

## Originalarbeiten

# Humanbiomonitoring auf PAK-Metaboliten im Urin von Kindern aus Wohnungen mit PAK-haltigem Parkettkleber

<sup>1</sup>Ursel Heudorf, <sup>2</sup>Jürgen Angerer

<sup>1</sup> Abteilung Umweltmedizin und Hygiene am Gesundheitsamt der Stadt Frankfurt am Main, Braubachstr. 18-22, D-60311 Frankfurt

<sup>2</sup> Institut für Arbeits-, Sozial- und Umweltmedizin der Universität Erlangen-Nürnberg, Schillerstr. 25, D-91054 Erlangen

Korrespondenzautor: Dr. med. Ursel Heudorf

## Zusammenfassung

1997 wurden in Wohnungen der 1955/56 errichteten ehemaligen US-Housings in Frankfurt am Main hohe PAK-Konzentrationen in Hausstaubproben (max. 2618 mg/kg) gefunden, als deren Ursache der PAK-haltige Parkettkleber (>>20000 mg PAK/kg) ermittelt werden konnte. Weitere Recherchen zeigten, daß dieser Parkett-Kleber offenbar bis in die 60er Jahre in Deutschland allgemein üblich war. Da im atembaren Staub in diesen Wohnungen keine PAK-Konzentrationen über den üblichen Außenluft-Gehalten gefunden wurden, war nicht von einer erhöhten inhalativen PAK-Belastung für die Bewohner auszugehen. Für die am Boden spielenden Kleinkinder, die Bodenstaub über Hand-Mundkontakt aufnehmen können, mußte jedoch anhand rechnerischer Annahmen zur Expositionsabschätzung davon ausgegangen werden, daß die PAK-Aufnahme um ein Mehr- oder Vielfaches über der allgemeinen Zufuhr mit der Nahrung liegt. Zur Überprüfung der inneren PAK-Exposition wurden die PAK-Metaboliten im Urin von 60 Kindern unter 6 Jahren aus diesen Wohnungen untersucht und mit den Daten von 23 Kontrollkindern (gleiche Region, kein Parkett in der Wohnung) verglichen. Die Kinder aus den ehemaligen US-Housings wiesen bei der Betrachtung der Medianwerte tendenziell (nicht signifikant) höhere Metabolitenkonzentrationen im Urin auf als die Kontrollkinder (1-Hydroxyphenanthren: 0.434 vs. 0.297 µg/g Kreatinin; 2-Hydroxyphenanthren: 0.187 vs. 0.146 µg/g Kreatinin; 3-Hydroxyphenanthren: 0.380 vs. 0.204 µg/g Kreatinin; 4-Hydroxyphenanthren: 0.015 vs. <0.005 µg/g Kreatinin; 1-Hydroxypyren: 0.205 vs. 0,149 µg/g Kreatinin).

Die Ergebnisse zeigten tendenziell höhere PAK-Metabolitenkonzentrationen im Urin von Kindern aus den US-Housings, sie bestätigten jedoch nicht die aufgrund der rechnerischen Expositionsabschätzungen erwarteten großen Unterschiede zwischen exponierten und nicht exponierten Kindern. Hier sind folgende mögliche Erklärungen zu diskutieren:

1. Die Modellannahmen der rechnerischen Expositionsabschätzungen überschätzen die tägliche Bodenstaubaufnahme und/oder die Bioverfügbarkeit der PAK aus dem Staub.
2. Die Hausstaubprobenahme mittels Staubsauger bildet nicht den tatsächlich expositions-relevanten Staub ab.
3. Aufgrund der von den Mietern auf Anregung des Gesundheitsamtes bereits ergriffenen Minderungsmaßnahmen (häufiges feuchtes Wischen) wird eine mögliche zusätzliche PAK-Aufnahme aus Bodenstaub in der Gruppenbetrachtung nicht mehr erkennbar.

**Schlagerwörter:** 1-Hydroxypyren; Benzo(a)pyren; Humanbiomonitoring, PAK; Hydroxyphenanthrene; PAK; PAK, Hausstaub; PAK-Metaboliten, Urin; Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe, (PAK)

## Abstract

### Urinary Levels of 1-hydroxypyrene, 1, 2, 3, and 4-hydroxyphenanthrene in Children Living in Flats with High PAH-contents of Glue Used for Parquet Floors

In 1997, high PAH-contents were detected in the household dust in flats of the former US housing in Frankfurt am Main, Germany (about 2500 mg PAH/kg, about 180 mg BaP/kg), caused by high PAH-content: in parquet glue (>> 20000 mg/kg). Thus, the possibility of a high oral exposure to children playing on the parquet floor had to be taken into account. Inhalative exposure could be neglected, because the PAH-content in the indoor air was not elevated.

The internal exposure of children playing in such flats was investigated by analysis of the PAH-metabolites 1-hydroxypyrene and 1, 2, 3, and 4-hydroxyphenanthrene in 60 children (1-6 years) living in the former US housing. The data compared the PAH-metabolite-excretion of 23 children living in the same area in flats without parquet floors. Children living in flats with parquet floors showed a tendency (not significant) to higher PAH-metabolites in the urine than the control children (mean: 1-hydroxyphenanthrene: 0.434 vs. 0.297 µg/g creatinine; 2-hydroxyphenanthrene: 0.187 vs. 0.146 µg/g creatinine; 3-hydroxyphenanthrene: 0.380 vs. 0.204 µg/g creatinine; 4-hydroxyphenanthrene: 0.015 vs. <0.005 µg/g creatinine; 1-hydroxypyrene: 0.205 vs. 0.149 µg/g creatinine).

Possible reasons for the unexpected low differences in exposed and unexposed children are discussed.

**Keywords:** 1-, 2-, 3, and 4-hydroxyphenanthrene; 1-hydroxypyrene; benzo(a)pyrene; human biomonitoring, PAH; PAH, household dust; PAH; PAK-metabolites, urine; polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH)

## 1 Einleitung

Im Frühjahr 1997 wurde in einer Wohnung der 1955/56 errichteten ehemaligen US-Housings in Frankfurt am Main eine hohe Belastung des Hausstaubs mit polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) und Benzo(a)Pyren (BaP) festgestellt (2618 mg PAK/kg, 179 mg BaP/kg; Staubsaugerprobe; 7 d alter Staub). Als Ursache dieser hohen Hausstaubbelastung konnte der Parkettkleber identifiziert werden, der einen Gehalt von 20284 mg PAK/kg und 1200 mg BaP/kg Material aufwies. Kleber und Hausstaub wiesen ein ähnliches Verteilungsmuster der PAK-Einzelverbindungen auf. Im atembaren Staub (Schwebstaub) wurden keine auffälligen PAK-Belastungen gefunden. Weitere Untersuchungen in anderen Wohnungen dieser ehemaligen US-Housings in Frankfurt/M bestätigten diese Ergebnisse: In 194 im März und April 1998 untersuchten Wohnungen lag der durchschnittliche PAK-Gehalt im Parkettkleber bei 40500 mg/kg, der Maximalwert betrug 255300 mg/kg (BaP: Mittelwert: 2412 mg/kg; Maximalwert: 12000 mg/kg). Recherchen zeigten, daß die Problematik PAK-haltiger (Teerpech/Bitumen)-Parkettkleber nicht auf Frankfurt oder die ehemaligen US-Housings beschränkt war, sondern daß solche Kleber offenbar allgemein seit der Jahrhundertwende bis in die 70er Jahre eingesetzt wurden. Es handelt sich deshalb um ein bundesweites Problem.

