in de risicobeoordelingen van PFOA en GenX.

Hieronder wordt kort beschreven welke onzekerheden voor de inname en de toxiciteit gekwantificeerd zijn in de APROBA-Plus methode. Het gaat hier om dezelfde bronnen van onzekerheid waar ook in de gebruikelijke methode (zie paragraaf 2.7.1) rekening gehouden wordt (maar minder transparant en volledig).

Inname

Zoals in paragraaf 2.5.1 besproken, worden voor de innameberekening de gehalten van GenX en PFOA in gewassen gekoppeld aan de geconsumeerde hoeveelheden van deze gewassen op basis van consumptiegegevens van de algemene Nederlandse bevolking. De onzekerheden in de innameberekening zijn dus met name gerelateerd aan de onzekerheid in de concentraties (inclusief de concentraties in de

niet-gemeten gewassen), de onzekerheid in de toepasbaarheid van de consumptiehoeveelheden van groenten en fruit voor moestuingebruikers en de koppeling tussen de gemeten en geconsumeerde producten. De onzekerheden in de gemeten concentraties zijn gekwantificeerd door het gebruik van een minimaal en maximaal scenario en zo meegenomen in de APROBA-Plus methode. De andere bronnen van onzekerheid kunnen alleen kwalitatief worden ingeschat en zijn niet meegenomen in de APROBA-Plus methode.

Toxiciteit

In de APROBA-Plus methode zijn de onzekerheden in de afleiding van de TDI van GenX en PFOA gekwantificeerd. Dit betreft vooral de onzekerheden betreffende de gebruikte NOAEL en de gebruikte extrapolatiestappen naar de humane doelpopulatie (zoals verschillen in kinetiek en dynamiek binnen een soort (intraspecies) en tussen soorten (interspecies)).

3 Resultaten

3.1 Gemeten concentraties GenX en PFOA in groente en fruit

In Bijlage 3 zijn de resultaten van de chemische analyses van GenX en PFOA in groenten en appel en peer van de diverse locaties weergegeven. Bij de auteurs was alleen bekend dat de referentielocatie de locatie betrof met code G4LOC1 (zie ook paragraaf 3.3). Tabel 3 geeft een overzicht van het totaal aantal geanalyseerde monsters en het aantal monsters met een gehalte onder de LOD, tussen de LOD en LOQ en hoger dan de LOQ voor de referentielocatie en de locaties rond de fabriek van DuPont/Chemours.

Tabel 3. Aantal geanalyseerde monsters voor de referentielocatie en de locaties rond de fabriek van DuPont/Chemours en het aantal monsters met een geanalyseerd gehalte onder de detectielimiet (LOD), tussen de LOD en de kwantificeringslimiet (LOQ) en boven de LOQ¹

Locatie	Aantal monsters			
	Totaal	< LOD ²	Tussen LOD en LOQ ³	≥ LOQ ⁴
Referentie	7	GenX: 7 PFOA: 7	GenX: 0 PFOA: 0	GenX: 0 PFOA: 0
Rond fabriek	74	GenX: 45 PFOA: 44	GenX: 19 PFOA: 27	GenX: 10 PFOA: 3

¹ Voor de concentraties behorend bij de LOD en LOQ, zie Tabel 1.

² Duplometingen waren beiden < LOD

³ Duplometingen waren beide < LOQ, waarbij mogelijk één lager dan LOD

⁴ Tenminste één van de duplometingen had een gehalte > LOQ

Op basis van de resultaten kunnen de volgende conclusies worden getrokken:

1. Alleen op de referentielocatie is op geen van de geanalyseerde gewassen GenX en/of PFOA gedetecteerd (Tabel 3). Op alle andere locaties is GenX en/of PFOA aangetoond.
2. In ongeveer 60% van de 74 monsters genomen op de locaties rond de fabriek van DuPont/Chemours is geen GenX en geen PFOA gedetecteerd (Tabel 3).
3. In 14% van de monsters genomen op de locaties rond de fabriek van DuPont/Chemours kon GenX worden gekwantificeerd. In 4% van deze monsters kon PFOA worden gekwantificeerd.
4. In vijf gewassen (andijvie, bieten, selderij, sla, en tomaten) is GenX gekwantificeerd en in één gewas (bieten) is PFOA gekwantificeerd.
5. De hoogste GenX concentratie was 5,9 ng/g in ongewassen sla, en de hoogste PFOA concentratie was 2,8 ng/g in ongewassen en ongeschilde biet. Vanwege de duplometing was het hoogste gemiddelde voor GenX 5,4 ng/g in ongewassen sla en voor PFOA 2,5 ng/g in ongewassen en ongeschilde biet.
6. Op alle locaties waar GenX en PFOA is gedetecteerd waren ook gewassen waarin geen GenX en PFOA is gedetecteerd.
7. Op vier van de 10 locaties rond de fabriek van DuPont/Chemours is geen GenX gedetecteerd en op twee van de 10 locaties geen PFOA.

3.2 Statistische analyse

De resultaten van de statistische analyse worden beschreven aan de hand van de vragen zoals gesteld in paragraaf 2.3. In Bijlage 4 is de gedetailleerde statistische analyse opgenomen.

3.2.1 *Clusters van moestuinlocaties*

Uit de statistische analyse bleek dat op basis van de concentraties in de groenten voor zowel GenX als PFOA twee verschillende clusters (groepen) van moestuinlocaties geïdentificeerd konden worden. Voor GenX waren de locaties G3LOC2 en G3LOC4 niet significant verschillend. Als cluster van twee locaties waren ze echter wel verschillend van de andere locaties. Voor PFOA vormden de locaties G2LOC1, G2LOC3, G3LOC2 en G3LOC4 één cluster. De concentraties PFOA in de groenten uit deze tuinen waren significant hoger dan de concentraties in de andere tuinen.

3.2.2 *Invloed van wassen op de concentraties van GenX of PFOA*

Voor de groentenmonsters die GenX bevatten was er voldoende bewijs dat het wassen van een groente tot een lagere concentratie van GenX in groente leidde. Bij het analyseren van de invloed van wassen op de monsters die PFOA bevatten, maakte het uit hoe omgegaan werd met de zogenoemde “+” waarnemingen (paragraaf 2.2). Wanneer aan deze waarnemingen een gehalte werd toegekend van 0,5 ng/gram (= ½ LOQ) dan was er een verschil tussen gewassen en ongewassen groente. Wanneer aan deze positieve waarnemingen een gehalte werd toegekend van 1,0 ng/gram (= LOQ) dan zou het gevonden verschil tussen gewassen en ongewassen groente ook door toeval kunnen komen.

3.2.3 *Verschillen in concentraties van GenX of PFOA tussen categorieën groenten*

Zowel voor GenX als PFOA was er een significant verschil in concentraties tussen de verschillende categorieën. M.a.w. de concentraties van GenX of PFOA in de drie onderzochte categorieën (blad-, knol- en vruchtgroenten) waren significant verschillend.

3.2.4 *Gevolgen van de statistische analyse voor de innameberekening*

De resultaten van de statistische analyse hebben de volgende consequenties voor de innameberekening:

- Voor zowel GenX als PFOA behoorde G3LOC4 bij een cluster dat zich onderscheidde van de rest. Aangezien voor beide stoffen (GenX en PFOA) gold dat op G3LOC4 de hoogste concentraties waren aangetroffen, zijn deze concentraties als ‘worst case’ situatie gebruikt om de inname van GenX en PFOA te berekenen.
- De invloed van het wassen van de onderzochte monsters was niet eenduidig voor GenX en PFOA. Voor de innameberekening is daarom een mogelijk onderscheid (voor GenX wel en voor PFOA niet) in gewassen/ongewassen groente niet meegenomen.
- De gehalten van GenX of PFOA in de drie onderzochte categorieën groenten zijn verschillend en dat onderscheid wordt ook meegenomen in de innameberekening.

3.3 Koppeling tussen code en nummering locatie

Om de onafhankelijkheid van het onderzoek te waarborgen was de koppeling tussen de code (zie Bijlage 3) en de nummering van de Tabel 4. Nummering, codering en positie van de locaties waar monsters van gewassen zijn genomen.

Nummer	Codering	Plaats	Positie tov de fabriek ¹	Afstand (km)
1	G1LOC1	Dordrecht	ZW	1-2
2	G1LOC2	Dordrecht	ZW	1-2
3	G1LOC3	Dordrecht	ZW	2-3
4	G2LOC1	Papendrecht	NW	1-2
5	G2LOC2	Papendrecht	NW	1-2
6	G2LOC3	Papendrecht	NW	1-2
7	G3LOC1	Sliedrecht	NO	1-2
8	G3LOC4	Sliedrecht	NO	< 1
9	G3LOC2	Sliedrecht	NO	< 1
10	G3LOC3	Sliedrecht	O	3-4
11	G4LOC1	Bilthoven	n.v.t.	> 50

¹ O: oost; NO: noord-oost; NW: noord-west; ZW: zuid-west

locaties in de buurt van DuPont/Chemours (Figuur 1) bij de auteurs niet bekend. Alleen de code van de referentielocatie was bekend. Op verzoek van de opdrachtgever is, na aanlevering van de concept versie van het rapport, bovenstaande koppeling bekend gemaakt. In Tabel 4 is de koppeling tussen code en nummering van de locatie weergegeven.

3.4 Inname van GenX en PFOA

3.4.1

Concentraties

Omdat de gemeten gehalten verschilden voor de drie onderzochte categorieën, is de inname berekend met de (gemiddelde van twee metingen) concentraties van GenX en PFOA per gemeten categorie. De concentraties voor een gemeten representant van een categorie (bijvoorbeeld andijvie of sla voor bladgroenten) zijn direct gekoppeld aan de consumptie ervan. Voor de overige producten binnen een categorie (Bijlage 1) is een waarde toegekend op basis van de gehalten van deze representanten. Voor twee categorieën, kool- en peulgroenten, waren geen representanten gemeten. Groenten die tot deze categorieën behoren zijn gekoppeld aan de minimale en maximale gemeten gehalten over alle representanten heen, ongeacht de categorie waar toe ze behoren. Tabel 5 geeft een overzicht van de gebruikte GenX en PFOA gehalten in de berekening voor beide scenario's op basis van de gemeten concentraties in G3LOC4. Deze concentraties zijn afgeleid van de gemeten concentraties (Bijlage 3) zoals beschreven in paragraaf 2.5.2.

Het effect van bereiding is niet meegenomen (paragraaf 3.2.4). Er is echter een uitzondering gemaakt voor aardappel. De consumptie van deze knolgroente is gerapporteerd in de VCP's als gekookte aardappel zonder schil ("aardappel z schil gekookt"). De consumptie van aardappel is daarom gekoppeld aan een minimale en maximale GenX en PFOA gehalte voor geschilde wortel en biet, de beide representanten voor knolgroenten (Tabel 5).

Tabel 5. Minimale en maximale concentraties van GenX en PFOA zoals gebruikt in de innameberekening

Categorie	Gewas ¹	Concentratie (mg/kg)			
		GenX		PFOA	
		Minimaal	Maximaal	Minimaal	Maximaal
Bladgroenten	Andijvie	0,5	1	0,05	1
	Sla	1,76	5,38	0,05	1
	Overige bladgroenten	0,5	5,38	0,05	1
Knolgroenten	Biet	0,5	2,46	1,44	2,48
	Wortel	0,25	1	0,1	1
	Aardappel, geschild ²	0,25	1	0,1	1,71
	Overige knolgroenten	0,25	2,46	0,1	2,48
Vruchtgroenten	Paprika	0,25	0,5	0,05	0,1
	Tomaat	2,86	3,32	0,1	1
	Overige vruchtgroenten	0,25	3,32	0,05	1
Pitvruchten	Appel	0,5	1	0,05	0,1
	Peer	0,25	1	0,05	0,1
Koolgroenten	Alle	0,25	5,38	0,05	2,48
Peulgroenten	Alle	0,25	5,38	0,05	2,48

¹ Voor de gewassen behorend bij 'overige' en 'alle', zie Bijlage 1

² Consumptie van aardappelen is gekoppeld aan de concentraties van GenX en PFOA gemeten in geschilde biet en wortel

3.4.2

Voedselconsumpties

Voor de voedselconsumptiegegevens is gebruik gemaakt van gegevens uit twee VCP's (paragraaf 2.4). Voor een aantal groenten en fruit die substantieel bijdragen aan de inname van GenX en PFOA (paragraaf 3.4.3) zijn de gemiddelde consumptie, het percentage dagen binnen de VCP's waarop consumptie van het product is gerapporteerd en

Tabel 6. Gemiddelde consumptie per product, de liefhebbersportie en het percentage consumptiedagen waarop consumptie van het product is gerapporteerd

Product	Consumptie (g per dag)		Percentage consumptiedagen (%) ²
	Gemiddelde	Liefhebbersportie ¹	
Aardappel z schil gekookt	60	310	40
Appel z schil	90	150	16
Appel m schil	130	260	14
Bloemkool rauw / gekookt	130	240	4
Broccoli gekookt	110	240	3
Tomaat rauw	60	130	6
Sla krop rauw	40	100	3
Komkommer z schil rauw	60	140	6
Spinazie diepvries gekookt	100	240	2

¹ Liefhebbersportie is het 95^e percentiel van de consumptiehoeveelheid op de dagen waarop de consumptie van het voedingsmiddel is gerapporteerd

² Het gesommeerde aantal consumptiedagen in beide VCP's is 10196

de liefhebbersportie weergegeven in Tabel 6. De liefhebbersportie is berekend als het 95e percentiel van de consumptie van de dagen waarop consumptie van het betreffende product is gerapporteerd. De liefhebbersportie voor aardappel is 310 g (Tabel 6). Dit betekent dat wanneer respondenten in de VCP's hebben aangegeven dat ze aardappel hebben gegeten op een dag, 95% van deze respondenten maximaal 310 g heeft gegeten; 5% van de respondenten heeft de consumptie van een grotere hoeveelheid gerapporteerd.

Voor de berekening van de inname van GenX en PFOA zijn de gerapporteerde consumptiehoeveelheden per individu gebruikt (zie paragraaf 2.5.3 voor de methode). De inname is niet berekend op basis van de gemiddelde consumptie of liefhebbersporties zoals weergegeven in Tabel 6.

