

Originalarbeiten

Untersuchung der personenbezogenen Luft im Atembereich auf über 70 flüchtige organische Verbindungen

Vergleich von Tankstellen-Anwohnern mit Kontrollpersonen

¹Ursel Heudorf, ²Detlef Ullrich, ²Ly Ung

¹Abteilung Umweltmedizin und Hygiene am Gesundheitsamt Frankfurt/M., Braubachstraße 18-22, D-60311 Frankfurt

²Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Umweltbundesamtes, Corrensplatz 1, D-14195 Berlin

Korrespondenzautor: Dr. med. Ursel Heudorf

Zusammenfassung

Im Zusammenhang mit einer Studie zur BTXE-Belastung (Benzol, Toluol, Xylole, Ethylbenzol) im Wohnumfeld von Tankstellen in Frankfurt am Main (Außenluft, Raumluft, Benzol im Blut, t,t-Muconsäure im Urin) wurde im Sommer 1996 auch die mittels personal sampler gesammelte personenbezogene Luft im Atembereich von 13 Tankstellenanwohnern und von 6 Kontrollpersonen auf insgesamt 70 flüchtige organische Verbindungen untersucht.

Die mittlere Belastung mit Alkanen und Cycloalkanen lag bei allen Einzelsubstanzen unter $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die durchschnittlichen Konzentrationen an Benzol, m/p-Xylol und Toluol betrug $4,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $6,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $34 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle übrigen Aromaten wiesen eine mittlere Belastung von unter $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf. Sämtliche halogenierten Kohlenwasserstoffe lagen im Mittel unter $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Die mittlere Belastung der personenbezogenen Luft im Atembereich von Tankstellenanwohnern unterschied sich nicht von der Belastung einer kleinen Gruppe von Kontrollpersonen. Die Belastung war insgesamt gering, einzelne Maximalwerte konnten durch spezifische berufliche oder private Belastungen (z.B. Renovieren der Wohnung während des Untersuchungszeitraums, Rauchen) erklärt werden. Im Vergleich mit den Ergebnissen des Umweltsurveys 1990/91 wurden bei allen Einzelsubstanzen deutlich niedrigere Mittelwerte bestimmt; jahreszeitliche Unterschiede während der Probenahmeperiode sind hier die wahrscheinlich bedeutendste Ursache.

Schlagwörter: Atemluft, BTXE-Belastung; BTXE (Benzol, Toluol, Xylole, Ethylbenzol); leichtflüchtige organische Verbindungen, Atemluft; personal sampler, leichtflüchtige organische Verbindungen; Tankstellen, BTXE-Belastung

Abstract

As part of a study dealing with the concentration of benzene, toluene, xylene, and ethylbenzene in the neighbourhood of filling stations (indoor and outdoor air, benzene in the blood, t, t-muconous acid in urine), a total of about 70 volatile organic compounds were analysed in the "personal air" (personal sampler) of 13 persons living in the neighbourhood of the filling stations and 6 control persons during the summer of 1996.

The mean concentrations of alkene and cycloalkene were below $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. The mean concentrations of benzene, m/p-xylene and toluene were $4.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $6.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$, and $34 \mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. The mean contamination of all other substances was below $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$, halogenated hydrocarbons were below $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

The mean VOC-concentrations in the personal air of those persons living next to the filling stations and that seen in the control persons were not different. On the whole, the concentrations of total volatile organic substances were low, all the higher values could be explained by individual occupational or private activities (e.g. redecoration of the flat or smoking). Compared with the data of the "environmental survey" 1990/91, all substances revealed substantially lower mean values; we suggest that seasonal differences in the study time may be the main cause.

Keywords: Air, BTXE exposure; BTXE (benzene, toluole, xylene, ethylbenzene); BTXE exposure, air; BTXE exposure, filling stations; filling stations, BTXE exposure; halogenated hydrocarbons, air; personal sampler, halogenated hydrocarbons

1 Einleitung

Im Winter 1993 hatte das Gesundheitsamt der Stadt Frankfurt am Main in Wohnungen im Umfeld von Tankstellen eine etwa doppelt so hohe Benzolbelastung der Raumluft wie in Kontrollwohnungen gefunden [1]. In der Zwischenzeit sind die 20. und die 21. Bundesimmissionschutzverord-

nung in Kraft getreten – die Gaspengel- und Gasrückführungsverordnung [2,3]. Im Rahmen einer Folgeuntersuchung [4] im Sommer 1996 wurde u.a. geprüft, ob Emissionen von Tankstellen einen meßbaren (qualitativ und/oder quantitativ) Einfluß auf die Raumluftqualität der Wohnungen in der Nachbarschaft haben. In der hier beschriebenen Ergänzungsstudie wurde unter dieser Fragestellung gleichzeitig die

personenbezogene Luft im Atembereich der Anwohner von Tankstellen und von Personen eines Vergleichskollektivs auf ca. 70 flüchtige organische Verbindungen untersucht. Die gemeinsam vom Gesundheitsamt der Stadt Frankfurt am Main und dem Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Umweltbundesamtes erarbeiteten Ergebnisse wurden auch mit entsprechenden Daten aus dem Umweltsurvey von 1990/1991 [5] verglichen.