In einer ersten Bewertung dieser Befunde mit hohen PAK-Konzentrationen im Bodenstaub, aber mit einer nicht auffälligen PAK-Belastung im Schwebstaub sah das Gesundheitsamt für die Bewohner keine erhöhte PAK-Exposition durch inhalative Aufnahme. Für die am Boden spielenden Kleinkinder, die Bodenstaub über Hand-Mund-Kontakt aufnehmen können, mußte jedoch eine erhebliche PAK-Exposition und damit auch gesundheitliches Risiko angenommen werden: Unter der Annahme einer täglichen Aufnahme von 20 mg bzw. 100 mg Staub [4] mit einem PAK-Gehalt von 1000 mg/kg und bei 100%iger Resorption, würde ein Kleinkind auf diesem Wege 20 µg resp. 100 µg PAK aufnehmen. Dies läge weit

über der derzeitigen Exposition von Erwachsenen, die mit 2-3 µg PAK angegeben wird [5,19,21].

Zur Überprüfung der rechnerisch geschätzten Aufnahme und zur besseren Abschätzung des durch diese Zusatzbelastung entstehenden gesundheitlichen Risikos bot das Gesundheitsamt bei der sog. Risikogruppe von Kindern unter 6 Jahren ein Humanbiomonitoring auf PAK-Stoffwechselprodukte im Urin an.

## 2 Probanden und Methoden

Durch in den Hauseingängen ausgehängten Flugblätter wurden die Bewohner der ehemaligen US-Housings auf die PAK-Problematik in ihren Wohnungen aufmerksam gemacht und es wurde ihnen angeboten, Kinder unter 6 Jahren auf PAK-Stoffwechselprodukte im Urin untersuchen zu lassen. Die Kinder sollten möglichst in Nichtraucherhaushalten leben. Es sollten Kinder aus den ehemaligen US-Housings mit Kindern der gleichen Region aus anderen Wohnungen (ohne Parkett und ebenfalls ohne Passivrauchexposition) verglichen werden. Die Fragebögen und Uringefäße für 60 Kinder aus den Housings wurden Anfang Dezember 1997 von Mitarbeitern des Gesundheitsamtes in einem Kindergarten vor Ort ausgegeben und am folgenden Tag wieder eingesammelt. Gleichzeitig wurden 23 Kontrollkinder aus dem gleichen Gebiet über niedergelassene Kinderärzte der Region "gewonnen". Auf das Sammeln von 24-h-Urin wurde verzichtet, es wurde Spontanurin entgegengenommen.

Die Urine wurden im Labor des Instituts für Arbeits-, Sozial- und Umweltmedizin der Universität Erlangen-Nürnberg nach der Methode von LINTELMANN et al. [18] untersucht: dabei werden 1-Hydroxypyren sowie die monohydroxylierten Phenanthrene auf einer Vorsäule angereichert und von anderen Harnbestandteilen abgetrennt. Sie werden dann mittels HPLC getrennt und durch Fluoreszenzdetektion analysiert. Die Nachweisgrenze für die einzelnen Metaboliten liegt zwischen 5 und 16 ng/l.

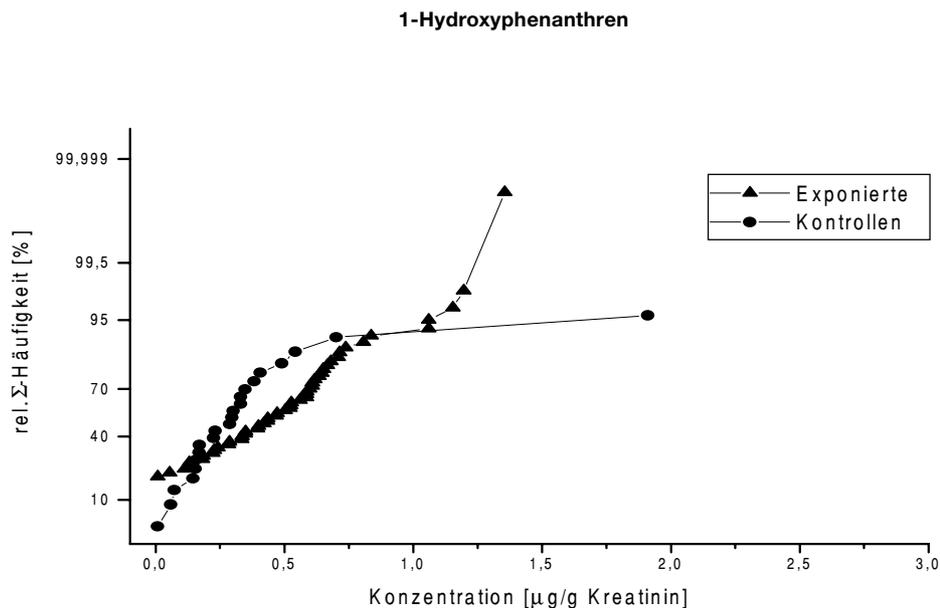
**Tabelle 1:** PAK-Metaboliten im Urin von Kindern unter 6 Jahren aus den ehemaligen US-Housings (n=60) im Vergleich mit Kontrollkindern (n= 23) – (µg/g Kreatinin)

Parameter	x + sdev	Bereich	P 50	P 95
Alter (Jahre)				
Housings	3.5 + 1.4	1.0 - 6.2	3.4	
Kontrollen	4.5 + 0.8	3.1 - 5.9	4.5	
1-Hydroxyphenanthren				
Housings	0.438 + 0.334	nn - 1.355	0.434	1.149
Kontrollen	0.461 + 0.651	nn - 2.897	0.297	2.700
2-Hydroxyphenanthren				
Housings	0.197 + 0.154	nn - 0.764	0.187	0.514
Kontrollen	0.207 + 0.217	nn - 0.994	0.146	0.936
3-Hydroxyphenanthren				
Housings	0.374 + 0.274	nn - 1.071	0.380	0.969
Kontrollen	0.341 + 0.396	nn - 2.005	0.204	1.745
4-Hydroxyphenanthren				
Housings	0.045 + 0.051	nn - 0.226	0.015	0.151
Kontrollen	0.220 + 0.946	nn - 4.555	nn	3.673
1-Hydroxypyren				
Housings	0.222 + 0.180	nn - 0.918	0.205	0.507
Kontrollen	0.168 + 0.088	nn - 0.334	0.149	0.329