3.4.3 Innameberekeningen

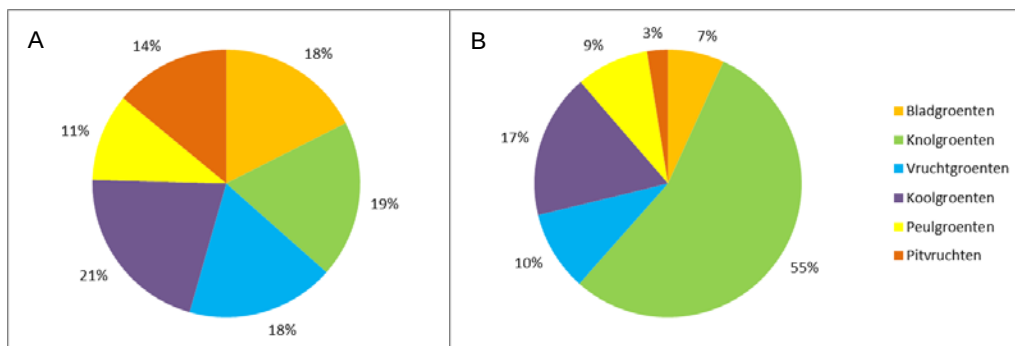
GenX

De gemiddelde en mediane inname aan GenX voor de populatie van 2 t/m 69 jaar varieerde tussen respectievelijk 1,8 en 7,6 ng/kg lg/dag en 1,2 en 5,6 ng/kg lg/dag op basis van de gemeten minimale en maximale concentraties op locatie G3LOC4 (Tabel 7). Voor personen met een hoge consumptie aan groente, appel en/of peer varieerde de inname aan GenX tussen 5,2 en 21 ng/kg lg/dag.

Tabel 7. Inname van GenX en PFOA per scenario in de populatie van 2 t/m 69 jaar

Inname	Inname (ng/kg lg/dag)			
	GenX		PFOA	
	Minimaal	Maximaal	Minimaal	Maximaal
Gemiddelde	1,8	7,6	0,3	4,3
P50	1,2	5,6	0,2	3,0
P95	5,2	21	0,8	12

In Figuur 2 zijn de bijdragen van de categorieën aan de totale innameverdeling van GenX weergegeven voor het maximale scenario. In dit scenario droegen koolgroenten het meest bij aan de inname met 21%, gevolgd door blad-, knol- en vruchtgroenten (18-19%). Peulgroenten met 11% droegen het minste bij aan de blootstelling.



Figuur 2. Bijdrage (%) van de verschillende categorieën groenten en fruit aan de totale innameverdeling van GenX (A) en PFOA (B) in de Nederlandse bevolking van 2 t/m 69 jaar.

Binnen de koolgroenten werd de grootste bijdrage geleverd door bloemkool (32%) en broccoli (25%). Deze bijdragen van koolgroenten werden gestuurd door de consumptiegegevens, omdat binnen de categorie koolgroenten dezelfde GenX concentratie is gebruikt voor alle geconsumeerde koolsoorten (Tabel 5). Voor peulgroenten werd dezelfde GenX concentratie gebruikt als voor koolgroenten (Tabel 5). Peulgroenten droegen echter minder bij aan de blootstelling door lagere consumptiehoeveelheden.

Het product dat het meeste bijdroeg aan de totale innameverdeling van GenX was aardappel (15%), gevolgd door appel (12%), sla en tomaten (elk 8%), komkommer en bloemkool (elk 7%), en broccoli en spinazie (5%). Overige producten droegen minder dan 5% bij aan de inname van GenX in het maximale scenario.

PFOA

Voor PFOA waren de innames lager dan voor GenX (Tabel 7) door lagere gemeten concentraties (Tabel 5). De gemiddelde, mediane en hoge (P95) inname varieerde respectievelijk tussen de 0,3 en 4,3, 0,2 en 3,0 en 0,8 en 12 ng/kg lg/dag.

Knolgewassen droegen het meeste bij aan de blootstelling aan PFOA in het maximale scenario: 55% (Figuur 2). Dit werd gevolgd door kool- en vruchtgroenten met een bijdrage van respectievelijk 17% en 10%. De bijdrage van knolgroenten aan de inname van PFOA in het maximale scenario werd vrijwel geheel (90%) bepaald door aardappel via een combinatie van een hoge consumptiefrequentie (Tabel 6) en een hoog PFOA gehalte (Tabel 5). Koolgroenten droegen bij, zoals bij GenX, via de consumptie van bloemkool en broccoli.

Het product aardappel droeg voor bijna 50% bij aan de totale innameverdeling van PFOA in het maximale scenario, gevolgd door sperziebonen (7%) en bloemkool (6%). Overige producten droegen minder dan 5% bij.

3.5 Onzekerheidsanalyse

3.5.1 Inname

De berekende innamen worden beïnvloed door onzekerheden in de concentratiegegevens van GenX en PFOA, de consumptiegegevens uit de VCP's en de koppeling tussen de gemeten en geconsumeerde producten. Ook het gebruikte model geeft een onzekerheid in de berekende innamen.

Concentraties

In dit onderzoek spelen verschillende onzekerheden een rol. De belangrijkste onzekerheid betrof de gemeten concentraties van GenX en PFOA. Als eerste hebben de concentratiemetingen te maken met een LOD en/of LOQ d.w.z. een grens in de meetmethode waaronder de concentratie niet meer gedetecteerd of gekwantificeerd kan worden. In het geval dat de concentratie lager is dan de LOQ maar groter dan de LOD is een concentratierange bekend. Wanneer de concentratie lager is dan de LOD is niet bekend hoeveel lager.

Daarnaast wordt de onzekerheid in de concentraties bepaald door het beperkte aantal monsters in combinatie met een hoog percentage monsters met een gehalte onder de LOQ en LOD en de spreiding in de gehalten per gewas(categorie). Om deze onzekerheid mee te nemen is een minimale en maximale concentratie berekend (Tabel 5), resulterend in twee innamescenario's. Deze geven de bandbreedte weer van de inname aan GenX en PFOA op basis van de gemeten concentraties. De inname van GenX verschilde voor de hoge (P95) inname een factor 4 tussen het minimale en maximale scenario, terwijl dit voor PFOA een factor 15 was. Vanwege het gebruik van maximale concentraties gecombineerd met de keuze voor de concentraties van de locatie met de hoogste concentraties (G3LOC4), kunnen de innamen berekend met de maximale concentraties als conservatief worden beschouwd op basis van de beschikbare gegevens.

GenX en PFOA kunnen nadelig zijn voor de gezondheid op de lange termijn. De metingen geven een beeld van de concentraties op het moment van monsternamen. Het gebruik van PFOA is in 2012 gestopt en die van GenX is in 2012 gestart. De concentraties van beide stoffen in gewassen hebben dus gevarieerd in het verleden en zullen ook in de toekomst veranderen. De berekende innames vormen dan ook een momentopname en kunnen slechts een beperkte indruk geven van de inname over een langere periode.

Consumptiegegevens

De onzekerheid betreffende de consumptiegegevens heeft vooral te maken met de representativiteit van de consumptiegegevens van groenten, appel en peer van de gemiddelde Nederlandse bevolking voor moestuinhouders. De consumptiegegevens zijn afkomstig van een representatieve steekproef van de Nederlandse populatie. Moestuinhouders consumeren echter mogelijk meer van de door hen geteelde groenten en fruit dan de gemiddelde Nederlandse populatie. Een studie uit 2007 laat zien dat de gemiddelde consumptie van zelfgeteelde aardappelen door moestuinhouders (en hun gezinnen) een factor 1,1 hoger ligt dan voor de gemiddelde Nederlander. Voor de overige groenten is dat een factor 1,2 voor baby's en niet-schoolgaande kinderen en een factor 1,7 voor schoolgaande kinderen en volwassenen (Swartjes et al., 2017). Deze factoren zijn gebaseerd op een voedingsstudie onder 154 huishoudingen met moestuinen uit 1988 en de Nederlandse Voedselconsumptiepeiling van 1997/1998. De factoren zijn daardoor waarschijnlijk niet meer accuraat, maar laten wel zien dat het zeer waarschijnlijk is dat moestuinhouders de door hen geteelde moestuingewassen in grotere hoeveelheden consumeren dan de gemiddelde Nederlander. Echter, door berekening van de hoge inname (P95) van GenX en PFOA is een hogere consumptie dan de gemiddelde consumptie van moestuingewassen meegenomen in deze studie.

Koppeling gemeten en geconsumeerde producten

Voor de berekening van de inname van GenX en PFOA is een koppeling gemaakt tussen de gemeten en geconsumeerde producten. Hiervoor zijn verschillende categorieën gedefinieerd omdat er meer geconsumeerde groenten waren dan geanalyseerd zijn. In deze koppeling is ervan uitgegaan dat de concentraties van GenX en PFOA in de gemeten gewastypen representatief was voor de gehalten in alle groenten

behorend tot zo'n categorie. De gemeten gehalten in biet en wortel zijn bijvoorbeeld ook toegekend aan de consumptie van aardappel, koolraap, doperwtjes met wortelen, peultjes met worteltjes, knolselderij en radijs (Bijlage 1). Deze keuze is gemaakt omdat ook andere groenten dan de groenten die zijn bemonsterd geteeld kunnen worden in een moestuin en om een onderschatting van de inname door deze onzekerheid te minimaliseren.

Voor twee groentencategorieën waren geen meetgegevens beschikbaar: kool- en peulvruchten. De consumptiehoeveelheden van groenten behorend tot deze categorieën, zoals bloemkool, broccoli en sperziebonen, zijn daarom gekoppeld aan een minimaal en maximaal gemeten concentratie van GenX en PFOA in alle geanalyseerde groenten. Dit betekende bijvoorbeeld voor het maximale scenario dat de consumptie van alle groenten behorend tot kool- en peulvruchten is gekoppeld aan het maximale GenX gehalte (aangetroffen in ongewassen sla) en het maximale PFOA gehalte (aangetroffen in ongewassen en ongeschilde biet) (Tabel 5).

Door de geanalyseerde gehalten van GenX en PFOA te koppelen aan alle gerapporteerde consumpties van groenten en van appel en peer in de VCP's is ervan uitgegaan dat moestuinhouders geen gekochte groenten, appels en peren consumeren die geen GenX en PFOA bevatten. Alsmede dat ze dit over een heel lange periode doen. De meeste moestuinhouders zullen echter ook commercieel geteelde producten consumeren, bijv. gedurende de winterperiode. Deze aanname kan dus hebben geresulteerd in een overschatting van de inname aan GenX en PFOA door moestuinhouders.

Effect van bereiding

In de innameberekeningen is het effect van wassen en schillen op de GenX en PFOA gehalten niet meegenomen, behalve voor aardappel (paragraaf 3.4.1). Voor de 10 groentenmonsters waarop GenX kon worden gekwantificeerd was er bewijs dat het wassen van een groente tot een lagere concentratie van GenX leidde (paragraaf 3.2). Dit gold niet voor PFOA, maar deze conclusie was gebaseerd op concentraties gemeten in één gewas, namelijk bieten. De concentraties in gewassen bieten lagen wel lager dan in ongewassen bieten. Door een mogelijk effect van wassen niet mee te nemen in de innameberekening kan de inname mogelijk iets zijn overschat. We schatten echter in dat het effect niet groot zal zijn geweest, omdat aardappel het meeste bijdroeg aan de blootstelling van beide stoffen (paragraaf 3.4.3). Voor aardappel is het effect van wassen meegenomen in de analyse.

Gebruikte model

Voor de berekening van de inname is het OIM model gebruikt (paragraaf 2.5.3). Met dit model wordt de gemiddelde inname over de beschikbare dagen in de VCP's, in ons geval twee, gebruikt als voorspeller van de lange termijn inname. In het verleden hebben berekeningen laten zien dat zo'n model de gemiddelde en mediane inname in een populatie goed kan voorspellen. Echter, deze modellen overschatten de inname in de rechterstaart van de verdeling, zoals de P95, doordat het aantal dagen waarop mensen hun voedselconsumptie rapporteren daarvoor te beperkt is (Boon & van der Voet, 2015). Er zijn

modellen beschikbaar om de inname op de lange termijn op basis van bijv. maar twee dagen beter in te schatten. Zo'n model is hier echter niet gebruikt gezien de beperkte concentratiedataset.

Samenvattend

Verschillende bronnen van onzekerheid kunnen op zich hebben geleid tot een onder- of overschatting van de inname van GenX en PFOA door moestuinhouders. Alles overwegend schatten we in dat de berekende inname op basis van het maximale scenario een conservatieve schatting geeft van de werkelijke inname van GenX en PFOA door moestuinhouders woonachtig in de buurt van DuPont/Chemours. Het minimale scenario onderschat mogelijk de inname.

3.5.2 Toxiciteit

De onderliggende aspecten die gebruikt zijn bij het afleiden van de TDI's voor GenX en PFOA kennen elk hun eigen onzekerheden. Zowel voor GenX als voor PFOA zijn voor deze aspecten de standaard onzekerheidsverdelingen gebruikt zoals gepubliceerd door WHO-IPCS (2014), behalve voor de schaling van de dosis van proefdier naar mens. Voor PFOA is berekend dat de vertaling van de dosering van proefdier (rat) naar mens ongeveer een factor 60 is, vanwege de accumulatie-tijd die bij de mens langer is, met een onzekerheidsfactor van 2 (onzekerheidsrange 30-120; zie Bijlage 5A, Tabel 5A.2). Voor GenX is deze onzekerheid groter (onzekerheidsrange 15-240; zie Bijlage 5B, Tabel 5B.2). In beide gevallen vervangt deze factor de standaard allometrische factor voor schaling van de verschillen in kinetiek.

De grootste bijdrage aan de onzekerheid in de toxiciteit van GenX werd geleverd door verschillen in kinetiek tussen proefdier en mens ($25+16=41\%$), gevolgd door de onzekerheid in de NOAEL (31%) en intraspecies verschillen (28%). Zie Bijlage 5B voor de berekeningen uitgevoerd met APROBA-Plus.

De grootste bijdrage aan de onzekerheid in de toxiciteit van PFOA werd geleverd door de onzekerheid in de NOAEL (29%), op de voet gevolgd door verschillen in kinetiek binnen een diersoort (26%) en de relatief korte duur van het proefdierexperiment (24%). Zie Bijlage 5A voor de berekeningen uitgevoerd met APROBA-Plus.

3.6 Risicobeoordeling

3.6.1 GenX

Vergelijking blootstelling met de TDI

Voor de risicobeoordeling is de berekende inname van GenX, uitgaande van een consumptiepatroon van de Nederlandse populatie, vergeleken met de TDI van 21 ng/kg lg/dag. Alle schattingen van de inname (gemiddelde, P50 en P95), op één na, lagen in zowel het minimale als maximale scenario onder de TDI. Eén schatting lag op de TDI. Om rekening te kunnen houden met andere bronnen van blootstelling wordt vaak gekeken naar de "opvulling" van de TDI. De opvulling van de TDI varieerde van 6% voor de mediane (P50) schatting in het minimale scenario tot 100% voor de hoge inname in het maximale scenario.

Verfijning van de risicobeoordeling met APROBA-Plus

In Figuur 3 is het resultaat weergegeven van de risicobeoordeling met de APROBA-Plus methode. Deze beoordeling is gebaseerd op dezelfde uitgangspunten en gegevens (zowel wat betreft toxiciteit als blootstelling), maar met een preciezere kwantificering van de onzekerheden. APROBA-plus schat de humane dosering waarbij het betreffende immunotoxische effect (verandering in de albumine/globuline ratio) in 1% van de consumenten zou optreden.