2 Probanden und Methoden

1993 hat das Gesundheitsamt aus der Gesamtheit der Tankstellen in Frankfurt am Main Tankstellen mit Wohnbebauung in unmittelbarer Nachbarschaft ermittelt und die Anwohner dieser Tankstellen zur freiwilligen Teilnahme an einem Untersuchungsangebot zur Immissionsbelastung durch die benachbarte Tankstelle aufgefordert. Dies führte zur Untersuchung von 32 Wohnungen im Umfeld von 12 Tankstellen. Die Belastungsdaten wurden mit 7 Kontrollwohnungen von Mitarbeitern des Gesundheitsamtes verglichen.

1996 wurden die früheren Teilnehmer – Tankstellenanwohner und Kontrollen – gebeten, an der Nachuntersuchung inklusive einer Untersuchung der personenbezogenen Umgebungsluft auf 70 leichtflüchtige Kohlenwasserstoffe teilzunehmen. 13 Anwohner von Tankstellen sowie 6 Kontrollpersonen nahmen das Angebot der Untersuchung der personenbezogenen Luft im Atembereich an, 9 Männer und 10 Frauen, insgesamt 7 Raucher und 12 Nichtraucher, darunter 7 "echte" Nichtraucher und 5 Passivraucher. Das durchschnittliche Alter lag bei 41,4 Jahren (25 bis 77 Jahre; Tankstellenanwohner 40 ± 14 Jahre, Kontrollpersonen 43 ± 7 Jahre). Vier der Tankstellenanwohner (30%) und zwei der Kontrollpersonen (33%) gaben an, regelmäßig mehr als 1 Zigarette pro Tag zu rauchen. Eine Kontrollperson mit einem Zigarettenkonsum von ab und an 1 Zigarette bezeichnete sich als Gelegenheits-Raucher.

Nach ausführlicher Einweisung trugen die Teilnehmer über 7 Tage tagsüber in Kopfnähe einen Passivsammler, der nachts auf den Nachttisch gelegt wurde (Passivsammler OVM-3500, Fa. 3M Company, St. Paul, bereitgestellt vom Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Umweltbundesamtes, Berlin). Zur Überprüfung der Frage, ob eine 2-tägige Sammelperiode vergleichbare Ergebnisse wie die 7-Tagesperiode liefert, trug eine Untergruppe von fünf Teilnehmern darüber hinaus einen zweiten Passivsammler während der letzten beiden Untersuchungstage.

Die Passivsammler wurden am Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Umweltbundesamtes in Anlehnung an die VDI-Methoden 3482, Blatt 4, sowie 3864, Blatt 1, "Probenahme durch Anreicherung an Aktivkohle, Desorption mit Lösemittel" aufbereitet: Nach Aufgabe von Cyclooctan und 1,2,3-Trichlorpropan als interne Standards und Elution der flüchtigen organischen Substanzen (volatile organic compounds, VOC) mit Schwefelkohlenstoff wurden die Eluate

gaschromatographisch untersucht (Hewlett-Packard 5890 mit FID (Flammen-Ionisations-Detektor) und ECD (Elektronen-Einfang-Detektor); 50 m Kapillartrennsäule mit Methylsilikon (HP Ultra 1; Probenaufgabe mit splitless-Modus über einen Autosampler, Tieftemperaturzusatz mit Temperaturprogramm ab 0°C) [6]. Analysiert wurden 74 flüchtige organische Verbindungen. Die Nachweisgrenze bei einer einwöchigen Probenahmezeit betrug bei den VOC $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, bei den halogenierten Kohlenwasserstoffen $0,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Bei der zweitägigen Probenahmezeit erhöhte sich die Nachweisgrenze der VOC auf $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$, der halogenierten Kohlenwasserstoffe auf $0,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Während der Sammelperiode führten die Teilnehmer ein Aufenthaltsprotokoll und füllten den speziellen Fragebogen zur Ermittlung der individuellen Exposition aus, die beide der Vergleichbarkeit wegen unverändert dem Umweltsurvey 1990/91 [5] entnommen wurden. Die Teilnehmer sollten während der Sammelperiode ihre übliche Lebensführung beibehalten.

3 Ergebnisse

In **Tabelle 1** sind die geometrischen Mittelwerte und die Maximalwerte der 13 Tankstellenanwohner und der 6 Kontrollpersonen zusammengestellt (7-Tage-Mittelwerte). "n" bedeutet die Anzahl der Befunde über der Nachweisgrenze. Für die Berechnung des geometrischen Mittelwerts wurden Befunde unter der Nachweisgrenze mit der halben Nachweisgrenze berechnet. In **Abbildung 1 a-d** sind die geometrischen Mittelwerte der analysierten Substanzen bei den Tankstellenanwohnern und den Kontrollpersonen im Vergleich mit den Teilnehmern des Umweltsurveys graphisch dargestellt.