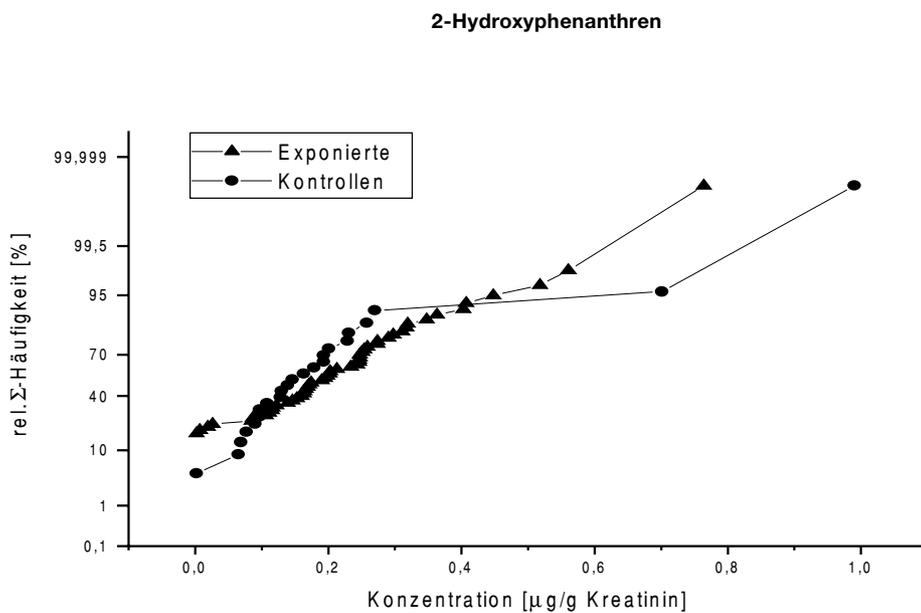
### 3 Ergebnisse

Die Ergebnisse der Untersuchung der 60 Kinder aus den ehemaligen US-Housings und der 23 Kontrollkinder sind in **Tabelle 1** zusammengestellt. Die Kinder aus den Housings waren etwas älter als die Kontrollkinder. Bei der Betrachtung der Mittelwerte, Standardabweichungen und Bereiche

der Konzentrationen der einzelnen Metaboliten fielen keine signifikanten Unterschiede zwischen den Kindern aus den Housings und den Kontrollkinder auf, jedoch ließ die Betrachtung der Medianwerte und insbesondere die Darstellung als Summenhäufigkeiten ( $\rightarrow$  *Abb. 1 a-e*) eine bei allen Metaboliten nachweisbare Tendenz zu höheren Werten bei den Kindern aus den Housings erkennen.