Met de verticale blauwe lijn wordt aangegeven waar de humane dosis zou kunnen liggen welke in 1% van de consumenten immunotoxische effecten veroorzaakt. Met de horizontale blauwe lijn wordt aangegeven waar de inname zou kunnen liggen voor het 95^{ste} percentiel van de populatie. Bemerkt de logaritmische schaal van beide assen. De ellips die beide lijnen omvat geeft dus aan waar de combinatie van de werkelijke waarde van humane dosis en blootstelling (zoals net gedefinieerd) zou kunnen liggen. Daarin kan duidelijk worden gezien dat de gehele ellips in het groene (d.w.z. het “veilige”) gebied ligt. Bovendien valt op dat de onzekerheid in de humane dosis (boven- en ondergrens van de ellips) ruim een factor 10 groter is dan de onzekerheid in de inname (linker- en rechtergrens van de ellips).

Het gemarkeerde punt (blauwe ruit) in deze figuur geeft de combinatie weer van de TDI van 21 ng/kg lg/dag en de hoge inname op basis van het maximale scenario, volgens de gebruikelijke methode. Dit illustreert dat de gebruikelijke methode een zeer beperkt beeld geeft van de werkelijkheid en de beschikbare kennis daarover.

3.6.2

PFOA

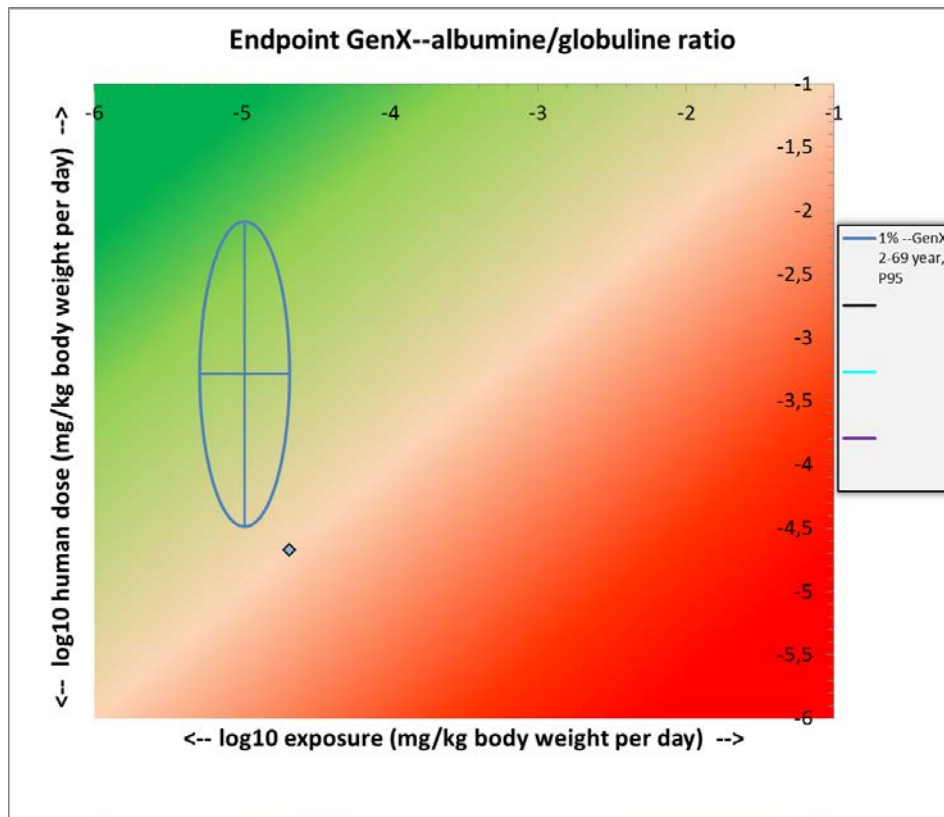
Vergelijking blootstelling met de TDI

Voor PFOA lagen alle berekende inname in beide scenario's onder de TDI van 12,5 ng/kg lg/dag. De opvulling van de TDI varieerde van 2% voor de gemiddelde en mediane schatting van de inname in het minimale scenario tot 96% voor de schatting van de hoge inname in het maximale scenario.

Verfijning van de risicobeoordeling met APROBA-Plus

In Figuur 4 is het resultaat weergegeven van de berekening met de APROBA-Plus methode (zie paragraaf 3.6.2 voor uitleg van de figuur). Ook nu blijkt dat de gehele ellips in het groene (d.w.z. het “veilige”) gebied ligt. Ook hier is de onzekerheid in de dosis (boven- en ondergrens van de ellips) groter dan de onzekerheid in de hoge inname (linker- en rechtergrens van de ellips).

De blauwe ruit in deze figuur geeft hier de combinatie weer van de TDI van 12,5 ng/kg lg/dag en de P95 inname op basis van het maximale scenario, te weten 12 ng/kg lg/dag. Wederom illustreert de figuur dat de blauwe ruit (d.w.z. de gebruikelijke methode) een zeer beperkt beeld geeft van de werkelijkheid en de beschikbare kennis daarover.



Figuur 3. Grafische weergave van de onzekerheid in de toxiciteit van GenX ('human dose', de dosis die in 1% van de consumenten immunotoxiciteit zou veroorzaken, weergegeven met de verticale blauwe lijn) en de inname ('exposure' op de x-as, het niveau van de P95 inname van consumenten, weergegeven als de horizontale blauwe lijn) van GenX via de consumptie van moestuingewassen

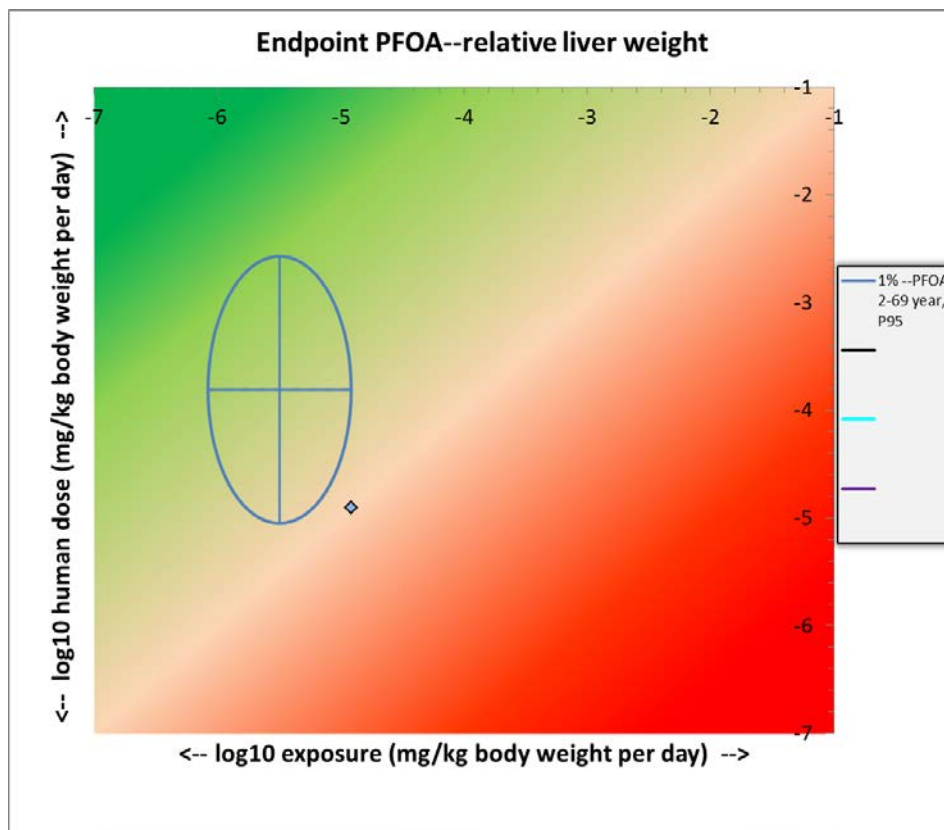
3.6.3

Conclusies

Zoals onderbouwd in paragraaf 3.5.1 schatten we in dat de berekende inname op basis van het maximale scenario een conservatieve schatting is van de werkelijke inname van GenX en PFOA door moestuinhouders in de buurt van DuPont/Chemours.

In paragraaf 3.6.1 en 3.6.2 is beschreven dat in werkelijkheid de hoge inname zeer waarschijnlijk lager is dan de dosis waarbij 1% van de populatie schadelijke effecten zou kunnen ondervinden.

Samenvattend kan worden geconcludeerd dat, met inachtneming van de onzekerheden in de inname en de toxiciteit, zelfs de hoogste fractie van de populatie die consumeert uit eigen moestuin in de buurt van DuPont/Chemours een inname zal hebben dat net onder of op het niveau van de TDI ligt. De onzekerheidsanalyse laat zien dat het zeer onwaarschijnlijk is dat deze consumenten een blootstelling zullen hebben van GenX en PFOA via de consumptie van moestuingewassen die tot negatieve gezondheidseffecten zou leiden.



Figuur 4. Grafische weergave van de onzekerheid in de toxiciteit van PFOA ('human dose', de dosis die in 1% van de consumenten leverschade kan veroorzaken, weergegeven met de verticale blauwe lijn) en de inname ('exposure', het niveau van de P95 blootstelling van consumenten, weergegeven met de horizontale blauwe lijn) van PFOA via de consumptie van moestuingewassen

4 Discussie en conclusies

Onderhavig rapport beschrijft de risicobeoordeling van GenX en PFOA via de consumptie van moestuingewassen bemonsterd op verschillende locaties rond het chemiebedrijf DuPont/Chemours. In dit hoofdstuk worden de resultaten besproken en worden de conclusies getrokken.

4.1 Vergelijking met eerder onderzoek gerelateerd aan voedsel

Voor zover bij ons bekend zijn er geen eerdere innameberekeningen uit voedsel uitgevoerd voor GenX. Voor PFOA wordt in een wetenschappelijke opinie van EFSA uit 2008 vermeld dat de mediane en hoge inname via drinkwater en voedsel respectievelijk 2 en 6 ng/kg lg/dag bedroeg (EFSA, 2008). De hoge inname resulteert in een opvulling van 48% van de huidige TDI. De belangrijkste bijdrage aan deze inname werd geleverd door de consumptie van vis en visproducten.

EFSA gaf wel aan dat de innameberekening gebaseerd was op een gebrekkige set aan concentratiegegevens in voedsel (EFSA, 2008). Daarom is voor PFOA (en andere perfluorverbindingen) in 2009-2010 een survey uitgevoerd naar de inname door de Nederlandse consument gebaseerd op de consumptie van drinkwater en voedsel gekocht in diverse supermarkten (Noorlander et al., 2011). Voor het berekenen van de PFOA inname via drinkwater is gebruik gemaakt van een concentratie van 9 ng PFOA/liter, gepubliceerd door EFSA in 2008 (EFSA, 2008). De mediane (P50) inname van PFOA voor drinkwater en voedsel in Nederland bedroeg 0,2 ng/kg lg/dag. De hoge inname (P99) van PFOA bedroeg 0,5 ng/kg lg/dag. De belangrijkste bijdrage aan de inname van PFOA werd geleverd door groenten en fruit. Uitgaande van de huidige TDI voor PFOA van 12,5 ng/kg lg/dag zou de hoge inname een opvulling van de TDI van 4% betekenen. De toenmalige (mediane en hoge) inname is daarmee vergelijkbaar met de (mediane en hoge) inname van PFOA in het minimale scenario.

4.2 Gevonden concentraties GenX en PFOA

GenX en PFOA is in 60% van de monsters genomen op de locaties rond de fabriek van DuPont/Chemours (Figuur 1) niet gedetecteerd. Op 10 monsters kon GenX worden gekwantificeerd (concentraties varieerden van 1,1 tot 5,9 ng/g) en op 3 monsters PFOA (concentraties varieerden van 1,3 tot 2,8 ng/g). Voor GenX betroffen dit monsters gemeten op de locaties G1LOC1, G3LOC2 en G3LOC4. Voor PFOA zijn alleen op locatie G3LOC4 kwantificeerbare concentraties gemeten. G3LOC2 en G3LOC4 bevonden zich op een afstand van minder dan 1 km van het bedrijf DuPont/Chemours (Tabel 4). G1LOC bevond zich net buiten de straal van 1 km. De hoogste GenX en PFOA concentraties zijn gemeten op G3LOC4 en met deze concentraties zijn de innameberekeningen uitgevoerd. Dit betekent dat de inname van GenX of PFOA op basis van de monsters genomen op de andere locaties altijd lager zal uitvallen dan nu berekend voor G3LOC4.

Voor GenX was er bewijs dat het wassen van een groente tot lagere concentraties van GenX leidde. Voor PFOA was dit bewijs er niet, omdat PFOA maar in drie monsters biet in kwantificeerbare concentraties is aangetroffen. De PFOA concentraties lagen wel lager in gewassen bieten. Onder voorbehoud van het geringe aantal monsters, kan worden geconcludeerd dat het aannemelijk is dat het wassen van groenten de concentraties aan GenX en PFOA in groenten een weinig doet dalen.

In het verkennend onderzoek van de VU naar het gehalte van GenX en PFOA in bladeren en gras in de omgeving van het bedrijf DuPont/Chemours varieerden de GenX concentraties van 1,0-28,2 ng/g en voor PFOA van 0,4-19,8 ng/g vanaf 200 tot 3000 m. Deze concentraties liggen in dezelfde orde van grootte als de concentraties GenX en PFOA die in dit onderzoek zijn gemeten. Met name de concentraties in gras (0,4-5,4 ng/g) komen goed overeen met de concentraties in de moestuingewassen. In bladeren zijn de concentraties GenX en PFOA wat hoger dan in de moestuingewassen.