Die Belastung mit *Alkanen* und *Cycloalkanen* war allgemein gering und lag im Mittel in beiden Gruppen $< 3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Einzelne hohe Maximalwerte (n-Undecan $39,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$, n-Dodecan $25,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) bei einem Tankstellenanwohner konnten auf Renovierungsarbeiten in der Wohnung während des Untersuchungszeitraums zurückgeführt werden.

Die Konzentrationen an *Aromaten* war in beiden Gruppen im Mittel vergleichbar, die höchste mittlere Belastung wurde in beiden Gruppen – wie erwartet – bei Toluol festgestellt. Die höchste Benzolbelastung ($10,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) wurde bei einem Kettenraucher gemessen, der erwartungsgemäß auch eine relativ hohe Styrolbelastung aufwies. Der Maximalwert von Toluol ($458 \mu\text{g}/\text{m}^3$) wurde bei einer Frau erhalten, die in einer Schuhfabrik arbeitete. Die bei einem anderen Teilnehmer festgestellten maximalen Belastungen von Ethylbenzol ($11,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$), m/p-Xylol ($28,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und o-Xylol ($9,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) waren wieder durch Renovierungsarbeiten während des Untersuchungszeitraums bedingt.

Die Belastung mit *Terpenen* war in der Gruppe der Tankstellenanwohner im Mittel etwas höher als in der Kontrollgruppe; innerhalb der Terpene fanden sich erwartungsgemäß die höchsten Konzentrationen bei Limonen.

Tabelle 1: Leichtflüchtige Kohlenwasserstoffe in der personenbezogenen Luft im Atembereich bei TankstellenAnwohnern und Kontrollpersonen (Juni-Juli 1996) – Vergleich mit dem Umweltsurvey des Umweltbundesamtes (Jan.-Mai 1991)

	Tankstellen			Kontrollen			UBA		
	n	Max. µg/m ³	geoM µg/m ³	n	Max. µg/m ³	geoM µg/m ³	n	Max. µg/m ³	geoM µg/m ³
Alkane einschließlich Cycloalkane									
n-Hexan	13	3.3	2.3	6	5.0	2.4	113	104	10.3
n-Heptan	9	11.0	1.1	1	11.1	0.8	113	279	6.1
n-Octan	4	4.0	0.8	-		0.5	87	92	2.1
n-Nonan	5	2.4	0.8	-		0.5	104	78	3.3
n-Decan	13	10.3	2.3	5	2.8	1.3	110	109	5.2
n-Undecan	8	39.0	1.8	4	4.3	1.1	112	179	5.2
n-Dodecan	7	25.3	1.6	4	2.0	1.1	111	94	5.6
n-Tridecan	7	3.9	1.1	5	4.5	1.5	101	35	2.2
n-Tetradecan	13	5.2	2.0	6	6.4	1.8	113	17	3.3
3-Methylpentan	13	3.5	1.9	4	6.0	1.6	108	323	16.3
2,3-Dimethylpentan	8	2.0	1.0	1	1.2	0.6	111	122	4.1
2-Methylhexan	13	6.8	2.7	4	6.4	1.3	79	85	1.7
2-Methylheptan	1	1.6	0.6	-		0.5	53	35	1.3
3-Methylheptan	1	2.9	0.6	-		0.5	42	24	1.1
4-Methylheptan	1	2.8	0.6	-		0.5	35	12	0.9
Methylcyclopentan	11	2.3	1.4	4	2.1	1.0	113	47	3.9
Cyclohexan	7	6.2	1.2	1	3.8	0.7	113	971	3.8
Methylcyclohexan	13	11.8	2.9	4	8.8	1.3	111	239	4.4
Aromaten									
Benzol	13	10.3	4.8	6	4.4	3.9	113	98	10.5
Toluol	13	458.0	34.6	6	80.3	32.9	113	3193	73.9
Ethylbenzol	13	11.0	2.9	6	3.2	2.3	113	698	8.5
m/p-Xylol	13	28.1	7.2	6	9.6	6.2	113	1205	19.9
o-Xylol	13	9.2	2.7	6	3.0	2.2	112	291	6.5
n-Propylbenzol	6	2.1	0.8	2	1.0	0.6	101	32	2.2
2-Ethyltoluol	5	3.1	0.8	2	1.6	0.7	34	33	1.1
3- und 4-Ethyltoluol	13	6.4	3.0	6	3.1	2.2	112	145	8.3
1,2,3-Trimethylbenzol	8	5.5	1.3	3	2.2	0.9	108	37	3.8
1,2,4-Trimethylbenzol	13	9.9	3.4	6	3.3	2.4	113	142	7.3
1,3,5-Trimethylbenzol	11	3.0	1.1	4	1.4	0.9	111	51	3.7
Styrol	2	5.3	0.6	-		0.5	89	275	2.1
Tetralin	1	2.5	0.6	-		0.5	14	19	0.8
Halogenierte Kohlenwasserstoffe									
1,1,1-Trichlorethan	13	7.1	0.9	6	3.0	1.0	74	168	2.1
Trichlorethen	11	3.6	0.5	6	3.6	0.5	38	57	1.2
Tetrachlorethen	13	61.8	0.7	6	4.3	0.8	80	31	2.0
Tetrachlormethan	13	0.7	0.6	6	0.7	0.6	8	3	0.7
Sauerstoff enthaltende Verbindungen									
Ethylacetat	9	24.0	2.9	6	32	4.4	112	2759	15.4
n-Butylacetat	6	10.0	1.3	1	40.5	1.0	84	1934	4.4
n-Butanol	3	3.0	0.7	1	1.6	0.6	53	221	2.0
Methyl-tert-Butylether	13	9.9	3.8	6	20.1	8.4	56	79	1.8
Terpene									
a-Pinen	13	11.5	3.8	4	2.7	1.4	112	479	6.7
3-Caren	2	1.6	0.6	-		0.5	101	321	3.4
Limonen	13	22.1	8.4	6	12.8	2.3	113	480	34.1
Summe									
Σ bek. Subst.	13	751	141.1	6	247	113.1			
TVOC	13	880	202.4	6	315	166.6	113	20055	584.1