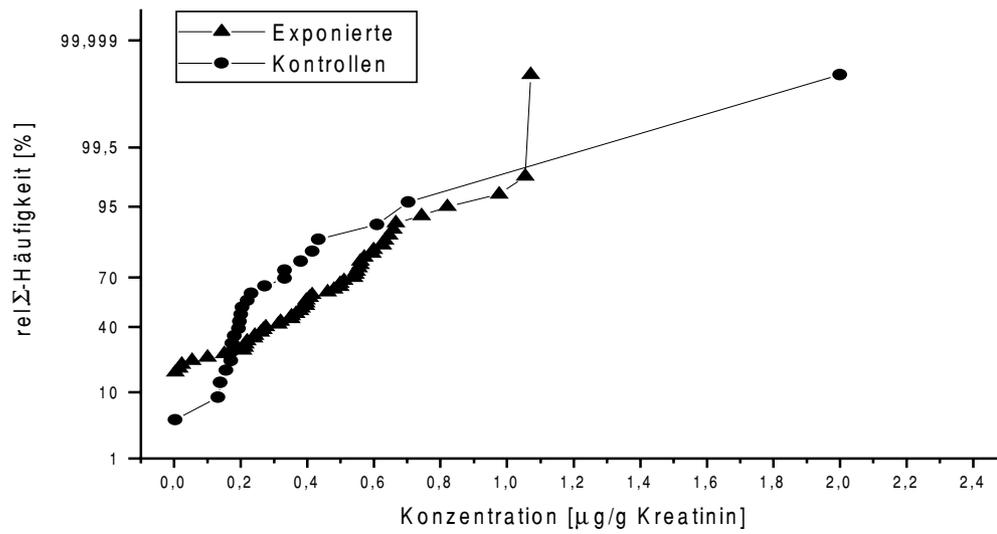


**1a**



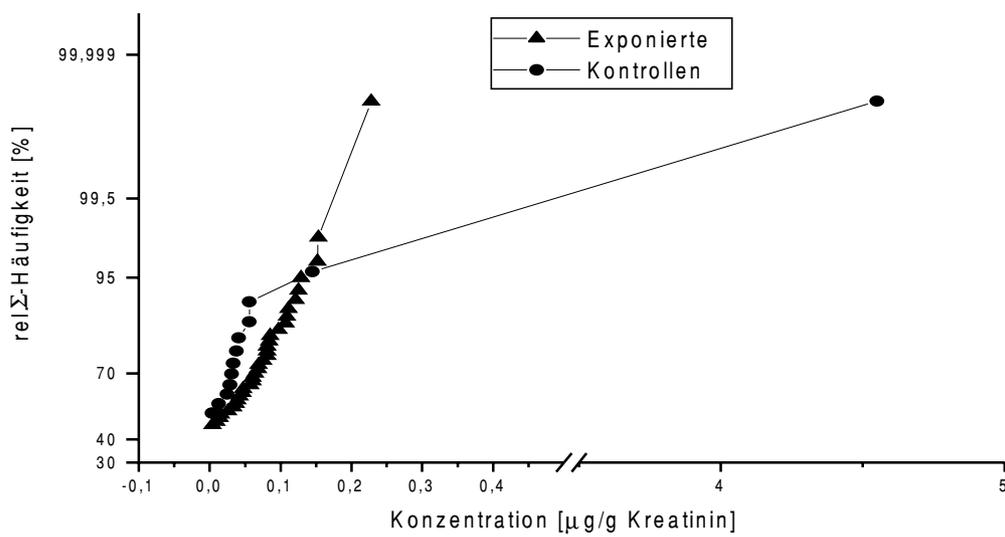
**1b**

3-Hydroxyphenanthren

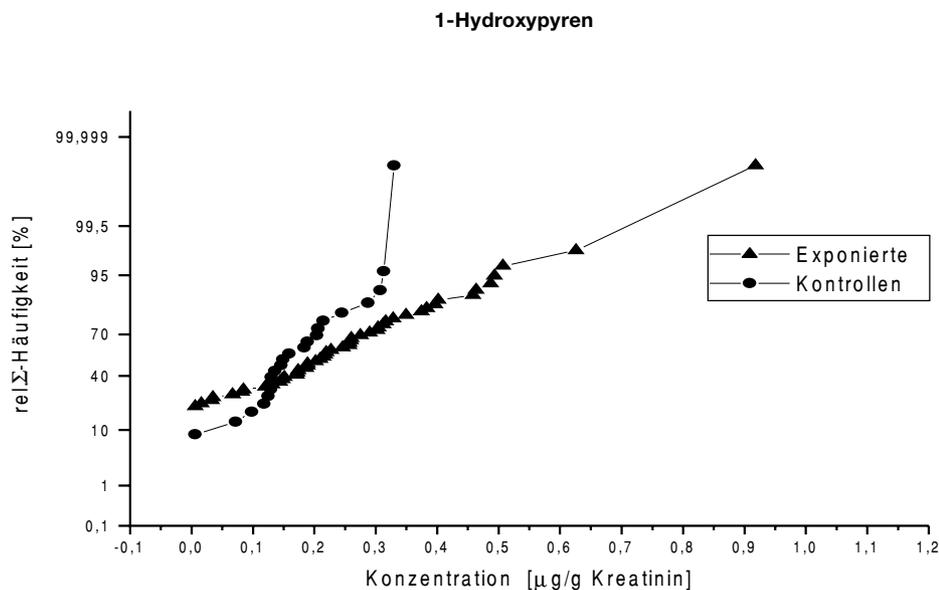


1c

4-Hydroxyphenanthren



1d



1e

Abb. 1a-e: PAK-Metaboliten im Urin von Kindern unter 6 Jahren aus den ehemaligen US-Housings und bei Kontrollkindern in der Darstellung der Summenhäufigkeiten

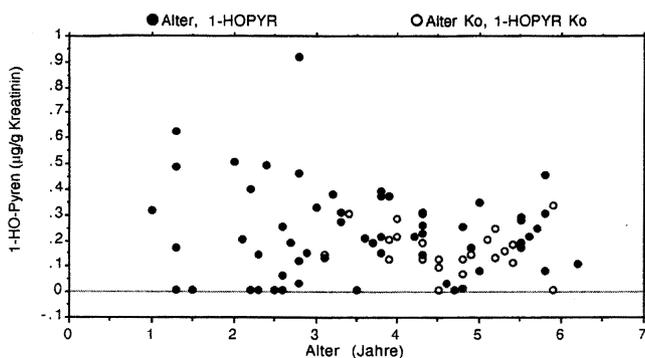


Abb. 2: 1-Hydroxypyren im Urin von Kindern (< 6 Jahre) – in Abhängigkeit vom Alter der Kinder (schwarze Punkte: Kinder aus den ehemaligen US-Housings; offene Kreise: Kontrollkinder)

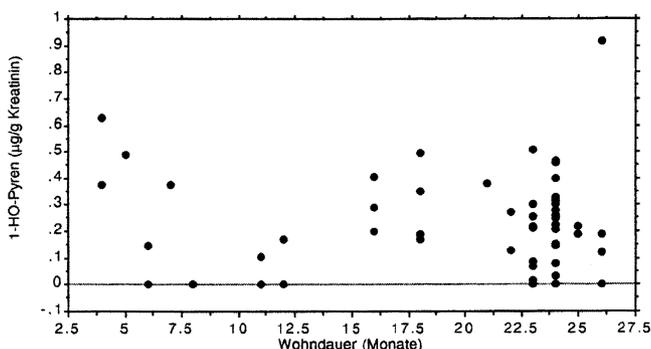


Abb. 3: 1-Hydroxypyren im Urin von Kindern (< 6 Jahre) – in Abhängigkeit von der Wohndauer der Kinder in den ehemaligen US-Housings

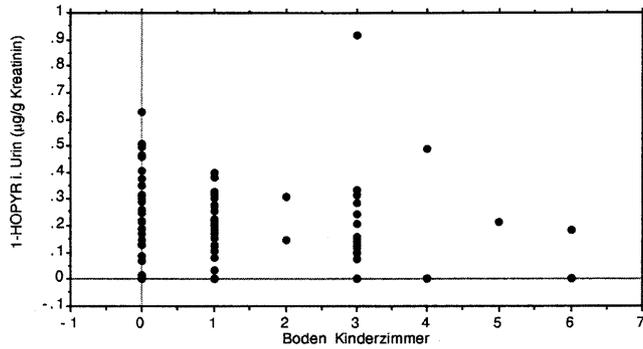
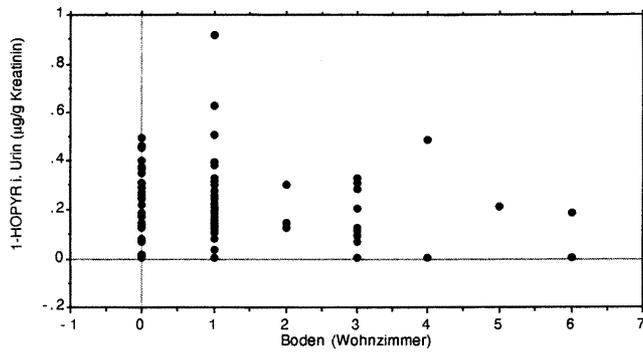
Bei allen untersuchten Metaboliten war weder eine Altersabhängigkeit noch eine Abhängigkeit von der Wohndauer der Kinder in den ehemaligen Housings erkennbar (→ Abb. 2 und 3; Darstellung nur für 1-Hydroxypyren).

In einem Fragebogen wurde nach Art und Zustand des Bodenbelags im Wohn- und Kinderzimmer gefragt. Während in den ehemaligen US-Housings ausnahmslos Parkett vorhanden war, wurden in den Kontrollwohnungen verschiedene andere Bodenbeläge angegeben, wie Laminat, Teppichboden, Linoleum, Fliesen oder PVC. Es konnten keine Abhängigkeiten zwischen der Höhe der Metabolitenausscheidung der Kinder und der Bodenausstattung im Wohn- oder Kinderzimmer festgestellt werden (→ Abb. 4).

Bei einer Untergruppe von 10 Kindern aus den ehemaligen US-Housings waren etwa zum gleichen Zeitpunkt der Urinabgabe Hausstaubuntersuchungen durchgeführt worden. (Staubsaugerprobe von 1-3 Tage altem Staub, von den begehbaren Flächen mit einem Staubsauger abgesaugt). Ein Zusammenhang zwischen den PAK-Gehalten im Hausstaub und den Konzentrationen der PAK-Metaboliten im Urin war nicht erkennbar (→ Abb. 5).