4.3 Onzekerheden in de risicobeoordeling

De risicobeoordeling beschreven in dit rapport is gebaseerd op een indicatief onderzoek naar de inname van GenX en PFOA door consumptie van moestuingewassen in de omgeving van de fabriek van DuPont/Chemours. In ongeveer 60% van de 74 monsters was de concentratie GenX of PFOA onder de detectielimiet. Eén locatie vertoonde significant hogere concentraties dan de andere negen locaties rond de fabriek. Deze concentraties (afkomstig van 22 monsters) zijn als 'worst case' situatie gebruikt om de inname van GenX en PFOA te berekenen. Voor de innameberekening is uitgegaan van een minimaal en een maximaal scenario. In het minimaal scenario is de laagst gemeten concentratie per (categorie) gewas op deze locatie gebruikt en in het maximale scenario is het hoogst gemeten gehalte per (categorie) gewas op deze locatie gebruikt. Voor GenX resulteerde dat in een factor 4 verschil tussen het minimale en maximale scenario voor de hoge inname (P95). Voor PFOA was deze factor gelijk aan 15. Het grote verschil tussen het minimale en maximale scenario voor PFOA werd veroorzaakt doordat PFOA slechts in één gewas (bieten) kon worden gekwantificeerd. Hierdoor werd het verschil tussen de scenario's sterk bepaald door het verschil in LOD en LOQ (Tabel 2). De gemeten concentraties van GenX en PFOA droegen met name bij aan de onzekerheid in de berekende innamen door het beperkte aantal monsters in combinatie met een hoog percentage monsters met een gehalte onder de LOQ of LOD. De onzekerheid in de inname werd verder beïnvloed door onzekerheden in de gebruikte consumptiegegevens, het effect van wassen en de extrapolatie van concentraties in niet-gemeten naar gemeten gewassen.

Voor de risicobeoordeling is de berekende inname allereerst afgezet tegen de toelaatbare dagelijkse innamen (TDI's) voor GenX en PFOA, zoals deze in het recente verleden zijn afgeleid door het RIVM. Vervolgens is de APROBA-Plus methode gebruikt om de risicobeoordeling te verfijnen. De analyse met de APROBA-Plus methode liet zien dat de grootste bijdrage aan de onzekerheid in de toxiciteit van zowel GenX als PFOA wordt geleverd door verschillen tussen proefdier

en mens in kinetiek en door de dosering waarbij geen negatieve gezondheidseffecten optreden in het proefdier, de zogenoemde No Observed Adverse Effect Level (NOAEL). Bovendien laat de onzekerheidsanalyse ook zien dat de optelsom van onzekerheden in de toxiciteit groter zijn dan de onzekerheden in de inname. Het ligt dan ook voor de hand om eventueel toekomstig onderzoek te besteden aan het verkleinen van de bijdrage van de belangrijke bronnen aan de onzekerheid mbt. de toxiciteit, te weten de interspecies verschillen in kinetiek en de NOAEL. Naast meer duidelijkheid over de accumulatie van GenX in de mens kan het vervangen van de NOAEL door een zogenoemde Bench Mark Dose (BMD) uitkomst bieden. De meest kosten-effectieve oplossing is het afleiden van de BMD's voor GenX en PFOA op basis van de huidige proefdierexperimenten.

4.4 Blootstelling uit andere bronnen

Andere bekende bronnen van blootstelling aan GenX en PFOA zijn drinkwater en lucht. In de hier gerapporteerde berekeningen voor de inname van GenX en PFOA via voedsel zijn deze bronnen niet meegenomen.

In 2016 heeft het RIVM de blootstelling aan PFOA via lucht, drinkwater en voedsel in de omgeving van Dupont/Chemours geschat op basis van emissiegegevens, meetgegevens en berekeningen (Zeilmaker et al., 2016). De blootstelling aan PFOA via drinkwater en voedsel was gebaseerd op een in 2015 in de regio Dordrecht aangetroffen PFOA-concentratie in drinkwater van 2,5 ng PFOA/liter en de blootstelling uit voedsel in Nederland zoals gepubliceerd door Noorlander in 2011 (Noorlander, 2011). Dit resulteerde in een geschatte blootstelling via drinkwater en voedsel tussen 0,18 (mediaan) en 0,44 (P99) ng/kg lg/dag. Deze innames komen overeen met die van Noorlander et al. (2009) via voedsel en drinkwater (zie paragraaf 4.1).

4.4.1 *Blootstelling via lucht*

Zeilmaker et al (2016) heeft de blootstelling aan PFOA via de lucht niet gemeten maar berekend aan de hand van verschillende scenario's voor de hoogte en duur van de blootstelling. Het verloop van de berekende bloedserumconcentraties liet zien dat er, afhankelijk van het scenario, in het gebied binnen een straal van ongeveer 750 m vanaf de fabriek ('binnenste contour') sprake is geweest van een hoge blootstelling aan PFOA (met maximale serumconcentraties boven de veilige grens van 89 ng PFOA/ml in twee van de drie scenario's). In deze berekeningen is ervan uitgegaan dat na 2012 geen emissie van PFOA meer heeft plaatsgevonden. Vanwege deze emissiestop waren de berekende serumconcentraties in de binnenste contour in 2016 gedaald naar 10 ng PFOA/ml (Zeilmaker et al., 2016). De veilige grens van 89 ng PFOA/ml serum komt overeen met de TDI van 12,5 ng/kg lg/dag. Op basis hiervan komt een serumconcentratie van 10 ng PFOA/ml overeen met een chronische blootstelling via lucht van 1,4 ng PFOA/kg lg/dag (= 11,2% van de TDI). Deze voorgeschiedenis laat trouwens eveneens zien dat het zeer waarschijnlijk is dat aan het eind van de vorige eeuw PFOA in hogere concentraties aanwezig is geweest in moestuingewassen dan in dit onderzoek is gemeten.

In een rapport uit 2016 is de blootstelling aan GenX via lucht berekend (Beekman et al., 2016). Op basis van de gerapporteerde emissies in 2014, is de geschatte blootstelling voor GenX 15 ng/m³ voor de dichtstbijzijnde bewoonde gebieden (achter de dijk aan de andere kant van de rivier). Bij een standaard ademvolume van 20 m³ lucht per dag voor een volwassene met een lichaamsgewicht van 70 kg (ECHA, 2012) is een blootstelling berekend van 4,3 ng GenX/kg lg/dag (= 20,4% van de TDI). Over een tijdgerelateerde blootstelling aan GenX via voedsel valt vanwege de momentopname van dit onderzoek en het gebrek aan ander onderzoek niets te concluderen.

4.4.2 *Blootstelling via drinkwater*

In de richtlijn voor drinkwaterkwaliteit van de WHO uit 2017 staat beschreven dat voor niet nader gespecificeerde chemische stoffen die kunnen voorkomen in drinkwater 20% van de gezondheidkundige grenswaarde (zoals een TDI) standaard wordt gealloceerd (lees: 'gereserveerd') voor de blootstelling via deze bron (WHO, 2017). Op basis van deze allocatie en de TDI's voor GenX en PFOA heeft het RIVM voorlopige richtwaarden in drinkwater berekend van 87,5 ng/liter voor PFOA en 150 ng/liter voor GenX (Smit & Versteegh, 2017). Vorig jaar is GenX in een verkennend meetprogramma in Nederland aangetoond in het drinkwater van drie bedrijven (Versteegh & de Voogt, 2017). Deze bedrijven analyseren het oppervlakte- en oevergrondwater benedenstrooms van Dordrecht en de Lek (via getijdenwerking) en van de Maas (Keizersveer en Brakel). De GenX concentraties lagen in de range van 10-30 ng/liter. Deze bevindingen komen overeen met de hoogste GenX concentratie van 11 ng/liter aangetroffen in drinkwater in de gemeenten rondom de fabriek van DuPont/Chemours (inclusief Dordrecht, Papendrecht en Sliedrecht) door Gebbink et al. (2017).

Uitgaande van een dagelijkse consumptie van 2 liter drinkwater en een lichaamsgewicht van 70 kg leiden deze concentraties voor GenX tot een opvulling van de TDI van 1,4 tot 4%. Een concentratie in drinkwater van 2,5 ng PFOA/liter, zoals aangetroffen in 2015 in de regio Dordrecht, leidt onder dezelfde aannames voor PFOA tot een opvulling van de TDI van minder dan 1%. Samengevat, de huidige, beperkte dataset aan concentraties van GenX en PFOA in drinkwater doen vermoeden dat de bijdrage aan de blootstelling via deze route zeer gering is.

4.5 **Bijdrage blootstelling via drinkwater, lucht en moestuingewassen aan totale blootstelling aan GenX en PFOA**

Tabel 8 geeft een overzicht van de bijdragen van de bronnen drinkwater, lucht en moestuingewassen, op een afstand van minder dan 1 km van het bedrijf DuPont/Chemours en voor het maximale scenario, aan de blootstelling van GenX en PFOA uitgedrukt als percentage van de TDI.

De bijdrage van drinkwater aan de opvulling van de TDI is voor zowel GenX als PFOA veel lager dan voor de andere bronnen. Voor de gemiddelde inname van GenX en PFOA via de consumptie van moestuingewassen in het maximale scenario is de bijdrage van moestuingewassen voor GenX hoger dan de bijdrage van lucht (36% versus 20%) en voor PFOA ruim het drievoudige (34% versus 11%). Bij

Tabel 8. De bijdrage van de bronnen drinkwater, lucht en moestuingewassen, op een afstand van minder dan 1 km van het bedrijf DuPont/Chemours en voor het maximale scenario, aan de blootstelling van GenX en PFOA uitgedrukt als percentage van de toelaatbare dagelijkse inname (TDI)

Stof	Bijdrage van bronnen (in % van de TDI ¹)			
	Drinkwater gemiddeld ²	Lucht gemiddeld ²	Moestuin	Totaal (afgerond)
GenX	1,4 - 4	20	Gemiddeld ³ : 36	57 - 60
			P95 ⁴ : 100	121 - 124
PFOA	0,6	11 ⁵	Gemiddeld ³ : 34	46
			P95 ⁴ : 96	108

¹ GenX: TDI = 21,0 ng/kg lg/dag; PFOA: TDI = 12,5 ng/kg lg/dag

² Deze blootstelling is geschat als gemiddelde blootstelling (de verdeling van de blootstelling is onbekend) (paragraaf 4.4.1 en 4.4.2)

³ Gemiddeld: gemiddelde blootstelling in het maximale scenario (Tabel 7).

⁴ P95: 95ste percentiel van de blootstelling in het maximale scenario (Tabel 7).

⁵ De bijdrage van 11% is gebaseerd op de geschatte bloedserumwaarde van 10 ng/ml (paragraaf 4.4.1).

een hoge inname (P95) van GenX en PFOA via moestuingewassen in het maximale scenario draagt deze bron verreweg het meeste bij aan de blootstelling (96-100%). Samengevat, de totale bijdrage van drinkwater, lucht en moestuingewassen aan de opvulling van de TDI varieerde in het maximale scenario voor GenX van ongeveer 57% tot 124% en voor PFOA van 46 tot 108%.

4.6 Samenvatting en eindconclusies

Voor het moestuinonderzoek naar GenX en PFOA zijn twee vragen geformuleerd:

1. Wat zijn de concentraties GenX en PFOA in geselecteerde gewassen uit moestuinen in de buurt van DuPont/Chemours?
2. Wordt de toelaatbare dagelijkse inname (TDI) van GenX en PFOA overschreden door consumptie van moestuingewassen bij een gebruikelijk consumptiepatroon?

Op vraag 1 is in dit rapport een antwoord verkregen door het meten van 74 monsters van moestuingewassen afkomstig van 10 locaties in de omgeving van DuPont/Chemours. Voor de beantwoording van vraag 2 is de berekende inname afgezet tegen de huidige TDI's van GenX en PFOA. In het maximale scenario lag de hoge inname (P95) net onder (voor PFOA) of op het niveau van de TDI (voor GenX).

Het doel van dit onderzoek is om te achterhalen of mensen met een moestuin in de buurt van DuPont/Chemours de groenten en fruit uit deze (moes)tuin veilig kunnen consumeren voor wat betreft de aanwezigheid van GenX en PFOA in de gewassen. De grenswaarden die voor de blootstelling via voedsel gelden, werden niet overschreden, en geven op zichzelf dus geen reden tot zorg. Echter, gelet op de lage bijdrage van drinkwater en de onvermijdelijke bijdrage van lucht aan de blootstelling is het raadzaam om moestuingewassen die binnen een straal van 1 kilometer van het bedrijf zijn geteeld, met mate te consumeren (niet te vaak of te veel). Buiten dit gebied zijn de concentraties dermate laag dat de gewassen veilig kunnen worden gegeten, ook in combinatie met andere blootstellingsbronnen.

4.7 Aanbevelingen voor vervolgonderzoek

De resultaten van dit onderzoek zijn indicatief vanwege de beperkte monsternamen op één gegeven moment (eind augustus 2017). Het is mogelijk dat er een tijdsafhankelijke invloed (bv. seizoensinvloed) is op de concentraties in moestuingewassen. Gelet op het zeer kleine percentage monsters waarin GenX of PFOA kon worden gekwantificeerd is het niet de verwachting dat dit percentage bij een herhaald onderzoek sterk zal veranderen. Een onderzoek met substantieel meer monsters kan de onzekerheid gerelateerd aan de huidige concentraties (en derhalve aan de inname) mogelijk verkleinen. Zoals reeds aangegeven lijkt meer winst te halen in het verkleinen van de onzekerheden gerelateerd aan de toxiciteit.

Onderzoek naar bodem- en watermonsters genomen op de huidige locaties (de geplande tweede onderzoeksfase) zal ons meer leren over het gedrag van deze stoffen in de bodem en opname via de gewassen. Deze kennis zal echter weinig invloed hebben op de uitkomst van deze of toekomstige risicobeoordelingen.

De huidige metingen, met inachtneming van de beperkte proefopzet, laten zien dat PFOA slechts in één gewas op één locatie (op minder dan 1 km afstand van de fabriek) wordt aangetroffen in kwantificeerbare gehalten wat past in het beeld dat het gebruik van PFOA door het bedrijf DuPont/Chemours in 2012 is gestopt. GenX is in vijf gewassen op twee locaties (beiden ook op minder dan 1 km afstand van de fabriek) gekwantificeerd en de oorzaak daarvan ligt zeer waarschijnlijk in de emissie van GenX door het bedrijf DuPont/Chemours. Indien metingen gewenst zijn, ligt het voor de hand om met name de blootstelling aan GenX via de lucht te meten.

Dankwoord

De auteurs danken Ric van Poll en Joke Herremans van het RIVM voor hun begeleiding van het project en hun waardevolle input op eerdere versies van het rapport. Martine Bakker en Marco Zeilmaker van het RIVM en Martin van den Berg van de Universiteit Utrecht worden bedankt voor hun kritische commentaar op de toetsversie van het rapport.

Verder danken de auteurs Bertwin Stoffelsen, Leon van Ingen en Willem Leijns van het RIVM voor het opzetten en uitvoeren van de monsternamen en Wouter Gebbink en Stefan van Leeuwen van het RIKILT WUR voor de analyses van de moestuinmonsters.

Referenties

Beekman M, Zweers P, Muller A, de Vries W, Janssen P, Zeilmaker M (2016). Evaluation of substances used in the GenX technology by Chemours, Dordrecht. RIVM Letter report 2016-0174. Bilthoven, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM). Beschikbaar online: www.rivm.nl.

Bokkers B, Mengelers M, Bakker M, Chiu W, Slob W (2017). APROBA-Plus: A probabilistic tool to evaluate and express uncertainty in hazard characterization and exposure assessment of substances. *Food and Chemical Toxicology* 110: 408-417.