folgende Verbindungen konnten bei keinem Untersuchten in Frankfurt nachgewiesen werden:

Alkane: n-Pentadecan, 2-Methylpentan, 3-Methylhexan, 1,2,5-Trimethylhexan, Isononan I, Isononan II

Aromaten: Isopropylbenzol, Naphthalin, 4-Phenylcyclohexen, 1,2,4,5-Tetramethylbenzol

Terpene: b-Pinen, a-Terpinen, Terpinen-Artefakt, g-Terpinen

Halogenierte Kohlenwasserstoffe: 1,4-Dichlorbenzol, Trichlormethan, Bromdichlormethan, 1,1,2-Trichlorethan, Chlordibrommethan, Tribrommethan

Sauerstoff enthaltende Verbindungen: Isobutylacetat, Methyläthylketon, 4-Methyl-2-Pentanon, Hexanal, 2-Methoxyethylacetat, 3-Heptanon, 2-Ethoxyethylacetat, Methylbenzoat, Isobutanol, Isoamylalkohol, 2-Ethylhexanol, 2-Propanol

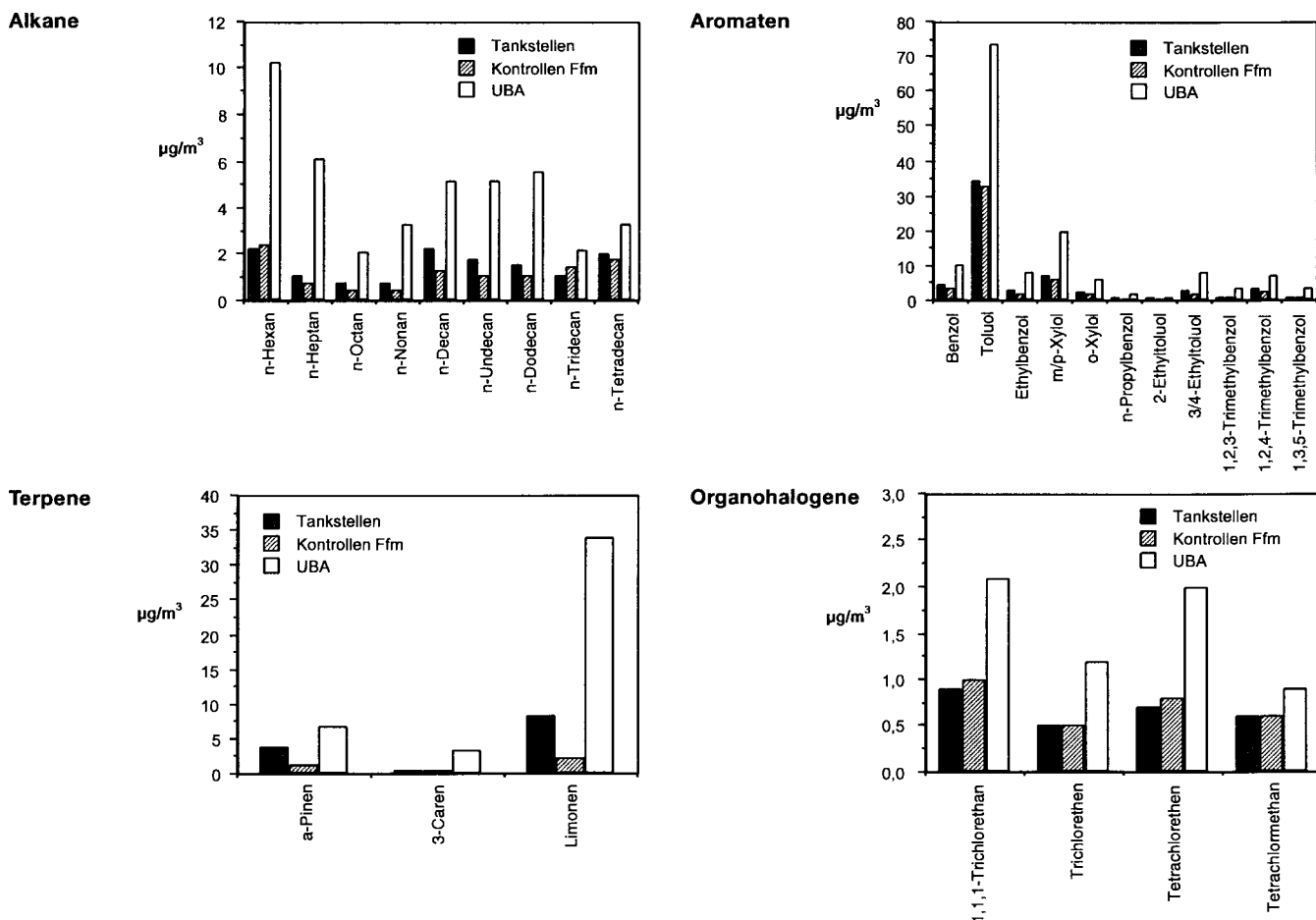


Abb. 1 a-d: Konzentrationen an flüchtigen organischen Verbindungen in der personen-bezogenen Luft im Atembereich von Anwohnern von Tankstellen ("Tankstellen Ffm") sowie von Kontrollpersonen ("Kontrollen Ffm") im Vergleich mit den Daten des Umweltsurveys des Umweltbundesamtes von 1990/91 ("UBA") – geometrische Mittelwerte

Die einzelnen *halogenierten Kohlenwasserstoffe* lagen im Mittel in beiden Gruppen unter $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, der Maximalwert von $61,8 \mu\text{g}$ Tetrachlorethen/ m^3 konnte eindeutig auf die berufliche Belastung einer Tankstellenanwohnerin zurückgeführt werden, die in einer Schuhfabrik arbeitete.

Auch bei den *Sauerstoff-enthaltenden Verbindungen* war im Mittel kein großer Belastungsunterschied zwischen den Tankstellenanwohnern und den Kontrollpersonen meßbar. Der Maximalwert von Methyl-tertiär-Butylether (Antiklopfmittel) von $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wurde bei einer Kontrollperson gemessen, die während des Untersuchungszeitraums fast 20 Stunden mit dem Auto gefahren war. Die Kontrollperson, bei welcher der Maximalwert von $40,5 \mu\text{g}$ n-Butylacetat/ m^3 gemessen wurde, arbeitete in einem klinisch-chemischen Labor.