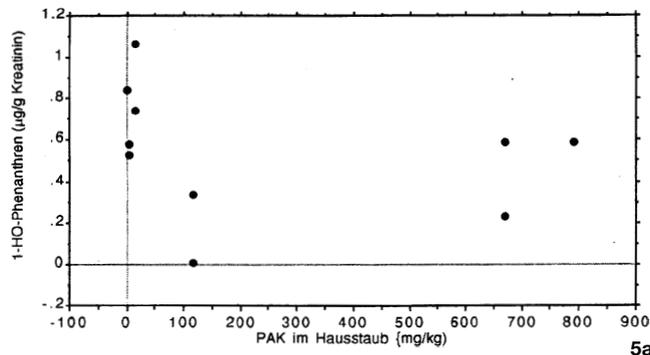
#### 4 Diskussion

PAK sind eine große Gruppe von organischen Verbindungen, die bei der unvollständigen Verbrennung von organischen Materialien entstehen, z.B. der Verbrennung von Mineralölen, Motorkraftstoffen, Kohle, Holz etc. Verschiedene PAK-Einzelsubstanzen sind als kanzerogen eingestuft, wobei für den Parameter Benzo-a-Pyren die meisten toxikologischen Daten verfügbar sind [6,11,27].

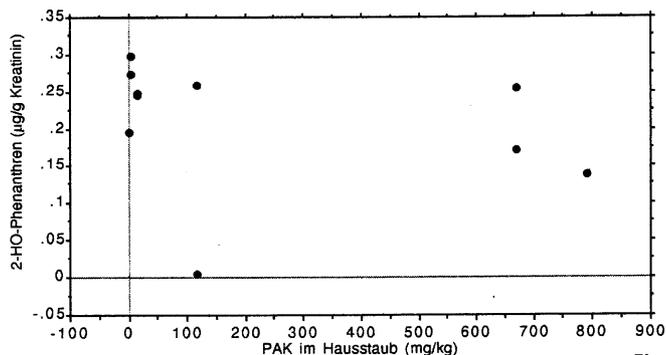


- Böden: 0 Parkett, ausgebeSSERT  
 1 Parkett, nicht ausgebeSSERT  
 2 Laminat  
 3 Teppichboden  
 4 Linoleum  
 5 Fliesen  
 6 PVC

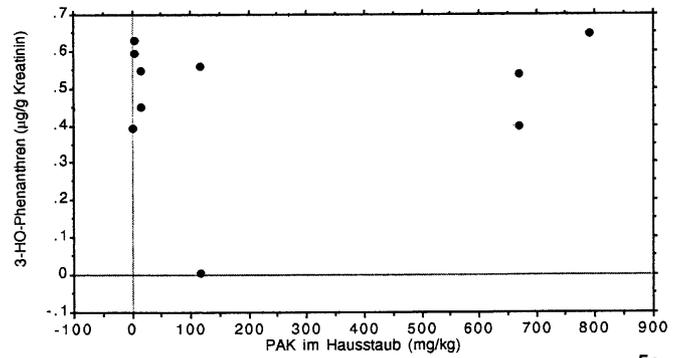
Abb. 4: 1-Hydroxypyren im Urin von Kindern (< 6 Jahre) – in Abhängigkeit von der Bodenausstattung im Wohnzimmer und im Kinderzimmer



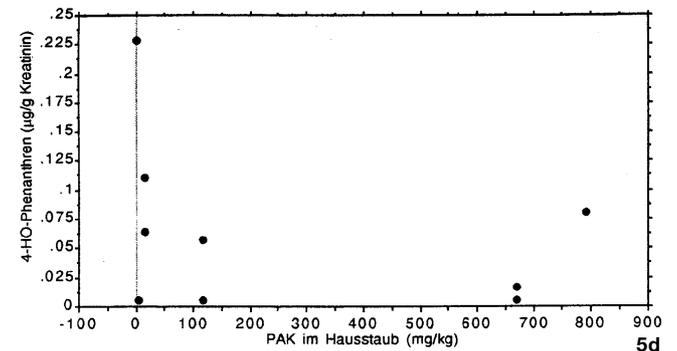
5a



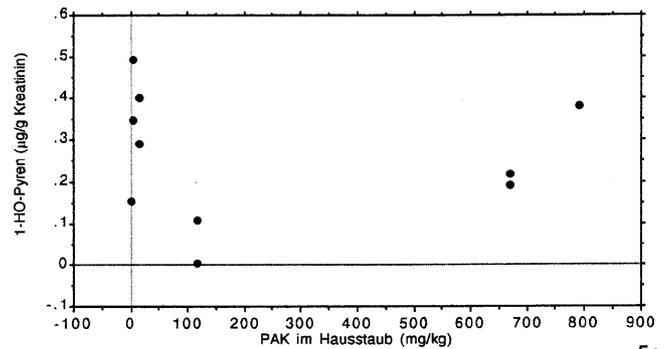
5b



5c



5d



5e

Abb. 5a-e: PAK-Metaboliten im Urin von Kindern – in Abhängigkeit von der PAK-Belastung im Hausstaub

PAK sind in der Umwelt als Verunreinigung der Luft und der Böden weit verbreitet [6,11,27]. Nicht zuletzt durch die Luftreinhaltemaßnahmen hat die Belastung der Außenluft in den vergangenen Jahrzehnten deutlich abgenommen. Die PAK-Konzentrationen im Schwebstaub (Außenluft) liegen heute selbst in Ballungsgebieten oft unter 100 ng/m<sup>3</sup>, die Konzentrationen an Benzo-a-Pyren meist im unteren Nanogramm-Bereich. Höhere PAK-Konzentrationen können im Umfeld von industriellen Emittenten, aber auch im Straßenraum gemessen werden [9].

Die geschätzte tägliche PAK-Zufuhr über die Nahrung wird für Erwachsene mit 3 µg/d angegeben [19,21], wobei Raucher nochmals die gleiche Menge über das Rauchen zu sich nehmen können [21,25]. Die Benzo-a-Pyrenzufuhr wird im Mittel auf 0,2 µg/d (max. 220 µg/d) geschätzt, wobei die Hauptmenge durch die Nahrung aufgenommen wird, wäh-

rend der Luftpfad mit 0,01 µg/d im Winter und 0,002 µg/d im Sommer demgegenüber von eher untergeordneter Bedeutung ist [5].

In den letzten Jahren wurden mehrere Humanbiomonitoringmethoden zur Untersuchung der inneren PAK-Exposition entwickelt und sowohl für hohe PAK-Belastungen am Arbeitsplatz aber auch für die wesentlich geringeren Belastungen im Umweltbereich erprobt. Während verschiedene Verfahren wie 32P-Postlabeling und immunologische Methoden offenbar eine zu geringe Spezifität aufweisen, hat sich insbesondere die Analytik der PAK-Metaboliten im Urin mittels Hoch-Leistungs-Flüssigkeits-Chromatographie und Fluoreszenzdetektion (HPLC/FD) oder mittels Gaschromatographie/Massenspektrometrie (GC/MS) als geeignete Humanbiomonitoringmethode zur Untersuchung einer PAK-Belastung etabliert.

Gerade bei der Untersuchung von PAK-Metaboliten im Urin hat sich in den letzten Jahren eine rasche Entwicklung vollzogen: GRIMMER et al. entwickelten eine GC/MS-Methode zur gleichzeitigen Untersuchung verschiedener PAK-Metaboliten, die aber wegen der hierzu notwendigen aufwendigen Reinigungsschritte für Routineuntersuchung keine Anwendung findet [7]. JONGENELEN dagegen schlug die Bestimmung von 1-Hydroxypyren als Marker der PAK-Belastung vor und entwickelte eine HPLC-Methode mit Fluoreszenzdetektion, bei welcher eine Bestimmungsgrenze von 0,2 µg/l erreicht werden konnte [12,13].