Boon, PE, van der Voet H (2015). Probabilistic dietary exposure models. RIVM Letter report 2015-0191. Bilthoven, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM). Beschikbaar online: www.rivm.nl.

Brandsma S, Koekoek J, van Velzen M, de Boer J (2017). The PFOA alternative GENX now detected in grass and leaves near the Teflon plant in the Netherlands. Dioxin Congress, Abstract number 10058.

De Boer WJ, Goedhart PW, Hart A, Kennedy MC, Kruisselbrink J, Owen H, Roelofs W, van der Voet H (2016). MCRA 8.2 a web-based program for Monte Carlo Risk Assessment. Reference Manual. December 2016. Wageningen, Bilthoven, The Netherlands and York, UK, Biometris, Wageningen UR, Food and Environmental Research Agency (Fera) and National Institute for Public Health and the Environment (RIVM).

ECHA (2012). Guidance on information requirements and chemical safety assessment. Chapter R.8: Characterisation of dose [concentration]-response for human health. Reference: ECHA-2010-G-19-EN. Beschikbaar online: www.echa.europa.eu.

EFSA (2008). Opinion of the Scientific Panel on Contaminants in the Food chain on Perfluorooctane sulfonate (PFOS), perfluorooctanoic acid (PFOA) and their salts. *The EFSA Journal*, 653: 1-131. Beschikbaar online: www.efsa.europa.eu.

Gebbink WA, van Asseldonk L, van Leeuwen S (2017). Presence of emerging per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) in river and drinking water near a fluorochemical production plant in the Netherlands. *Environmental Science & Technology* 51: 11057-11065.

Hartigan JA, Wong, MA (1979). A K-Means Clustering Algorithm. *Applied Statistics* 28: 100-108.

Janssen P (2017). Bijlage bij brief 0148/2016/M&V/EvS/AV. Derivation of a lifetime drinking-water guideline for 2,3,3,3-tetrafluoro-2-(heptafluoropropoxy)propanoic acid (FRD-903) – Revised version January 2017.

NJDWQI (2016). Public review draft. Health-based maximum contaminant level support document: Perfluorooctanoic acid (PFOA). Health Effects Subcommittee. New Jersey, New Jersey Drinking Water Quality Institute. Beschikbaar online: www.nj.gov/dep/watersupply/pdf/pfoa-hb--mcl-public-review-draftwithappendices.pdf.

Noorlander C, van Leeuwen S, te Biesebeek JB, Mengelers M, Zeilmaker M (2011). Levels of perfluorinated compounds in food and dietary intake of PFOS and PFOA in The Netherlands. *Journal of Agricultural and Food Chemistry* 59: 7496-7505.

Ocké MC, van Rossum CTM, Fransen HP, Buurma EJM, de Boer EJ, Brants HAM, Niekerk EM, van der Laan JD, Drijvers JJMM, Ghameshlou Z (2008). Dutch National Food Consumption Survey - Young children 2005/2006. RIVM Report 350070001/2008. Bilthoven, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM). Beschikbaar online: www.rivm.nl.

Oomen A, Herremans J (2017). Betekenis resultaten bloedonderzoek PFOA omwonenden DuPont/Chemours. RIVM Briefrapport 2017-0101. Bilthoven, Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Beschikbaar online: www.rivm.nl.

Poll R, Jansen E, Janssen R (2017). PFOA-metingen in bloed: Metingen in serum bij omwonenden van DuPont/Chemours te Dordrecht. RIVM Rapport 2017-0077. Bilthoven, Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Beschikbaar online: www.rivm.nl.

Smit E, Versteegh A (2017). PFOA en GenX: van de regen in de drup? *H2O-Online*, November, 1-6.

Swartjes FA, Dirven-van Breemen EM, Otte PF, van Beelen P, Rikken MGJ, Tuinstra J, Spijker J, Lijzen JPA (2007). Human health risks due to consumption of vegetables from contaminated sites. Towards a protocol for site-specific assessment. RIVM Report 711701040/2007. Bilthoven, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM). Beschikbaar online: www.rivm.nl.

Van Rossum CTM, Fransen HP, Verkaik-Kloosterman J, Buurma-Rethans EJM, Ocké MC (2011). Dutch National Food Consumption Survey 2007-2010. Diet of children and adults aged 7 to 69 years. RIVM Report 350050006/2011. Bilthoven, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM). Beschikbaar online: www.rivm.nl.

Versteegh A, de Voogt P (2017). Risicoduiding en vóórkomen van FRD-903 in drinkwater en drinkwaterbronnen bij een selectie van drinkwaterwinningen in Nederland. RIVM Briefrapport 2017-0175. Bilthoven, Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Beschikbaar online: www.rivm.nl.

WHO-IPCS (2014). Guidance document on evaluating and expressing uncertainty in hazard characterization. WHO-IPCS harmonization project document no. 11. ISBN 978924 1507615. Beschikbaar online: www.who.int/ipcs/methods/harmonization/areas/hazard_assessment/en/.

WHO (2017). Guidelines for drinking-water quality: fourth edition incorporating the first addendum. ISBN 978-92-4-154995-0. Beschikbaar online: apps.who.int/iris/bitstream/10665/254637/1/9789241549950-eng.pdf?ua=1.

Zeilmaker MJ, Janssen P, Versteegh A, Van Pul A, De Vries W, Bokkers B, Wuijts S, Oomen A, Herremans J (2016). Risicoschatting emissie PFOA voor omwonenden. RIVM letter report 2016-0049. Bilthoven, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM). Beschikbaar online: www.rivm.nl.

Bijlage 1. Indeling van de geconsumeerde voedingsmiddelen per categorie

Categorie	Voedingsmiddel	Gemeten ¹
Bladgroenten	Andijvie diepvries onbereid	+
	Andijvie gekookt	+
	Andijvie rauw	+
	Postelein gekookt	-
	Raapstelen rauw	-
	Selderij bleek- rauw	-
	Sla gekookt	+
	Sla groene gem rauw	+
	Sla ijsberg- rauw	+
	Sla krop- rauw	+
	Sla rode rauw	+
	Sla rucola rauw	+
	Sla veld- gekookt	+
	Sla veld- rauw	+
	Slamelange krop- en friseesla	+
	Snijbiet gekookt	-
	Spinazie diepvries gekookt	-
	Spinazie gekookt	-
	Spinazie rauw	-
	Witlof gekookt	-
	Witlof rauw	-
Knolgroenten	Aardappelen z schil gekookt gem	-
	Bieten gekookt	+
	Doperwten m wortelen diepvries onbereid	-
	Koolraap gekookt	-
	Koolrabi gekookt	-
	Peultjes m wortelen gekookt	-
	Peultjes met wortelen gekookt	-
	Radijs rauw	-
	Sap bieten-	+
	Sap wortel-	+
	Schorseneren gekookt	-
	Selderij knol- gekookt	-
	Selderij knol- rauw	-
	Wortelen gekookt gem	+
	Wortelen rauw gem	+
Vruchtgroenten	Courgette gekookt	-
	Courgette rauw	-
	Komkommer gekookt	-
	Komkommer m schil rauw	-
	Komkommer z schil rauw	-
	Meloen net-	-
	Meloen suiker-	-
	Meloen water-	-
	Paprika gekookt gem	+

Categorie	Voedingsmiddel	Gemeten ¹
	Paprika gele gekookt	+
	Paprika gele rauw	+
	Paprika groene gekookt	+
	Paprika groene rauw	+
	paprika ns bereid	+
	paprika ns rauw	+
	Paprika rauw gem	+
	Paprika rode gekookt	+
	Paprika rode rauw	+
	Pompoen gekookt	-
	Sap tomaten-	+
	Sap tomatengroenten-	+
	Tomaat gekookt	+
	Tomaat rauw	+
	Tomaat gekookt gem	+
	Tomaat kers- rauw	+
	Tomaat rauw gem	+
	Tomaat vlees- gekookt	+
	Tomaat vlees- rauw	+
Pitvruchten	Appel m schil gem	+
	Appel z schil gem	+
	Appeltjes gedroogd	+
	Peer m schil	-
	Peer z schil	-
Koolgroenten	Broccoli gekookt	-
	Broccoli rauw	-
	Kool bloem- gekookt	-
	Kool bloem- rauw	-
	Kool boeren- diepvries gekookt	-
	Kool boeren- gekookt	-
	Kool groene gekookt	-
	Kool rode gekookt	-
	Kool rode m appeltjes huishoudelijk bereid	-
	Kool rode rauw	-
	Kool savooie- gekookt	-
	Kool savooie- rauw	-
	Kool spits- gekookt	-
	Kool spits- rauw	-
	Kool witte gekookt	-
	Kool witte rauw	-
	Kool zuur- gekookt	-
	Kool zuur- rauw	-
	Spruitjes diepvries gekookt	-
	Spruitjes gekookt	-
Peulgroenten	Bonen snij- diepvries onbereid	-
	Bonen snij- gekookt	-
	Bonen sperzie- diepvries gekookt	-
	Bonen sperzie- gekookt	-
	Bonen tuin- diepvries onbereid	-
	Bonen tuin- gekookt	-
	Doperwten diepvries gekookt	-

Categorie	Voedingsmiddel	Gemeten ¹
	Doperwten gekookt	-
	Peultjes gekookt	-

¹ - Niet direct gekoppeld aan een geanalyseerd gehalte voor GenX en PFOA in overeenkomstig product; + Direct gekoppeld aan een geanalyseerd gehalte op GenX en PFOA in overeenkomstig product

Bijlage 2. Afleiding van TDI voor GenX

De No Observed Adverse Effect Level (NOAEL) van 0,1 mg/kg lg/dag, afkomstig van een orale, chronische rattenstudie met de stof FRD-902 en gebaseerd op een immunotoxisch effect (effect op albumine/globuline ratio), is gebruikt voor het afleiden van een TDI voor GenX. In deze Bijlage wordt in het kort weergegeven waar deze afleiding op is gebaseerd, omdat het alleen in een (Engelstalige) bijlage bij een (openbare) brief is beschreven (Janssen, 2017).

Om de NOAEL uit de proefdierstudie te vertalen naar een TDI voor de mens zijn conform de Europees geldende REACH-richtlijnen, onzekerheidsfactoren (in het Engels: assessment factors) gebruikt voor inter- en intraspecies extrapolatie. Bovendien werd een extra factor toegepast voor mogelijke bioaccumulatie in de mens. De gebruikte onzekerheidsfactoren zijn:

- Standaard factor voor interspecies verschillen in kinetiek: 4
- Additionele factor voor (mogelijke) interspecies verschillen in kinetiek: 66
- Standaard factor voor interspecies verschillen in dynamiek: 1,8
- Standaard factor voor intraspecies verschillen (mens): 10

Hierbij dienen de volgende opmerkingen geplaatst te worden:

Ad b. Aangezien geen gegevens bekend zijn over de kinetiek van GenX bij de mens is de additionele onzekerheidsfactor voor interspecies verschillen in kinetiek gebaseerd op de verschillen in kinetiek van PFOA tussen aap en mens. De factor 66 is dus niet gebaseerd op verschillen in kinetiek van GenX tussen proefdier en de mens, maar op een aanname dat deze verschillen net zo groot zijn als bij PFOA. Deze addtionele factor is volgens de REACH-richtlijnen wel gerechtvaardigd.

Ad c. Voor de standaard factor voor interspecies verschillen in dynamiek wordt ook vaak een factor 2,5 gehanteerd.

Het gebruik van de overall factor van 4752 op de NOAEL van 0,1 mg/kg lg/dag leidt tot een voorlopige TDI voor GenX van 21 ng/kg lg/dag.

Bijlage 3. Concentraties van GenX en PFOA in diverse gewassen

Locatie ¹	Product	Bereiding	Concentratie (ng/g)			
			GenX		PFOA	
			Meting 1	Meting 2	Meting 1	Meting 2
G1LOC1VR	Tomaat	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G1LOC1VR	Tomaat	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G1LOC1BL	Selderij	Gewassen	+	1,4	< LOD	< LOD
G1LOC1BL	Selderij	Ongewassen	1,1	1,2	< LOD	< LOD
G1LOC1KN	Bieten	Gewassen	+	+	< LOD	< LOD
G1LOC1KN	Bieten	Ongewassen	< LOD	+	< LOD	< LOD
G1LOC2VR	Tomaat	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G1LOC2VR	Tomaat	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G1LOC2BL	Andijvie (doorgeschoten)	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G1LOC2BL	Andijvie (doorgeschoten)	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G1LOC2KN	Bieten	Gewassen, ongeschild	+	+	< LOD	< LOD
G1LOC2KN	Bieten	Gewassen, geschild	+	+	< LOD	< LOD
G1LOC3VR	Gele courgette	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G1LOC3VR	Gele courgette	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G1LOC3BL	Andijvie	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G1LOC3BL	Andijvie	Ongewassen	< LOD	< LOD	+	+
G1LOC3KN	Gele bieten	Gewassen, ongeschild	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G1LOC3KN	Gele bieten	Gewassen, geschild	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G2LOC1VR	Tomaat	Gewassen	< LOD	< LOD	+	+
G2LOC1VR	Tomaat	Ongewassen	< LOD	< LOD	+	+
G2LOC1BL	Sla	Gewassen	< LOD	< LOD	+	+
G2LOC1BL	Sla	Ongewassen	< LOD	< LOD	+	+
G2LOC1KN	Bieten	Gewassen, ongeschild	< LOD	< LOD	+	+

Locatie ¹	Product	Bereiding	Concentratie (ng/g)			
			GenX		PFOA	
			Meting 1	Meting 2	Meting 1	Meting 2
G2LOC1KN	Bieten	Gewassen, geschild	< LOD	< LOD	+	+
G2LOC2VR	Courgette	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G2LOC2VR	Courgette	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G2LOC2BL	Andijvie	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G2LOC2BL	Andijvie	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G2LOC2KN	Bieten	Gewassen, ongeschild	+	+	+	+
G2LOC2KN	Bieten	Gewassen, geschild	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G2LOC3VR	Courgette	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G2LOC3VR	Courgette	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G2LOC3BL	Andijvie	Gewassen	< LOD	< LOD	+	+
G2LOC3BL	Andijvie	Ongewassen	< LOD	< LOD	+	+
G2LOC3KN	Bieten	Gewassen, ongeschild	< LOD	< LOD	+	+
G2LOC3KN	Bieten	Gewassen, geschild	< LOD	< LOD	+	+
G3LOC1VR	Komkommer	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC1VR	Komkommer	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC1KN	Bieten	Gewassen, ongeschild	+	+	+	+
G3LOC1KN	Bieten	Gewassen, geschild	+	+	+	+
G3LOC2VR	Pompoen	ongewassen zonder schil zonder pitten	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC2BL	Andijvie	Gewassen	1,8	1,6	+	+
G3LOC2BL	Andijvie	Ongewassen	2,8	2,8	+	+
G3LOC2KN	Aardappels	Ongewassen, ongeschild	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC2KN	Aardappels	Gewassen, ongeschild	+	< LOD	+	+
G3LOC2KN	Aardappels	Gewassen, geschild	< LOD	< LOD	+	+
G3LOC3VR	Courgette	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC3VR	Courgette	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC3BL	(Ijsberg)sla	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC3BL	(Ijsberg)sla	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC3KN	Bieten	Gewassen, ongeschild	< LOD	< LOD	+	+