Bei den Einzelsubstanzen konnten keine wesentlichen Unterschiede in der mittleren Belastung zwischen den Tankstellenanwohnern und den Kontrollpersonen festgestellt werden. Bei der Betrachtung der Gesamtkonzentrationen (*Summe der bekannten Substanzen sowie TVOC*, total volatile organic compounds, d.h. Summe der flüchtigen organischen Verbindungen in dem Bereich von n-Hexan bis n-

Hexadecan) wiesen die Tankstellenanwohner im Mittel eine etwa 20-25% höhere Belastung in der personenbezogenen Luft im Atembereich auf als die Kontrollpersonen.

Die 7-Tages-Sammelperioden erbrachten bei vielen Einzelsubstanzen geringe Belastungen unter $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Diese konnten bei der Untersuchung mit den 2-Tagessammelperioden bedingt durch die höheren Nachweisgrenze nicht mehr meßtechnisch sicher detektiert werden. Bei erwarteten niedrigen Belastungen sollte deswegen möglichst die 7-Tages-Sammelperiode gewählt werden. Bei den sicher detektierbaren Werten war die Übereinstimmung zwischen beiden Perioden gut – mit einer leichten Tendenz zu etwas höheren Werten bei der kürzeren Sammelperiode.

Verglichen mit den Daten aus dem Umweltsurvey 1990/91 zeigte sich bei allen untersuchten Substanzen (7-Tage-Mittelwerte) eine deutlich geringere Belastung, nicht nur in der mittleren sondern auch in der Maximalbelastung. Viele Verbindungen konnten in der jetzigen, im Sommer 1996 durchgeführten Untersuchung nicht über der Nachweisgrenze gemessen werden.