In mehreren Untersuchungen konnte die Validität von 1-Hydroxypyren als Parameter der inneren Belastung durch PAK bestätigt werden [2,3,24]: Raucher haben in allen Untersuchungen deutlich höhere Werte als Nichtraucher, Straßenbau- und Kokereiarbeiter haben am Ende der Arbeitsschicht mit einer inhalativen und dermalen PAK-Belastung eine deutlich höhere 1-Hydroxypyrenausscheidung im Urin als bei Schichtbeginn, und selbst nach einer einzigen PAK-reichen Mahlzeit (gegrilltes Fleisch) kann eine Erhöhung der 1-Hydroxypyrenausscheidung nachgewiesen werden (Lit bei 24). Auch eine dermale Belastung z.B. durch therapeutisch angewendete PAK-haltige Salben schlägt sich in einer Erhöhung der 1-Hydroxypyren-Ausscheidung nieder [22].

Seit Einführung von 1-Hydroxypyren als Biomarker für eine PAK-Exposition wurden viele Studien in Europa, Asien und Amerika mit diesem Parameter durchgeführt. Auf dem ersten internationalen Workshop zu 1-Hydroxypyren 1993 wurde festgestellt, daß 1-Hydroxypyren im Urin ein guter biologischer Marker für eine PAK-Belastung darstellt und eine PAK-Exposition valide und sensitiv abbildet [14,17]. Diese Bewertung wurde auf einem weiteren PAK-Kongress 1995 bestätigt und wird auch von der Humanbiomonitoring-Kommission des Umweltbundesamtes geteilt [10].

Freilich wurde auch kritisch angemerkt, daß hierbei nur ein Parameter exemplarisch für eine Vielzahl von entstehenden Metaboliten zur Abschätzung der Exposition gegenüber ei-

nem Gemisch mit vielen verschiedenen PAK herangezogen wird. Auch erschiene es wünschenswert, Metaboliten von PAK zu bestimmen, denen eine krebserzeugende Potenz innewohnt.

Nach einer Weiterentwicklung der JONGENELEN-Methode durch LINTELMANN et al. [18] können jetzt in einem Arbeitsgang zusätzlich zu 1-Hydroxypyren vier verschiedene Hydroxy-Phenanthrene untersucht werden. Mit dieser Methode wurden bereits im arbeitsmedizinischen [2,3] und im umweltmedizinischen Bereich [1,8] Erfahrungen gesammelt. Sie wurde nach unserer Kenntnis nun erstmals zur PAK-Metabolitenanalyse im Harn von Kindern angewandt.

Ausgangspunkt unserer Untersuchung war die auf rechnerische Modellannahmen gestützte Überlegung, daß Kleinkinder über entsprechend kontaminierten Bodestaub zu einer PAK-Aufnahme kommen können, die um ein Mehrbis Vielfaches über der üblichen PAK-Aufnahme durch die Nahrung liegt. Eine entsprechend deutliche Erhöhung der inneren Exposition war demzufolge zu erwarten. Diese Erwartung wurde nicht bestätigt: Die Kinder aus den ehemaligen US-Housings wiesen etwas höhere Median-Werte als die Kontrollkinder auf, die Unterschiede waren nicht signifikant. In der Gruppenbetrachtung spricht dies für eine gegenüber den Erwartungen nur geringe, zusätzliche PAK-Aufnahme in diesen Wohnungen.

Die Annahme, daß gerade kleine Kinder unter 3 Jahren aufgrund ihrer Aktivitäten am Boden mehr Bodestaub aufnehmen und damit eine höhere innere Exposition aufweisen müßten als Kinder zwischen 3 und 6 Jahren wurde durch unsere Untersuchung nicht bestätigt: Die Kinder zwischen 1 und 3 Jahren wiesen im Mittel- und Medianwert bei allen untersuchten Parametern eher eine Tendenz zu einer niedrigeren kreatinin- und auch volumenbezogenen Metabolitenausscheidung auf als die Kinder zwischen 3 und 6 Jahren.

Bei der Einzelfallbetrachtung waren keine Zusammenhänge zwischen den aktuellen PAK-Konzentrationen im Hausstaub und den Metabolitenkonzentrationen im Urin der Kinder erkennbar. Zu diesem scheinbar widersprüchlichen Ergebnis ist anzumerken, daß durch die Art der Hausstaubprobenahme mittels Staubsauger aus den Ritzen zwischen den Parkettriemchen durchaus auch Altstaub sowie kleine Partikel des inzwischen spröde gewordenen Parkettklebers angesaugt werden und damit zu (höheren) PAK-Konzentrationen des Hausstaubs führen können [23], denen die Kinder realistischerweise gar nicht ausgesetzt sind. D.h., die mittels Saugen gewonnen Proben bilden möglicherweise nicht den expositionsrelevanten Bodestaub ab.

Eine weitere Erklärung für die unerwartet geringen Unterschiede in der PAK-Metabolitenausscheidung der Kinder aus den ehemaligen US-Housings im Vergleich mit den Kontrollkindern könnte darin liegen, daß die Eltern angesichts der Vorsorgehinweise des Gesundheitsamtes bereits zum Untersuchungszeitpunkt als Minderungsmaßnahme häufig

feucht gewischt und die Kinder weitgehend vom Kontakt mit Staub ferngehalten haben [23].

Zusammenhänge zwischen den in einem Fragebogen erfaßten Ernährungsgewohnheiten der Kinder und der PAK-Metabolitenausscheidung konnten wir nicht nachweisen. Offenbar waren die Fragen zu allgemein gehalten (allgemeine Ernährungsgewohnheiten) und haben zu wenig spezifisch die Nahrungsaufnahme der letzten Tage erfaßt.

Die weitaus meisten untersuchten Kinder aus den ehemaligen US-Housings und auch die Kontrollkinder lebten in Nichtraucherhaushalten – entsprechend der Fragebogen-Angaben der Eltern. Bei der geringen Anzahl passivrauchexponierter Kinder konnten wir keine auffällig höhere PAK-Metabolitenausscheidung im Urin finden. Dies stimmt mit Literaturangaben überein, wo im Gegensatz zur Aktivrauchbelastung mit ihrem signifikanten Beitrag zur PAK-Exposition bei Passivrauchbelastung keine signifikante Erhöhung der PAK-Metabolitenausscheidung nachweisbar war.

Ein Kind aus der Kontrollgruppe fiel mit einer vergleichsweise sehr hohen Ausscheidung von PAK-Metaboliten auf. Die Ursache dieser auffällig hohen PAK-Exposition blieb unklar, eine Behandlung mit teerhaltigen Salben konnte nicht sicher ausgeschlossen werden.