Locatie ¹	Product	Bereiding	Concentratie (ng/g)			
			GenX		PFOA	
			Meting 1	Meting 2	Meting 1	Meting 2
G3LOC3KN	Bieten	Gewassen, geschild	< LOD	< LOD	+	+
G3LOC4VR1	Tomaat	Gewassen	2,2	3,7	+	+
G3LOC4VR1	Tomaat	Ongewassen	3,0	3,6	+	+
G3LOC4BL1	Andijvie	Gewassen	+	+	< LOD	< LOD
G3LOC4BL1	Andijvie	Ongewassen	+	< LOD	+	< LOD
G3LOC4KN1	Bieten	Ongewassen, ongeschild	2,2	2,7	2,2	2,8
G3LOC4KN1	Bieten	Gewassen, ongeschild	+	1,2	1,6	1,3
G3LOC4KN1	Bieten	Gewassen, geschild	+	+	1,6	1,8
G3LOC4FR1	Appels met klokhuis	Gewassen	+	+	< LOD	< LOD
G3LOC4FR1	Appels met klokhuis	Ongewassen	+	+	< LOD	< LOD
G3LOC4FR2	Appels zonder klokhuis	Ongewassen, ongeschild	+	+	< LOD	< LOD
G3LOC4FR2	Appels zonder klokhuis	Gewassen, ongeschild	+	+	< LOD	< LOD
G3LOC4FR2	Appels zonder klokhuis	Gewassen, geschild	+	+	< LOD	< LOD
G3LOC4VR3	Paprika	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC4VR3	Paprika	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC4BL3	Sla	Gewassen	2,3	1,3	< LOD	< LOD
G3LOC4BL3	Sla	Ongewassen	5,9	4,9	+	+
G3LOC4KN3	Wortels	Ongewassen, ongeschild	< LOD	+	+	+
G3LOC4KN3	Wortels	Gewassen, ongeschild	< LOD	< LOD	+	< LOD
G3LOC4KN3	Wortels	Gewassen, geschild	< LOD	< LOD	+	< LOD
G3LOC4FR3	Peren	Ongewassen, ongeschild	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC4FR3	Peren	Gewassen, ongeschild	+	< LOD	< LOD	< LOD
G3LOC4FR3	Peren	Gewassen, geschild	+	< LOD	< LOD	< LOD
G4LOC1VR	Courgette	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G4LOC1VR	Courgette	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G4LOC1BL	Sla	Gewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G4LOC1BL	Sla	Ongewassen	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G4LOC1KN	Wortels	Ongewassen, ongeschild	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD
G4LOC1KN	Wortels	Gewassen, ongeschild	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD

Locatie ¹	Product	Bereiding	Concentratie (ng/g)			
			GenX		PFOA	
			Meting 1	Meting 2	Meting 1	Meting 2
G4LOC1KN	Wortels	Gewassen, geschild	< LOD	< LOD	< LOD	< LOD

LOD: detectiegrens; + : concentratie tussen de grens voor kwantificatie en LOD

¹ Concentraties gemeten op locatie G3LOC4 zijn gebruikt in de innameberekeningen.

Bijlage 4. Statistische analyse van de GenX en PFOA concentraties in gewassen op de verschillende locaties

Inleiding

Moestuingegevens

Op 10 locaties in een gebied rond de fabriek van Chemours/Dupont en op een referentielocatie, zijn in moestuinen steekproeven genomen van drie soorten groenten. Het RIKILT WUR heeft deze groenten gemeten op de aanwezigheid van PFOA en GenX. Er is steeds een meting gedaan aan een ongewassen en aan een behandeld (gewassen en/of geschild) gewas. Alle metingen zijn in duplo uitgevoerd.

Vraagstelling

De vragen zijn:

1. Zijn er clusters te ontdekken in de moestuinlocaties op basis van de aangeleverde gegevens over het gehalte van PFOA in de diverse groentenmonsters?
2. Is er een verschil in de hoogte van het PFOA gehalte tussen gewassen en ongewassen producten?
3. Is er een verschil in de hoogte van het PFOA gehalte tussen de verschillende groentensoorten?

Dezelfde vragen gelden ook voor de analyse van GenX.

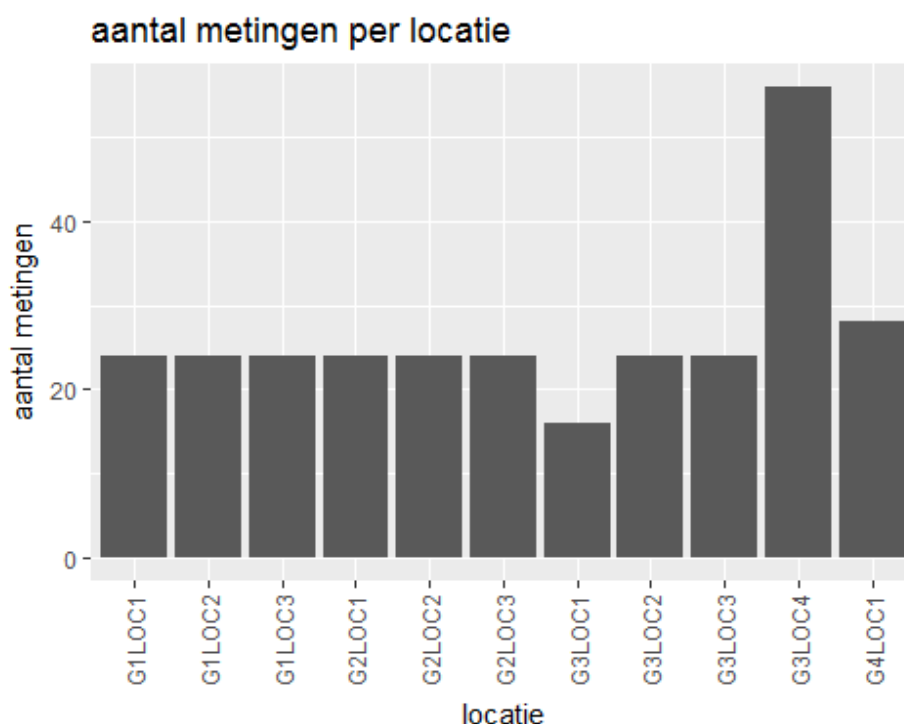
Data

De beschikbare data zijn gegeven in Bijlage 3. Van elk monster is in principe een gewassen en een ongewassen versie aanwezig en is deze in duplo gemeten voor GenX en PFOA (Meting1/Meting2). De variabele *Locatie* is de combinatie van de locatie waarop dit monster genomen is en het soort groente. Het soort groente wordt gegeven door de laatste twee letters van deze variabele en is als volgt gecodeerd:

BL = bladgroente
KN = knolgroente
VR = vruchtgroente

Er vallen een aantal dingen op.

1. Niet op alle locaties zijn evenveel monsters genomen. Bij sommige locaties ontbreken gewassen en op locatie G3LOC4 zijn veel meer monsters genomen dan op de andere locaties. Zie Figuur 4.1.
2. Enkele monsters van G3LOC4 betreffen appels (*FR*); dit zijn geen groenten en deze gegevens zijn niet meegenomen in deze analyse.
3. De gevonden concentraties zijn in de meeste gevallen geen getallen die gehalten (ng/g) representeren, maar zijn gerapporteerd als beneden de detectielimiet (<LOD) of onder de kwantificeringslimiet (LOQ) ligt, maar boven de LOD (+). In onderstaande berekeningen zijn de gehalten <LOD op 0 ng/g gezet en zijn de “+” resultaten zijn via verschillende opties meegenomen.



Figuur 4.1. Aantal gemeten monsters per locatie

Analyses PFOA concentraties

Vraag 1. Clusters van moestuinlocaties

In principe zijn voor iedere moestuin concentraties voor PFOA in gewassen beschikbaar (Tabel 4.1).

Tabel 4.1. Aantal PFOA metingen per combinatie van locatie, groentensoort en wel of niet (ja/nee) gewassen

Locatie	BL_ja	BL_nee	KN_ja	KN_nee	VR_ja	VR_nee
G1LOC1	2	2	2	2	2	2
G1LOC2	2	2	4	0	2	2
G1LOC3	2	2	4	0	2	2
G2LOC1	2	2	4	0	2	2
G2LOC2	2	2	4	0	2	2
G2LOC3	2	2	4	0	2	2
G3LOC1	0	0	4	0	2	2
G3LOC2	2	2	4	2	0	2
G3LOC3	2	2	4	0	2	2
G3LOC4	4	4	8	4	4	4
G4LOC1	2	2	4	2	2	2

Locatie G3LOC1 heeft voor drie *groentensoorten x gewassen* combinaties geen metingen. Deze locatie is daarmee ongeschikt om mee te nemen in het clusteringsalgoritme en is weggelaten in alle onderstaande clusteringsanalyses (PFOA en GenX).

Zoals eerder gesteld, zijn alle waarnemingen < LOD op 0 ng/g gezet. Voor de "+" resultaten zijn twee opties bekeken: 0,5 ng/g (= ½ LOQ) en 1 ng/g (= LOQ). Het nadeel van beide opties is dat alle "+" resultaten

op dezelfde waarde gezet worden, zodat er weinig variatie is. Er is echter geen a priori informatie waarom het ene "+" resultaat hoger of lager zou zijn dan het andere. De gebruikte statistische toetsingsmethoden zijn daar wel gevoelig voor, dus is het meest objectief om alle "+" resultaten gelijk te stellen.

Wanneer de "+" resultaten allemaal op 0,5 ng/g worden gezet kunnen de data worden geaggregeerd door het gemiddelde te nemen van de gevonden resultaten per *locatie x groentensoort x gewassen combinatie* (Tabel 4.2).

Tabel 4.2. Gemiddelde van de PFOA concentraties per locatie x groentensoort x gewassen combinatie waarbij "+" resultaten op 0,5 ng/g zijn gezet

location	BL_ja	BL_nee	KN_ja	KN_nee	VR_ja	VR_nee
G1LOC1	0,0	0,000	0,0000	0,0	0,00	0,00
G1LOC2	0,0	0,000	0,0000	NaN	0,00	0,00
G1LOC3	0,0	0,500	0,0000	NaN	0,00	0,00
G2LOC1	0,5	0,500	0,5000	NaN	0,50	0,50
G2LOC2	0,0	0,000	0,2500	NaN	0,00	0,00
G2LOC3	0,5	0,500	0,5000	NaN	0,00	0,00
G3LOC1	NaN	NaN	0,5000	NaN	0,00	0,00
G3LOC2	0,5	0,500	0,5000	0,0	NaN	0,00
G3LOC3	0,0	0,000	0,5000	NaN	0,00	0,00
G3LOC4	0,0	0,375	0,9125	1,5	0,25	0,25
G4LOC1	0,0	0,000	0,0000	0,0	0,00	0,00

Voor de ongewassen knolgroenten (KN_nee) zijn maar voor vier locaties gegevens. Dat is te weinig voor het clusteringsalgoritme. Deze gegevens zijn daarom niet meegenomen in de clusteringsanalyses. Daarnaast zijn op de locatie G3LOC2 voor de gewassen vruchtgroenten (VR_ja) geen gegevens beschikbaar zijn. Deze kunnen op de volgende manieren worden meegenomen:

- Stel de gemiddelde concentraties van de gewassen vruchtgroenten op locatie G3LOC2 gelijk aan 0 ng/g
- Stel de gemiddelde concentratie van de gewassen vruchtgroenten op locatie G3LOC2 gelijk aan dezelfde waarde als de "+" meting (0,5 of 1 ng/g)
- Laat de gewassen vruchtgroenten weg uit de clusteringsanalyse
- Laat de locatie G3LOC2 weg uit de clusteringsanalyse.

Methode

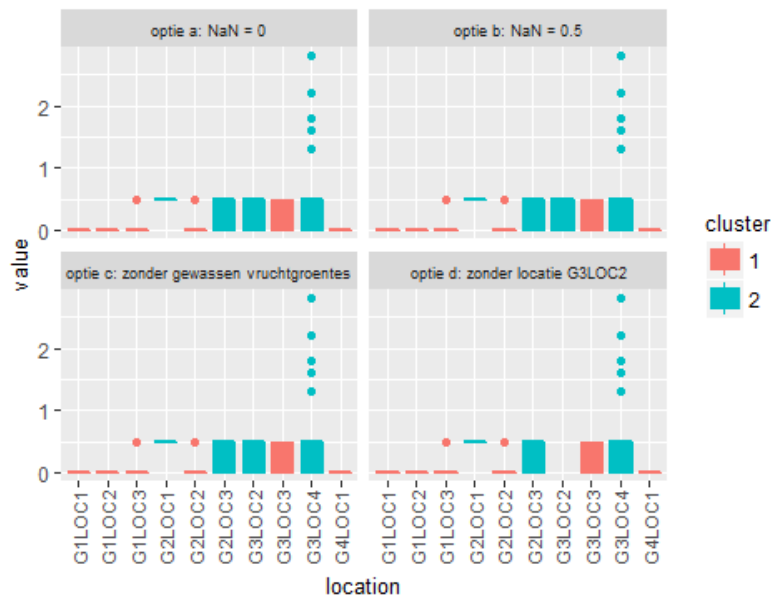
Op de resterende gemiddelde PFOA concentraties per *locatie x groentensoort x gewassen combinatie* is het k-means clusteralgoritme (Hartigan & Wong, 1979) toegepast voor verschillende a priori vastgesteld aantal clusters. Gebaseerd op de gevonden clusters is vervolgens een lineair model gefit op de gemeten concentraties. Daarbij is geprobeerd om de gemeten concentraties te verklaren met de gevonden clusters. De kwaliteit van de fit is hierbij uitgedrukt in de Bayesian Information Criterion (BIC). Het optimale aantal clusters wordt gevonden als zijnde het aantal clusters waarbij de BIC het kleinste is. Voor het optimale aantal clusters wordt dan een figuur gemaakt, waarbij de boxplots van elke locatie per cluster een aparte kleur krijgen.

De hierboven beschreven aanpak is uitgevoerd voor twee verschillende opties: de "+" resultaten zijn 0,5 of 1 ng/g.