4 Diskussion

Im Winter 1993 hatte das Gesundheitsamt der Stadt Frankfurt am Main in Wohnungen im Umfeld von Tankstellen eine etwa doppelt so hohe Benzolbelastung der Raumluft wie in Kontrollwohnungen gefunden (10,2 vs. 5,6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) [1]. Andere Untersucher hatten 1992/93 in Berlin in Wohnungen neben Tankstellen ebenfalls etwa doppelt so hohe Benzolkonzentrationen wie in Kontrollwohnungen gemessen (7,1 vs. 3,3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$); in direkt über Tankstellen gelegenen Wohnungen lagen die Benzolimmissionen sogar vierfach so hoch (13,2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) [7].

In der Zwischenzeit sind die 20. und die 21. Bundesimmissionschutzverordnung in Kraft getreten – die Gaspendel- und die Gasrückführungsverordnung. Um den möglichen Erfolg dieser Minderungsmaßnahmen für Anwohner von Tankstellen zu überprüfen, wurde im Sommer 1996 eine Nachuntersuchung durchgeführt. Alle untersuchten Tankstellen hatten inzwischen die 20. BImSchV umgesetzt, während dies bei der 21. BImSchV nur auf die Hälfte der untersuchten Tankstellen zutraf. Bei der Nachuntersuchung der Außen- und Raumluftbelastung im Sommer 1996 konnten im Umfeld von Tankstellen im Mittel keine höheren Werte als in den Kontrollwohnungen mehr festgestellt werden; auch bei der Benzolbelastung im Blut war kein Einfluß des Wohnumfelds nachweisbar [4]. Laut Aussagen der Anwohner hatte sich die Immissionsituation in den dazwischenliegenden Jahren wesentlich verbessert.

Bei dieser Nachuntersuchung wurden darüberhinaus auch ca. 70 leichtflüchtige organische Substanzen in der personenbezogenen Luft im Atembereich der Tankstellenanwohner und der Kontrollpersonen überprüft. Das freiwillige Angebot wurde von 13 Tankstellenanwohnern und 6 Kontrollpersonen angenommen. Allgemein erhält man damit eine Zusatzinformation über den Luftpfad, mit der sich die Umgebungsluftbelastung mit der inneren Belastung z.B. im Blut verknüpfen läßt. Im Zusammenhang mit der zeitgleichen Untersuchung im selben Bereich [4] ist speziell diese Zusatzinformation für eine Plausibilitätsbetrachtung gut geeignet. Mit der kleinen Fallzahl und der nicht repräsentativen Auswahl handelt es sich um eine ergänzende Untersuchung, die für sich alleine genommen zwar Tendenzen aufzeigen, aber keinen Anspruch auf Allgemeingültigkeit erheben kann. Dennoch kann mit Informationen über einzelne Fälle deutlich gemacht werden, daß spezielle individuelle Belastungen oft größer sind als allgemeine Belastungen durch Stadtluft und die hier in Frage gestellten Emissionen naher Tankstellen.

Die im Sommer 1996 gemessene durchschnittliche Belastung der personenbezogenen Luft im Atembereich von Tankstellenanwohnern unterschied sich bei insgesamt geringer Belastung ebenso wie die BTXE-Belastung in der Außen- und Raumluft [4] nicht von der Belastung einer kleinen Gruppe von Kontrollpersonen – weder quantitativ noch qualitativ. Auch nach Ausschluß des bekanntermaßen bedeutendsten Störfaktors "Rauchen" zeigt sich kein Unterschied in der

Benzolkonzentration der personenbezogenen Umgebungsluft zwischen Tankstellenanwohnern und Kontrollen; die Nichtraucher hatten – unabhängig vom Wohnumfeld – eine mittlere Benzolbelastung von 4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

Die Belastung der personenbezogenen Luft im Atembereich war auch unabhängig von der Umrüstung der Tankstellen entsprechend der 21. BImSchV. Insbesondere war kein Unterschied bei den C6-Alkanen feststellbar, die sich im Umweltsurvey 1990/91 als Kfz-abhängig erwiesen hatten (Werkstättenaufenthalt, Arbeit am Kfz, Kfz-Nutzung). Trotz leichter Tendenz zu etwas höheren Werten bei Benzol und anderen Aromaten waren auch bei diesen kfz-typischen Parametern keine signifikanten Unterschiede zu verzeichnen, ein Befund, der auch im Umweltsurvey 1990/91 bei Tankstellenanwohnern beschrieben wurde [5]. Die Ergebnisse stimmten somit mit der von den Anwohnern als wesentlich verbessert beschriebenen Immissionsituation im Wohnumfeld von Tankstellen überein; nach wie vor wurde jedoch über eine wiederholte kurzfristige, teilweise sehr intensive Geruchsbelästigung bei der Kraftstoffanlieferung durch die Tankwagen berichtet. Diese kurze Belastungsspitze führte aber nicht zu einer meßbar erhöhten Belastung in der über 7 Tage gemessenen personenbezogenen Luft im Atembereich, ebensowenig wie zu einer nachweisbar höheren Außen- und Raumluftbelastung im Umfeld der Tankstellen.