Kinder, die schon länger in den ehemaligen US-Housings wohnten, hatten keine höheren Metaboliten-Konzentrationen im Urin als erst kurzfristig dorthin gezogene Kinder. Angesichts der Halbwertszeiten von 1-Hydroxypyren aber auch der Phenanthrene von etwa 15-25 Stunden [20] und der fehlenden Tendenz zur Kumulation war dies auch nicht anders zu erwarten.

Für den Parameter 1-Hydroxypyren liegen drei Studien mit Kindern vor, mit deren Ergebnissen die hier vorgestellten Daten verglichen werden können: japanische Untersucher stellten bei Schulkindern, die an stark verkehrsbelasteten Ausfallstraßen in Tokio lebten, signifikant höhere 1-Hydroxypyrenkonzentrationen im Urin fest als bei Kontrollkindern – und zwar über alle Jahreszeiten [15]. Mittelwerte der 1-Hydroxypyrenausscheidung der Kinder aus dem weniger verkehrsbelasteten Gebiet lagen zwischen 0.100-0.150 µg/l, die der Kinder aus verkehrsbelasteten Gebieten bei 0.120-0.210 µg/l Urin. Die mittleren 1-Hydroxypyrengehalte im Urin der 3-6jährigen Kinder aus den US-Housings und der Kontrollkinder lagen mit 0.122 µg/l und 0.085 µg/l in etwa in einem vergleichbaren Bereich.

Demgegenüber konnten VAN WIJNEN et al. bei 644 Kindern im Alter von 1-6 Jahren aus unterschiedlich belasteten Regionen in Holland keine eindeutigen Zusammenhänge zur Umweltbelastung feststellen [26]. Die mittlere 1-Hydroxypyrenausscheidung der Kinder aus Holland betrug 0.230 µg/l, sie war damit 2-3fach höher als bei den untersuchten Kindern aus Frankfurt/M. Die Arbeit von VAN WIJNEN kann jedoch mit unserer Studie nur sehr begrenzt verglichen wer-

den. Zwar wurden dort auch Spontanurine von Kindern untersucht, jedoch fanden die Autoren 1-Hydroxypyrenausscheidungen bis über 10 µg/l Urin. Werte in dieser Höhe wurden jedoch bisher nur bei hohen PAK-Expositionen an PAK-belasteten Arbeitsplätzen beobachtet.

Diese methodischen Einschränkungen sind bei der dritten hier zitierten Vergleichsstudie nicht gegeben, da diese Studie im selben Labor mit den selben Methoden durchgeführt wurde wie unsere Untersuchung: Im Frühjahr 1998 wurden 81 Kinder (1-12 Jahre) aus ehemaligen US-Housings mit PAK-haltigem Parkettkleber in Erlangen auf ihre 1-Hydroxypyrenausscheidung untersucht und deren Ergebnisse mit 29 Erlangener Kontrollkindern verglichen [16]. Bei Kindern aus Nichtraucherhaushalten zeigte sich kein signifikanter Unterschied in der 1-Hydroxypyrenausscheidung zwischen den Kindern aus den Housings und den Kontrollkindern (Mittelwert 0,248 vs. 0,221 µg/g Kreatinin; Median: 0,249 vs. 0,200 µg/g Kreatinin; P 95: 0,450 vs. 0,470 µg/g Kreatinin), wohingegen bei Kindern aus Raucherhaushalten – insbesondere bei Betrachtung der 95. Perzentile – eine Tendenz zu höheren 1-Hydroxypyrenkonzentrationen im Urin feststellbar war.

Da die Ausscheidung der Hydroxyphenanthrene nach unserer Kenntnis bislang bei Kindern nicht untersucht wurde, können die von uns erhaltenen Daten nur mit Studien bei Erwachsenen verglichen werden. Neben arbeitsmedizinischen Untersuchungen [2,3] liegt eine umweltmedizinische Arbeit vor [1,8], die angesichts fehlender Untersuchungen bei Kindern zum Vergleich herangezogen wird. Bei der Betrachtung der Medianwerte hatten alle von uns untersuchten Kinder, unabhängig von ihrer Exposition gegenüber PAK-haltigem Bodestaub, eine niedrigere 1- und 2-Hydroxyphenanthrenkonzentration im Urin als die erwachsenen Nichtraucherinnen. Bei den Parametern 3-Hydroxyphenanthren und 1-Hydroxypyren blieben jedoch nur die Kontrollkinder im Median unter den Werten der nichtrauchenden Frauen, während die Kinder, die in den US-Housings wohnten, im Median Metabolitenkonzentrationen zwischen den Vergleichswerten der Nichtraucherinnen und Raucherinnen aufwiesen. Inwieweit der direkte Vergleich der Ergebnisse von Kindern und Erwachsenen sinnvoll und zulässig ist, sollte jedoch durch weitere Untersuchungen bei Kindern und Erwachsenen geklärt werden.

Zusammenfassend zeigen die hier vorgestellten Ergebnisse eine Tendenz zu höheren PAK-Metabolitenkonzentrationen im Urin von Kindern aus den ehemaligen US-Housings, sie bestätigen jedoch nicht die aufgrund von modellhaften rechnerischen Expositionsabschätzungen erwarteten deutlichen Unterschiede in der PAK-Metabolitenausscheidung zwischen Kindern aus den ehemaligen US-Housings und Kontrollkindern. Hier sind folgende mögliche Erklärungen zu diskutieren:

1. Die Modellannahmen der rechnerischen Expositionsabschätzungen überschätzen die tägliche orale Bodestaubaufnahme und/oder die Bioverfügbarkeit von PAK aus Bodestaub.

2. Die Hausstaubprobenahme mittels Staubsauger bildet nicht den tatsächlichen expositionsrelevanten Bodenstaub ab (möglicherweise unrealistisch hohe Werte durch Partikelmobilisation aus den Parkettfugen und -ritzen).
3. Die von den Mietern auf Anregung des Gesundheitsamtes bereits ergriffenen Minderungsmaßnahmen (häufiges feuchtes Wischen) sind so effektiv, daß in der Gruppenbetrachtung keine signifikante Zusatzaufnahme bei Kindern aus Wohnungen der ehemaligen US-Housings mehr erkennbar wird.