Resultaten

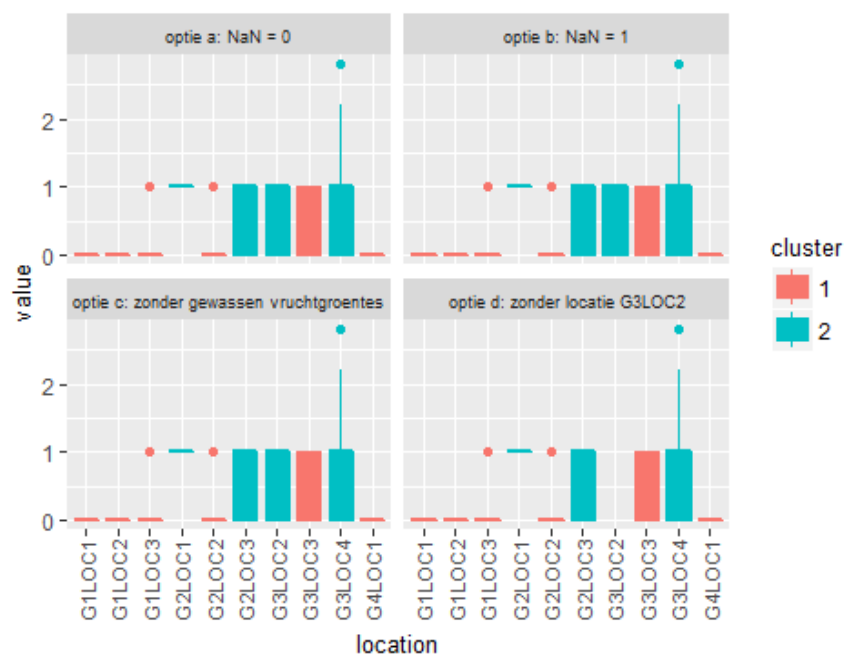
Resultaten zijn weergegeven in Figuren 4.2 en 4.3.

clustering locations by PFOA measurements ("+" = 0.5)



Figuur 4.2. Het clusteren van locaties op basis van de gemeten PFOA concentraties voor de opties a t/m d zoals beschreven in de tekst, waarbij voor optie b de "+" resultaten gelijk zijn gesteld aan 0,5 ng/g

clustering locations by PFOA measurements ("+" = 1)



Figuur 4.3. Het clusteren van locaties op basis van de gemeten PFOA concentraties voor de opties a t/m d zoals beschreven in de tekst, waarbij voor optie b de "+" resultaten gelijk zijn gesteld aan 1 ng/g

Conclusies

Wanneer de "+" resultaten gelijk worden gesteld aan 0,5 ng/g, dan is voor drie van de vier opties het optimale aantal clusters op basis van het k-means cluster algoritme gelijk aan twee. Het ene cluster bevat steeds de vier locaties G2LOC1, G2LOC3, G3LOC2 en G3LOC4 en het andere cluster de overige zes locaties. Bij de optie om bij de clustering ook locatie G3LOC2 weg te laten, is het optimale aantal clusters nog steeds twee. Echter, dan bevat het ene cluster nog maar de drie locaties G2LOC1, G2LOC3 en G3LOC4 en het andere weer de overige zes. Wanneer de "+" resultaten gelijk zijn aan 1 ng/g, verandert de conclusie niet.

Vraag 2. Invloed van wassen op de concentraties van PFOA

Er is getoetst of de gevonden PFOA concentraties significant verschillen tussen de gewassen en ongewassen groenten, rekening houdend dat de metingen van dezelfde locatie kunnen komen en dat van dezelfde groenten een gewassen en ongewassen versie bestaat.

Methode

Voor het toetsen van het effect van het wassen van groenten op de hoogte van PFOA concentraties wordt een lineair gemengd model gefit aan de PFOA concentraties, waarbij de variabele gewassen (ja/nee) als fixed effect wordt opgenomen en locatie en de monstercode (die aangeeft om welk gewas het gaat en op welke locatie) als random effect. De p-waarde van het fixed effect in het model wordt steeds gerapporteerd bij een figuur waarbij de gecorrigeerde gemiddelde PFOA concentratie bij gewassen en ongewassen groenten wordt gevisualiseerd. Hierbij is gecorrigeerd voor de clustering van de PFOA bepalingen binnen locatie en monstercode.

Ook bij deze analyses worden weer twee opties bekeken: alle "+" resultaten gelijk aan 0.5 of 1 ng/g.

Resultaten

Resultaten zijn weergegeven in Figuur 4.4.



Figuur 4.4. Invloed van wassen op de gemeten PFOA concentraties, waarbij de "+" resultaten gelijk zijn gesteld aan 0,5 of 1 ng/g

Conclusies

Wanneer de "+" resultaten gelijk gesteld worden aan 0,5 ng/g, is de p-waarde gelijk aan 0,023. Dit betekent dat de nul-hypothese (het gemiddelde van de PFOA concentraties is niet verschillend tussen gewassen en ongewassen groenten) wordt verworpen bij een significantieniveau van 5%. Er is dus voldoende bewijs dat het verschil tussen gewassen en ongewassen groenten niet slechts op toeval berust. Als de "+" resultaten op 1 ng/g gezet worden, is de p-waarde gelijk aan 0,063. De nul-hypothese wordt nu niet meer verworpen bij een significantieniveau van 5%. Het gevonden verschil tussen de PFOA concentraties van gewassen en ongewassen groenten zou in dit geval ook door toeval kunnen komen.

Vraag 3. Verschillen in concentraties van PFOA tussen groentesoorten

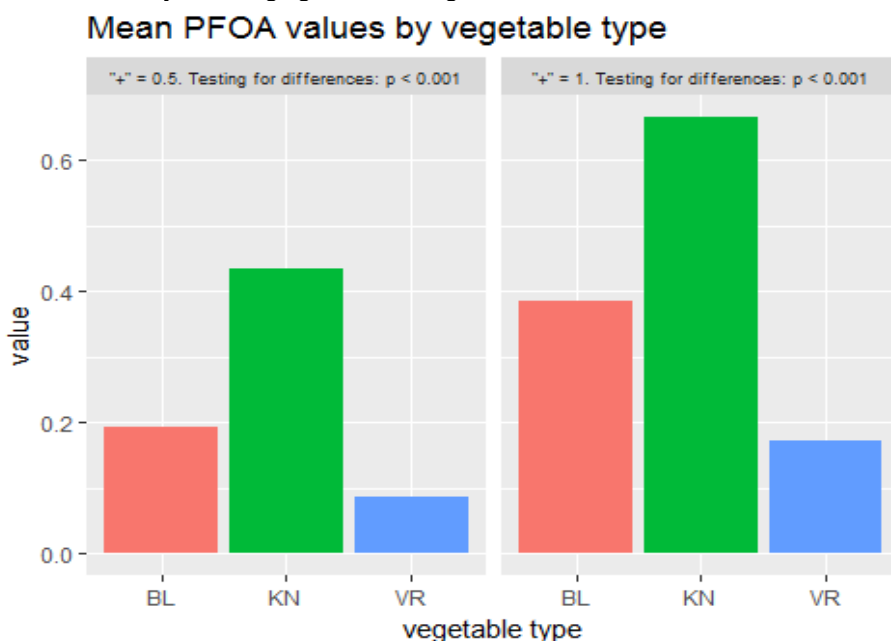
Er is getoetst of de gevonden PFOA concentraties significant verschillen tussen de soorten groenten (bladgroenten (BL), knolgroenten (KN) en vruchtgroenten (VR)), rekening houdend dat de metingen van dezelfde locatie kunnen komen.

Methode

Voor het toetsen van het effect van de soort groenten op de hoogte van PFOA concentraties is een lineair gemengd model gefit aan de PFOA concentraties, waarbij het type groente (BL/KN/VR) als fixed effect is opgenomen en locatie als random effect. De p-waarde van het fixed effect in het model is steeds gerapporteerd bij een figuur waarbij de gemiddelde PFOA concentraties per type groente gevisualiseerd is. De "+" resultaten zijn meegenomen als 0,5 of 1 ng/g.

Resultaten

Resultaten zijn weergegeven in Figuur 4.5.



Figuur 4.5. Gemiddelde gemeten PFOA concentraties per groentesoort waarbij de "+" resultaten gelijk zijn gesteld aan 0,5 of 1 ng/g

Conclusies

Ongeacht de concentratie toegekend aan de "+" resultaten, is de gevonden p-waarde $< 0,001$. De nul-hypothese (PFOA concentraties verschillen niet tussen de verschillende soorten groenten) wordt verworpen bij een significantieniveau van 5%. Er is dus voldoende bewijs dat het verschil tussen de soorten groenten niet slechts op toeval berust.

Analyses GenX concentratie data

De analyses van de GenX gegevens gaat op identieke manier als de analyse van de PFOA gegevens.

Vraag 1. Clusters van moestuinlocaties

De aantallen GenX metingen zijn hetzelfde als bij de PFOA metingen. Zie hiervoor Tabel 4.1. Locatie G3LOC1 wordt ook hier niet meegenomen in de clusteringsanalyses en de concentraties $< \text{LOD}$ worden gelijkgesteld aan 0 ng/g. Wanneer de "+" resultaten op 0,5 ng/g worden gezet, kunnen de gemiddelde GenX concentraties per *locatie x groentensoort x gewassen combinatie* berekend worden (Tabel 4.3).

Tabel 4.3. Gemiddelde van de GenX concentraties per locatie x groentensoort x gewassen combinatie waarbij "+" resultaten op 0,5 ng/g zijn gezet

Locatie	BL_ ja	BL_ nee	KN_ ja	KN_ nee	VR_ ja	VR_ nee
G1LOC1	0,95	1,150	0,5000	0,25	0,000	0,00
G1LOC2	0,00	0,000	0,5000	NaN	0,000	0,00
G1LOC3	0,00	0,000	0,0000	NaN	0,000	0,00
G2LOC1	0,00	0,000	0,0000	NaN	0,000	0,00
G2LOC2	0,00	0,000	0,2500	NaN	0,000	0,00
G2LOC3	0,00	0,000	0,0000	NaN	0,000	0,00
G3LOC1	NaN	NaN	0,5000	NaN	0,000	0,00
G3LOC2	1,70	2,800	0,1250	0,00	NaN	0,00
G3LOC3	0,00	0,000	0,0000	NaN	0,000	0,00
G3LOC4	1,15	2,825	0,3375	1,35	1,475	1,65
G4LOC1	0,00	0,000	0,0000	0,00	0,000	0,00

Voor de ongewassen knolgroenten (KN_nee) zijn er maar voor vier locaties gegevens beschikbaar. Dat is te weinig voor het clusterings algoritme, en deze gegevens zijn dus niet meegenomen in de clusteringsanalyses. Op locatie G3LOC2 zijn er voor de gewassen vruchtgroenten (VR_ja) geen gegevens beschikbaar. Deze kunnen op de volgende manieren worden meegenomen:

1. Stel de gemiddelde concentraties van de gewassen vruchtgroenten op locatie G3LOC2 gelijk aan 0 ng/g
2. Stel de gemiddelde concentratie van de gewassen vruchtgroenten op locatie G3LOC2 gelijk aan dezelfde waarde als de "+" meting (0,5 of 1 ng/g)
3. Laat de gewassen vruchtgroenten weg uit de clusteringsanalyse
4. Laat de locatie G3LOC2 weg uit de clusteringsanalyse.

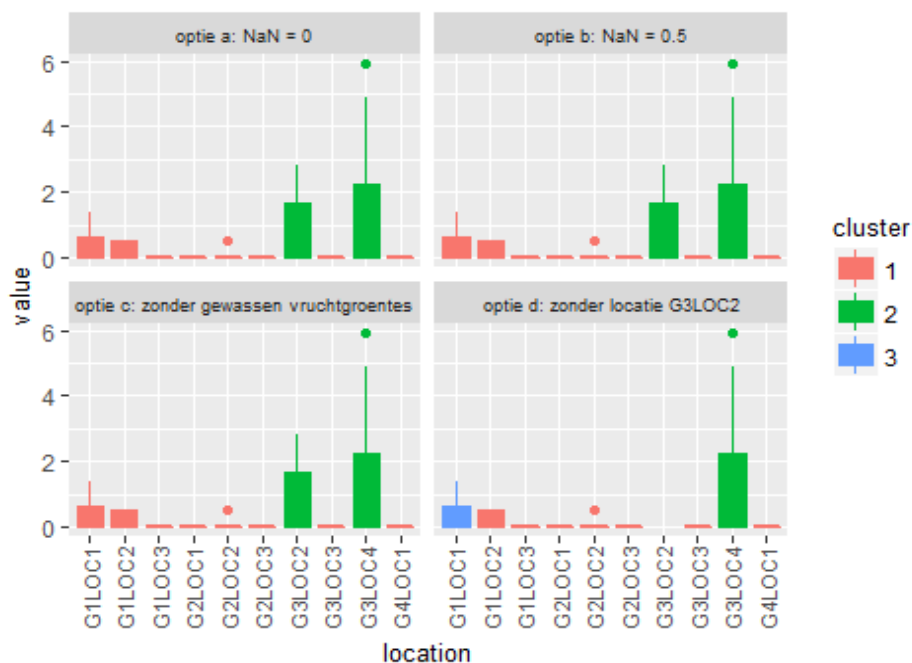
Methode

De methode is identiek aan die bij de clustering van de PFOA concentraties.