Die Benzolkonzentration in der personenbezogenen Luft im Atembereich war signifikant korreliert ($p < 0,01$) mit der Benzolkonzentration im Blut ($r = 0,679$) und in der Raumluft ($r = 0,668$). Demgegenüber war kein Einfluß der Benzolkonzentration der Außenluft auf die Benzolbelastung der personenbezogenen Luft im Atembereich erkennbar ($r = 0,049$; n.s.). Dies bestätigt Ergebnisse aus einer dänischen Studie, in welcher die BTXE-Belastung (Benzol, Toluol, Xylole, Ethylbenzol) der vor der Wohnung gemessenen Außenluft mit der Belastung auf personal samplern verglichen wurde [14]. Obwohl die Außenluftkonzentrationen an BTXE in Kopenhagen wesentlich höher waren als in ländlichen Gebieten, unterschieden sich die 7-Tage-Mittelwerte auf personal samplern der Kinder nur gering, da diese offenbar wesentlich mehr durch die persönlichen Aktivitäten der Kinder als durch die Luftbelastung vor der Wohnung beeinflusst werden. Beide Studien zeigen damit, daß zur Expositionsabschätzung von Personen Untersuchungen mit personal samplern viel eher geeignet sind als alleinige Untersuchungen der Außenluft.

Einzelne Maximalwerte in der personenbezogenen Luft im Atembereich konnten durch spezifische berufliche oder private Belastungen – z.B. Arbeit in einer Schuhfabrik, Renovieren der Wohnung während des Untersuchungszeitraums etc. – erklärt werden. Dies betrifft auch den Einfluß des Tabakrauchens auf die Benzolbelastung der personenbezogenen Luft im Atembereich: der Maximalwert von Benzol war eindeutig dem Rauchverhalten des Untersuchten zuzuschreiben. In beiden Gruppen waren etwa ein Drittel der Probanden Raucher. Insgesamt war die Benzolbelastung in der personenbezogenen Luft im Atembereich mit der Zahl der aktiv gerauchten Zigaretten ($r = 0,612$; $p < 0,01$) und mit dem Cotiningehalt im

Urin korreliert ($r = 0,523$; $p < 0,05$). Diese Ergebnisse bestätigen die Daten des Umweltsurveys 1990/91, in dem ebenfalls ein signifikanter Einfluß des Rauchens auf die Benzolbelastung in der personenbezogenen Atemluft dokumentiert wurde [5].

Die im Sommer 1996 gemessenen Belastungen in der personenbezogenen Luft im Atembereich sind insgesamt – bei Tankstellenanwohnern ebenso wie bei den Kontrollpersonen – deutlich niedriger als die im Rahmen des Umweltsurveys zwischen Januar und Mai 1991 gemessenen Werte. Bei gleichen Probenahmeröhrchen und Probenahmedauer (7 Tage) sowie identischer Analysenmethode sind methodenbedingte Unterschiede auszuschließen.

Die naheliegende Vermutung, daß die Untersuchungsteilnehmer sich bei sommerlichem Wetter im Juni-Juli wesentlich länger im Freien aufgehalten hatten als die Teilnehmer des Umweltsurveys (Januar bis Mai 1991), konnte nach Auswertung der Aufenthaltsprotokolle nicht bestätigt werden, da die Zeitkontingente für die verschiedenen Aufenthaltsbereiche in beiden Untersuchungen nicht unterschiedlich waren. Bei der jetzigen Untersuchung gaben die Probanden an, etwa 96% der Zeit in Räumen verbracht zu haben, nämlich ca. 66% in der eigenen Wohnung, 23% in anderen Räumen und ca. 7% in Fahrzeugen (Die in Fahrzeugen verbrachte Zeit war hochsignifikant mit der Benzolbelastung der personenbezogenen Luft im Atembereich korreliert). Nur etwa 4% der Zeit wurde im Freien verbracht.

Da in anderen Untersuchungen sowohl für die VOC-Belastung der Außenluft [7,8] als auch der Raumluft [6,9-12] jahreszeitliche Unterschiede oder Temperaturabhängigkeiten [13] gefunden worden waren, mit bis zu 2-3fach höheren Werten im Winter, werden auch hier jahreszeitenbedingte Unterschiede als wahrscheinlich bedeutendste Ursache angenommen, u.a. wegen der erhöhten Raumlüftungsintensität während der Probenahmezeit im Sommer – neben weniger oder geringeren Quellen für Luftverunreinigungen im Innenraum.