## 5 Literatur

- [1] ANGERER, J.; GÜNDEL, J.; MANNSCHRECK, C.; EWERS, U.; BÜTTNER, K.: Beurteilung der PAK-Belastung bei Anwohnern eines Industriegebiets in der Bundesrepublik Deutschland. Bestimmung von 1-Hydroxypyren, 1-, 2-, 3- und 4-Hydroxyphenanthren im Harn. *Umweltmed Forsch Prax* (1997) 2, 17-22
- [2] ANGERER, J.; MANNSCHRECK, C.; GÜNDEL, J.: Occupational exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in a graphite-electrode producing plant: biological monitoring of 1-hydroxy-pyrene and monohydroxylated metabolites of phenanthrene. *Int Arch Occup Environ Health* (1997) 69, 323-331
- [3] ANGERER, J.; MANNSCHRECK, C.; GÜNDEL, J.: Biological monitoring and biochemical effect monitoring of exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons. *Int Arch Occup Environ Health* (1997) 70, 365-377
- [4] Arbeitsgemeinschaft der leitenden Medizinalbeamten der Länder: Standards zur Expositionsabschätzung. Bericht des Ausschusses für Umwelthygiene. Herausgeber: Behörde für Arbeit, Gesundheit und Soziales, Hamburg, 1995
- [5] BUCKLEY T.J.; WALDMAN, J.M.; DHARA, R.; GREENBERG, A.; OUYANG, Z.; LIOY, P.J.: An assessment of an urinary biomarker for total human environmental exposure to benzo(a)pyrene. *Int Arch Occup Environ Health* (1995) 67, 257-266
- [6] FROMME, H.: Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe. In: Beyer, A.; Eis, D. (Hrsg.): *Praktische Umweltmedizin*, Springer Verlag, Nachfolgelieferung Juli 1997
- [7] GRIMMER G.; DETTBARN, G.; JAKOB, J.: Biomonitoring of polycyclic aromatic hydrocarbons in highly exposed coke plant workers by measurement of urinary phenanthrene and pyrene metabolites (phenols and dihydrodiols). *Int Arch Environ Health* (1993) 65, 189-199
- [8] GÜNDEL, J.; MANNSCHRECK, C.; BÜTTNER, K.; EWERS, U.; ANGERER, J.: Urinary levels of 1-hydroxypyrene, 1-, 2-, 3-, and 4-Hydroxyphenanthrene in females living in an industrial area of Germany. *Arch Environm Contamination and Toxicology* (1996) 31, 585-590
- [9] Hessische Landesanstalt für Umwelt: Immissionsbelastung durch polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAH) im Untersuchungsgebiet Untermain 1995/96. Bericht 62 100.014 BO; vom 27.11.1996, Wiesbaden
- [10] Humanbiomonitoring-Kommission des Umweltbundesamtes: Stellungnahme zur Bestimmung von PAK-Metaboliten im Urin, Februar 1998, Berlin
- [11] IARC – International Agency for Research on Cancer: Polycyclic aromatic compounds. Part I. Chemical and environmental data. Vol 32, IARC Monographs, Lyon, Frankreich, 1983
- [12] JONGENEELLEN, F.J.; ANZION, R.B.M.; SCHEEPERS, P.T.J.; BOS, R.P.; HENDERSON, P.T.; NIJENHUIS, E.H.; VEENSTRA, S.J.; BROUNS, R.M.E.; WINKES, A.: 1-Hydroxypyrene in urine as a biological indicator of exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in several work environments. *Ann Occup Hyg* (1988) 32, 35-43
- [13] JONGENEELLEN, F.J.; ANZION, R.B.M.: 1-Hydroxypyrene. In: Angerer, J.; Schaller, K.H. (eds.): *Analysis of hazardous substances in biological materials*, vol. 3 VCH, Weinheim, 1991
- [14] JONGENEELLEN, F.J.: Methods for routine biological monitoring of carcinogenic PAH-mixtures. *Science of the Total Environment* (1998) 199, 141-9
- [15] KANO, T.; FUKUDA, M.; ONOZUKA, H.; KINOUCHI, T.; OHNISHI, Y.: Urinary 1-hydroxypyrene as a marker of exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in the environment. *Environmental Research* (1993) 62, 230-41
- [16] LEDERER, P.; ANGERER, J.: Untersuchung der PAK-Belastung bei Kindern in Wohnungen mit steinkohleteerhaltigem Kleber in Parkettböden. *Arbeitsmedizin, Sozialmedizin, Umweltmedizin im Druck*
- [17] LEVIN, J.O.: First international workshop on hydroxypyrene as a biomarker for PAH-exposure in man – summary and conclusions. *Science of Total Environment* (1995) 163, 165-168
- [18] LINTELMANN, J.; HELLEMANN, C.; KETTRUP, A.: Coupled column high-performance liquid chromatographic method for the determination of four metabolites of polycyclic hydrocarbons, 1-, 4- and 9-hydroxyphenanthrene and 1-hydroxypyrene, in urine. *J Chromatography* (1994) 660, 67-73
- [19] LODOVICI, M.; DOLARA, P.; CASALINI, C.; CIAPPELLANO, S.; TESTOLIN, G.: Polycyclic aromatic hydrocarbon contamination in the Italian diet. *Food Additives & Contaminants*. (1995) 12, 703-13
- [20] MANNSCHRECK, C.: Entwicklung und Validierung von Analyseverfahren zur Bestimmung der polycyclischen aromatischen Kohlenwasserstoffe in menschlichen Körperflüssigkeiten. Dissertation, Universität Erlangen-Nürnberg, 1997
- [21] MENZIE, C.A. et al.: Exposure to carcinogenic PAHs in the environment. *Environm Sci Technol*. (1992) 26, 1278-1284
- [22] SANTELLE, R.M.; NUNES, M.G.; BLASKVIC, R.; PERERA, F.P.; TANG, D.; BEACHMAN, A.; LIN, J.H.; DELEO, V.A.: Quantitation of polycyclic aromatic hydrocarbons, 1-hydroxypyrene, and mutagenicity in urine of coal tar treated psoriasis patients and untreated volunteers. *Cancer Epidemiol Biomarkers Prev* (1994) 3, 137-40
- [23] Stadtgesundheitsamt Frankfurt/M: Niederschrift des Expertengesprächs zur Schadstoffbelastung in den ehemaligen US-Housings am 05.02.1998 in Frankfurt am Main. Frankfurt, im Februar 1998
- [24] STRICKLAND, P.; KANG, D.; SITHISARANKUL, P.: Polycyclic aromatic hydrocarbon metabolites in urine as biomarkers of exposure and effect. *Environ Health Perspect* (1996) 104 Suppl 5, 927-932
- [25] VAN ROOIJ, J.G.M.; VEEGER, M.M.S.; BODELIER-BADE, M.M.; SCHEEPERS, P.T.J.; JONGENEELLEN, F.J.: Smoking and dietary intake of polycyclic aromatic hydrocarbons as sources of interindividual variability in the baseline excretion of 1-hydroxypyrene in urine. *Int Arch Occup Environ Health* (1994) 66, 55-66
- [26] VAN WIJNEN, J.H.; SLOB, R.; JOGMANS-LIEDERKERKEN, G.; VAN DE WEERDT, R.H.J.; WOUDEBERG, F.: Exposure to polycyclic aromatic Hydrocarbons among Dutch children. *Environm Health Perspect* (1996) 104, 530-534
- [27] World Health Organisation: Air quality guidelines for Europe. European Series, No. 23, WHO regional publications. Kopenhagen, Dänemark (1987)

Eingegangen am: 23.04.1998  
Akzeptiert am: 19.05.1998