Resultaten

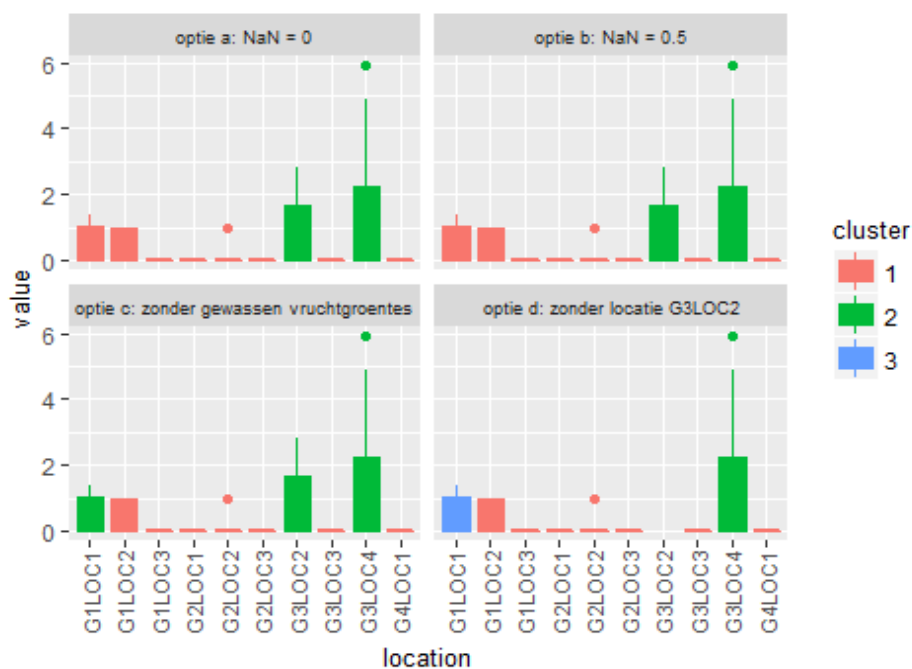
Resultaten zijn weergegeven in Figuren 4.6 en 4.7.

clustering locations by GenX measurements ("+" = 0.5)



Figuur 4.6. Het clusteren van locaties op basis van de gemeten GenX concentraties voor de opties a t/m d zoals beschreven in de tekst, waarbij voor optie b de "+" resultaten gelijk zijn gesteld aan 0,5 ng/g

clustering locations by GenX measurements ("+" = 1)



Figuur 4.7. Het clusteren van locaties op basis van de gemeten GenX concentraties voor de opties a t/m d zoals beschreven in de tekst, waarbij voor optie b de "+" resultaten gelijk zijn gesteld aan 1 ng/g

Conclusies

Wanneer de "+" resultaten gelijk worden gesteld aan 0,5 ng/g, dan is voor drie van de vier opties het optimale aantal clusters op basis van het k-means cluster algoritme gelijk aan twee. Het ene cluster bevat steeds de twee locaties (G3LOC2 en G3LOC4) en het andere de overige acht locaties. Bij het weglaten van ook locatie G3LOC2 weg te laten, is het optimale aantal clusters drie. Een cluster bevat alleen de locatie G3LOC4, een tweede cluster alleen locatie G1LOC1 en de derde de overige zeven locaties. bevat.

Wanneer de "+" resultaten gelijk worden gesteld aan 1 ng/g, verandert de conclusie niet. Slechts de optie om de gewassen vruchtgroenten weg te laten, resulteert in een klein verschil. Weliswaar zijn er dan weer twee clusters maar nu bevat het ene cluster naast locaties G3LOC4 en G3LOC2 ook locatie G1LOC1. Het andere cluster bestaat dan uit de overige zeven locaties.

Vraag 2. Invloed van wassen op de concentraties van GenX

Er is getoetst of de gevonden GenX concentraties significant verschillen tussen de gewassen en ongewassen groenten, rekening houdend dat de metingen van dezelfde locatie kunnen komen en dat van dezelfde groenten een gewassen en ongewassen versie bestaat.

Methode

De methode is identiek aan die gebruikt voor de PFOA concentraties.

Resultaten

Resultaten zijn weergegeven in Figuur 4.8.



Figuur 4.8. Invloed van wassen op de gemeten GenX concentraties, waarbij de "+" resultaten gelijk zijn gesteld aan 0,5 of 1 ng/g

Conclusies

Bij beide opties ("+" resultaten gelijk aan 0,5 of 1 ng/g) is de p-waarde < 0,05. De nul-hypothese (het gemiddelde van de GenX concentraties is niet verschillend tussen gewassen en ongewassen groenten) wordt

verworpen bij een significantieniveau van 5%. Er is dus voldoende bewijs dat er een effect is van het wassen van de groenten op de hoogte van de GenX concentraties.

Vraag 3. Verschillen in concentraties van GenX tussen groentesoorten

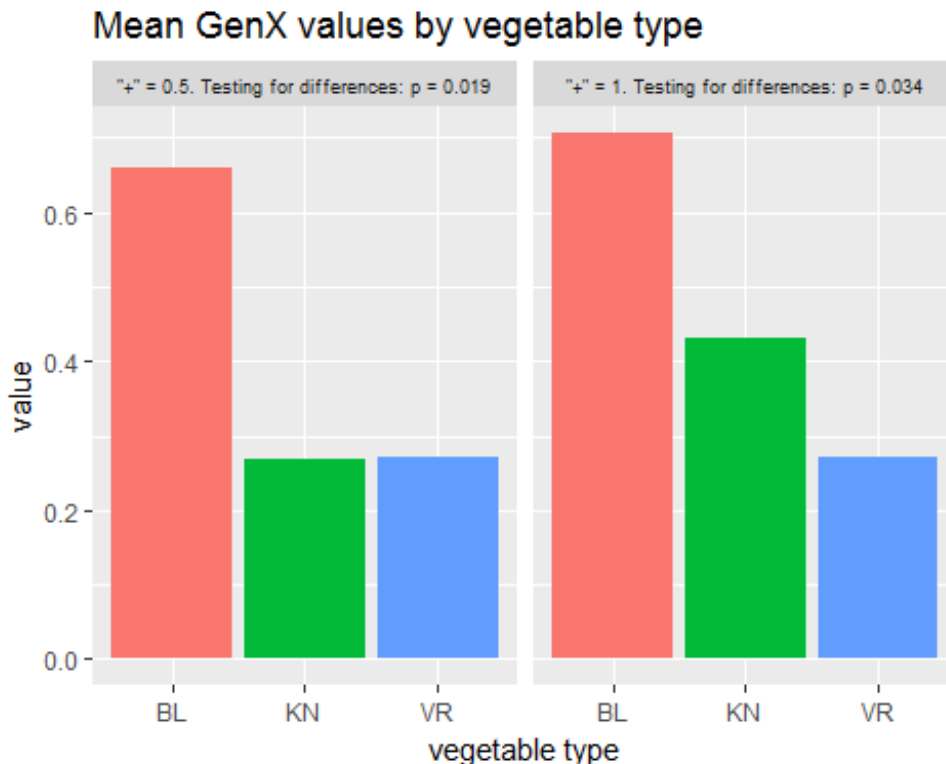
Er is getoetst of de gevonden GenX concentraties significant verschillen tussen de soorten groenten (bladgroenten (BL), knolgroenten (KN) en vruchtgroenten (VR)), rekening houdend dat de metingen van dezelfde locatie kunnen komen.

Methode

De methode is identiek aan die gebruikt voor de PFOA concentraties.

Resultaten

Resulten zijn weergegeven in Figuur 4.9.



Figuur 4.9. Gemiddelde gemeten GenX concentraties per groentesoort waarbij de "+" resultaten gelijk zijn gesteld aan 0,5 of 1 ng/g

Conclusies

Ongeacht de concentratie toegekend aan de "+" resultaten, is de gevonden p-waarde < 0,05. De nul-hypothese (GenX concentraties verschillen niet tussen de verschillende soorten groenten) wordt verworpen bij een significantieniveau van 5%. Er is dus voldoende bewijs dat er een effect is van het soort groenten op de hoogte van de GenX concentraties.

Bijlage 5. Berekeningen met APROBA-Plus (calculations with APROBA-Plus)

Bijlage 5A. PFOA

The critical endpoint for PFOA as used in APROBA-plus was relative liver weight observed in a subchronic study in rats with a NOAEL of 0.06 mg/kg BW (Zeilmaker et al., 2016). The uncertainty in the NOAEL was covered by the default uncertainty distribution from WHO-IPCS (2014). See Table 5A.2, NOAEL to BMD).

The interspecies scaling was set to 1, as we used chemical-specific information on the scaling from rat to human, using a factor based on toxicokinetic modeling to translate the internal dose in rats to the internal dose in humans after lifelong exposure, based on information of the half-lives in rats and humans (Zeilmaker et al., 2016). This factor was estimated to be around 60. Based on the mild variation in reported half-lives the uncertainty in the factor was estimated to be a factor of 2, resulting in 30 and 120 as lower and upper bounds, respectively. See Table 5A.2, additional aspect #1. To cover remaining interspecies differences in toxicodynamics, we applied an uncertainty distribution with range (0.33-3.0), see Table 5A.2.

The uncertainty for extrapolating subchronic to chronic exposure was covered by the default distribution from WHO-IPCS (2014), with range (0.5-8.0) see Table 5A.2. Finally, the intraspecies variation/uncertainty was covered with the default distribution from WHO-IPCS, with a range of (2.24-41.88).

Table 5A.3 shows the relative contributions to the total uncertainty related to the individual aspects. Finally, Table 5A.4 shows the input values for the exposure as used in the current analysis.

Table 5A.1. PFOA: APROBA-Plus inputs related to (animal) study, endpoint and protection goals.

Description	Inputs	Common value(s)
End-point	Relative liver weight	Case-specific
Data type	Continuous	Case-specific
Data route	Oral	Case-specific
Study type	Subchronic	Case-specific
Test species	Rat	Case-specific
Body weight test species (kg)	0.40	0.4
Human median body weight (kg)	60.00	60
Target BMR (= M, user input for BMDLs only)	5%	5%
Population incidence goal (= I)	1%	5%, 1%, 0.1%, 0.01%

Description	Inputs	Common value(s)
Probabilistic coverage goal	95%	95%
PoD type	NOAEL	Case-specific
PoD value	0.06	Case-specific
BMDU (User input for BMDL PoDs)		Leave blank if PoD is NOAEL
PoD units	mg/kg body weight per day	mg/kg bw/day
Deterministic overall AF	4800,00	Case-specific
Deterministic RfD	0.0000125	Calculated
Exposure estimate (optional)	1.00	User supplied

Table 5A.2. PFOA: APROBA-Plus inputs related to variability and uncertainty of the hazard characterisation of PFOA.

Hazard characterization aspect		Inputs	Provisional value(s)
PoD	LCL	0.06	Calculated from inputs
(Modelled BMD uncertainty)	UCL	0.06	Calculated from inputs
NOAEL to BMD	LCL	0.0709	0.0709
(NOAEL only)	UCL	1.57	1.57
Interspecies scaling	LCL	1.00	3.68
(Allometric for oral)	UCL	1.00	5.49
Interspecies TK/TD	LCL	0.333	0.333
(Remaining TK & TD)	UCL	3.00	3.00
Duration extrapolation	LCL	0.50	0.50
	UCL	8.00	8.00
Intraspecies	LCL	2.24	2.24
	UCL	41.88	41.88
Other aspect #1	LCL	30.00	1.00
(lifelong accumulation)	UCL	120.00	1.00
Other aspect #2	LCL	1.00	1.00
(Description here)	UCL	1.00	1.00
Other aspect #3	LCL	1.00	1.00
(Description here)	UCL	1.00	1.00

Table 5A.3. PFOA: Contribution of the various sources of uncertainty to the overall uncertainty in the APROBA hazard assessment of PFOA.

Aspect	To overall uncertainty
PoD	--
NOAEL to BMD	29%
Interspecies scaling	--
Interspecies TK/TD	15%
Duration extrapolation	24%
Intraspecies	26%
Other aspect #1	6%
life-long accumulation	

Table 5A.4. PFOA: APROBA-Plus inputs related to the exposure assessment of PFOA.

Exposure unit: mg/kg bw/day						
		reported exposure		expert opinion on limits		deterministic
Description	Inputs	Lcl	Ucl	Extra lcl	Extra ucl	Exposure
Exposure #1	PFOA, 2-69y	0.00000084	0.00001219	0.00000084	0.00001219	0.00001219

Bijlage 5B. GenX

The critical endpoint for GenX as used in APROBA-plus was the globulin/albumin ratio observed in a chronic study in rats (Beekman et al., 2016). Although the dose-response data for this endpoint were not reported in the study, we used the default uncertainty distribution from WHO-IPCS (2014) to cover the uncertainty in the NOAEL (see Table 5B.2, NOAEL to BMD).

The interspecies scaling was treated in the same way as in PFOA, but the uncertainty for the toxicokinetic factor (related to the accumulation during the longer lifespan in humans) was assumed to be larger, as this factor was based on the assumption that it was similar to that in PFOA, without good information on GenX itself. Therefore, the uncertainty range for GenX was set at (15-240). See Table 5B.2, additional aspect #1)

The other uncertainties were set at the same values as in PFOA, see Table 5B.2.

Table 5B.3 shows the relative contributions to the total uncertainty related to the individual aspects. Finally, Table 5B.4 shows the input values for the exposure as used in the current analysis.

Table 5B.1. GenX: APROBA-Plus inputs related to (animal) study, endpoint and protection goals.

Description	Inputs	Common value(s)
End-point	albumine/globuline	Case-specific
Data type	Continuous	Case-specific
Data route	Oral	Case-specific
Study type	Chronic	Case-specific
Test species	Rat	Case-specific
Body weight test species (kg)	0.45	0.4
Human median body weight (kg)	60.00	60
Target BMR (= <i>M</i> , user input for BMDLs only)	5%	5%
Population incidence goal (= <i>I</i>)	1%	5%. 1%. 0.1%. 0.01%
Probabilistic coverage goal	95%	95%
PoD type	NOAEL	Case-specific
PoD value	0.10	Case-specific
BMDU (User input for BMDL PoDs)		Leave blank if PoD is NOAEL
PoD units	mg/kg bw/day	mg/kg bw/day
Deterministic overall AF	4752.00	Case-specific
Deterministic RfD	0.0000210	Calculated
Exposure estimate (optional)	1.00	User supplied

Table 5B.2. APROBA-Plus inputs related to variability and uncertainty of the hazard characterisation of GenX.

Hazard characterization aspect		Inputs	Provisional value(s)
PoD	LCL	0.10	Calculated from inputs
(Modelled BMD uncertainty)	UCL	0.10	Calculated from inputs
NOAEL to BMD	LCL	0.0709	0.0709
(NOAEL only)	UCL	1.57	1.57
Interspecies scaling	LCL	1.00	3.57
(Allometric for oral)	UCL	1.00	5.28
Interspecies TK/TD	LCL	0.333	0.333
(Remaining TK & TD)	UCL	3.00	3.00
Duration extrapolation	LCL	1.00	1.00
	UCL	1.00	1.00
Intraspecies	LCL	2.24	2.24
	UCL	41.88	41.88
Other aspect #1	LCL	15.00	1.00
(lifelong accumulation)	UCL	240.00	1.00
Other aspect #2	LCL	1.00	1.00
(Description here)	UCL	1.00	1.00

Hazard characterization aspect		Inputs	Provisional value(s)
Other aspect #3	LCL	1.00	1.00
(Description here)	UCL	1.00	1.00

Table 5B.3. Contribution of the various sources of uncertainty tot he overall uncertainty in the APROBA hazard assessment of GenX.

Aspect	Contribution to overall uncertainty
PoD	--
NOAEL to BMD	31%
Interspecies scaling	--
Interspecies TK/TD	16%
Duration extrapolation	--
Intraspecies	28%
Other aspect #1	25%
lifelong accumulation	

Table 5B.4. APROBA-Plus inputs related to the exposure assessment of GenX.

Exposure unit: mg/kg body weight per day						
		reported exposure		expert opinion on limits		deterministic
Description	Inputs	Lcl	Ucl	Extra lcl	Extra ucl	Exposure
exposure #1	GenX, 2-69y, P95	0,00000518	0,00002099	0,00000518	0,00002099	0,00002099

RIVM

De zorg voor morgen begint vandaag