Bei insgesamt kleiner Teilnehmerzahl und bei der vorgenommenen Zufallsauswahl der Probanden lassen sich aus den Ergebnissen folgende Trend-Aussagen ableiten, die durch weitere Untersuchungen bestätigt werden sollten:

1. In Übereinstimmung mit den Ergebnissen des Ambientemonitoring – Außenluft- und Raumluftwert – war auch bei der Untersuchung der personenbezogenen Luft im Atembereich kein Unterschied zwischen den Tankstellenanwohnern und den Kontrollpersonen nachweisbar; die Tankstellenemissionen hatten keinen signifikant meßbaren Einfluß auf die personenbezogene Luft im Atembereich der Anwohner.
2. Einzelne Maximalwerte verschiedener Substanzen in der personenbezogenen Luft im Atembereich waren – in Übereinstimmung mit Daten aus der Literatur – durch spezifische berufliche oder private Belastungen zu erklären (z.B. Renovieren der Wohnung während des Untersuchungszeitraums, Rauchen, Arbeiten in einer Schuhfabrik).

3. Bei allen Substanzen wurden deutlich niedrigere Mittel- und Maximalwerte im Vergleich mit dem Umweltsurvey 1990/91 bestimmt; jahreszeitliche Unterschiede während der Probenahmezeit sind hier die wahrscheinlich bedeutendste Ursache.

5 Literatur

- [1] HEUDORF, U.; HENTSCHEL, W.: Benzol-Immissionen im Umfeld von Tankstellen. Zentralblatt Hygiene und Umweltmedizin (1995) 35: 416-424
- [2] Zwanzigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung zur Begrenzung der Kohlenwasserstoffemissionen beim Umfüllen und Lagern von Ottokraftstoffen – 20. BImSchV) vom 7. Oktober 1992. Bundesgesetzblatt (1992) Teil I, 1727-29
- [3] Einundzwanzigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung zur Begrenzung der Kohlenwasserstoffemissionen bei der Betankung von Kraftfahrzeugen – 21. BImSchV) vom 7. Oktober 1992. Bundesgesetzblatt (1992) Teil I, 1730-31
- [4] HERR, J.; FISCHER, A.B.; HEUDORF, U.; HERR, C.; HARPEL, S.; PETERIT-WOLF, G.; ANGERER, J. UND EIKMANN, TH.: Benzolbelastung bei Anwohnern von Tankstellen. Umweltmed Forsch Prax (1997) 2: 171-175
- [5] HOFFMANN, K.; SCHWABE, R.; KRAUSE, C.; SCHULZ, C.; SEIFERT, B.; ULLRICH, D.: Umwelt-Survey 1990/91. Band IV: Personengebundene Exposition gegenüber flüchtigen organischen Verbindungen in den alten Bundesländern. Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Umweltbundesamtes, Heft 4/96 (1996)
- [6] SEIFERT, B.; MAILAHN, W.; SCHULZ, C.; ULLRICH, D.: Seasonal Variation of Concentrations of volatile organic Compounds in German Homes. Environment International (1989) 15: 397-408
- [7] LAUE, W.; PILOTY, M.; LI, D.; MARCHL, D.: Untersuchung über Benzolkonzentrationen in der Innenraumluft von Wohnungen in der Nachbarschaft von Tankstellen. Forum Städte Hygiene (1994) 45: 283-286
- [8] GILLI, G.; SCURSATONE, E.; BONO, R.: Geographical distribution of benzene in air in northwestern Italy and personal exposure. Environ. Health Perspect (1996) 104, Suppl. 6: 1137-1140
- [9] WALLACE, L.: Environmental exposure to benzene, an update. Environ. Health Perspect (1996) 104, Suppl. 6: 1129-1136
- [10] BERGEROW, J.; JERMAN, E.; KELES, T.; RANFT, U.; DUNEMAN, L.: Passive sampling for volatile organic compounds (VOC) in air at relevant concentration levels. Fresenius J. Anal. Chem. (1995) 351: 549-554
- [11] FELLIN, P.; OTSEN, R.: Seasonal trends of volatile organic compounds (VOCs) in Canadian homes. Proceedings of Indoor Air 93. (1993) 2: 117-122
- [12] FROMME, H.; BEYER, A.; LAHRZ, TH.; PILOTY, M.; LAUE, W.: Innenraumluftbelastung mit aromatischen Kohlenwasserstoffen in Berlin. Umweltmedizinische Untersuchungen vs. Verdachtsuntersuchungen. Umweltmed. Forsch Prax (1997) 2: 176-184
- [13] KRAUSE, C.; CHUTSCH, S.; HENKE, M.; HUBER, M.; KLIEM, C.; LEISKE, M.; MAILAHN, M.; SCHULZ, W.; SCHWARZ, E.; SEIFERT, B.; ULLRICH, D.: Umweltsurvey IIIc. Wohninnenraum: Raumluft. Institut für Wasser-, Boden und Lufthygiene des Bundesgesundheitsamtes, 4/91, Berlin 1991
- [14] RAASCHOU-NIELSEN, O.; LOHSE, C.; THOMSEN, B.L.; SKOV, H.; OLSEN, J.H.: Ambient air levels and the exposure of children to benzene, toluene, and xylenes in Denmark. Environm. Research (1997) 75: 149-159

Eingegangen am: 23.04.98
Akzeptiert am: 06.06.98