

Kurzmitteilungen

Humanbiomonitoring auf PAK-Metaboliten im Urin von Kindern aus Wohnungen mit PAK-haltigem Parkettkleber – Ergänzende Mitteilung

¹Ursel Heudorf, ²Jürgen Angerer

¹Abteilung für Umweltmedizin und Hygiene am Gesundheitsamt der Stadt Frankfurt am Main (Amtsleiterin: Dr. M. Peters), Braubachstr. 18-22, D-60311 Frankfurt a. M.

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

Korrespondenzautor: Prof. Dr. U. Heudorf

Zusammenfassung

Aufgrund früherer Anwendung PAK-haltiger Parkettkleber kann es bei zunehmender Alterung und Beschädigung des Parkettbodens zu hohen PAK-Kontaminationen des Hausstaubs kommen. Insbesondere Kleinkinder, die über Hand-Mundkontakt diesen Staub aufnehmen können, müssen deshalb als Risikogruppe gelten. Dieses Problem wurde 1997 erstmals in Wohnungen ehemaliger US-Housing in Frankfurt/M erkannt.

Bei ersten Untersuchungen wiesen 60 in solchen Wohnungen lebende Kinder unter 6 Jahren eine Tendenz zu höheren PAK-Metabolitenkonzentrationen (hydroxylierte Phenanthrene und 1-Hydroxypyren) im Urin auf. 23 Kinder aus Wohnungen ohne Parkettboden dienten als Kontrollen. Nach den Ergebnissen der inzwischen in allen Wohnungen durchgeführten Untersuchungen des Klebers können die Kinder aus den ehemaligen US-Housing entsprechend der BaP-Belastung des Klebers in exponierte (> 100 mg BaP/kg Kleber) und nicht, bzw. geringfügig exponierte (< 10 mg BaP/kg Kleber) eingestuft werden. Die Tendenz zu höheren Metabolitenkonzentrationen im Urin der exponierten Kinder im Vergleich mit den Kontrollkindern stabilisierte sich dadurch.

Direkte Zusammenhänge zwischen den PAK-Metaboliten im Urin der Kinder und dem BaP-Gehalt des Parkettklebers waren nicht feststellbar – ein plausibler Befund vor dem Hintergrund der zentralen Bedeutung des Parkettzustands.

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

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 – Additional information

In the 50s and 60s a tar oil based parquet glue containing high concentrations of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) was standard construction practice in Germany. Broken or loose boards, cracks, or clefts in these parquet floors may lead to high PAH-contamination in household dust. Infants and small children are considered to be at risk of an elevated PAH exposure when ingesting PAH-contaminated dust during playing and crawling on the ground. The internal exposure of 60 children living in flats with old parquet floors had shown a tendency to higher PAH-metabolites in the urine compared to 23 control children, living in the same area, but without parquet floor in the flat (not significant) [1]. Meanwhile in every flat analyses of BaP-contents in the parquet glue and in the house dust have been done. According to the BaP-contents of the glue (below 10 mg BaP/kg (bitumen) vs. more than 100 mg BaP/kg (tar oil based)) now splitting into 3 groups was possible: the differences in PAH-metabolite excretion in children with high vs. low BaP contents in the parquet glue vs. controls still were not significant; the tendency to highest median values of all PAH metabolites in the exposed group stabilised.

There were no direct correlations between PAH concentration in the glue of the flat and PAH-metabolites in the urines of the children. As the PAH-contamination in the flat depends on the status of the floor, this result is plausible.

Keywords: Benzo(a)pyrene; human biomonitoring, PAH; hydroxylated phenanthrenes, 1-hydroxypyrene; PAH, house dust; PAH-metabolites, urine; polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH)

1 Einleitung

Aufgrund früherer Anwendung PAK-haltiger Parkettkleber kann es bei zunehmender Alterung und Beschädigung des Parkettbodens zu hohen Kontaminationen des Hausstaubs mit polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) kommen. Dieses Problem wurde 1997 erstmals in Wohnungen ehemaliger US-Housing in Frankfurt/M erkannt. Am

Boden spielende Kleinkinder, die in solchen Wohnungen über Hand-Mundkontakt PAK-belasteten Hausstaub aufnehmen können, zeigten eine Tendenz zu höheren inneren PAK-Belastungen als Vergleichskinder aus der gleichen Region, aber aus Wohnungen ohne Parkett [1].

Tabelle 1: Empfehlungen des Umweltbundesamtes zum Vorgehen bei Verdacht auf PAK-haltigen Kleber

Strategie	Untersuchungen/Maßnahmen
- Sichtung Kleber, falls „dunkles Material“:	Kleberanalyse
- Kleberanalyse:	
- < 10 mg BaP/kg	Keine
- > 10 mg BaP/kg	Hausstaubanalyse
- Hausstaubanalyse:	
- >10 mg BaP/kg	kurzfristige Maßnahmen
- < 10 mg BaP/kg Hausstaub und Kleber 10-3000 mg BaP/kg	mittelfristige Maßnahmen
- < 10 mg BaP/kg Hausstaub und Kleber > 3000 mg BaP/kg	Raumluftanalyse
- Raumluftanalyse	
- RL doppelt so hoch wie AL, mind. 3 ng BaP > AL	kurzfristige Maßnahmen
- RL nicht doppelt so hoch wie AL oder 3 ng BaP > AL	mittelfristige Maßnahmen

*AL: Außenluft, RL: Raumluft; Angaben pro m³

Angesichts der bundesweiten Bedeutung dieses Problems führte das Umweltbundesamt im März und April 1998 zwei Expertengespräche zu Fragen der PAK-Belastung in Wohnungen durch, in denen PAK-haltiger Parkettkleber verwendet wurde. Die Ergebnisse der Beratungen wurden in zwei Pressemitteilungen veröffentlicht [2, 3] (→ *Tabelle 1*): Grundsätzlich soll zunächst der Kleber gesichtet und bei Verdacht auf PAK-haltiges Material auf seinen Benzo(a)pyrengehalt (BaP) untersucht werden. Enthält der Kleber mehr als 10 mg BaP/kg, sollen Hausstaubuntersuchungen folgen. Da in den ersten gesaugten Hausstaubproben teilweise schwarze Partikel enthalten waren – vermutlich Kleberpartikel, die beim Saugen hochgesaugt werden, die aber für die am Boden spielenden Kinder als nicht expositionsrelevant angesehen werden – empfahl das Umweltbundesamt nach dem ersten Expertengespräch, die Probenahme mittels Kehren durchzuführen. Auf der Basis dieser Empfehlungen wurden in der Folge in verschiedenen Bundesländern Empfehlungen für die Vorgehensweise veröffentlicht [4-8]. Eine Richtlinie der Arbeitsgemeinschaft der Bauministerien der Länder zur Problematik PAK-haltiger Parkettkleber in Wohnungen ist derzeit in Vorbereitung.

Entsprechend den bislang vorliegenden Empfehlungen wurden in den Mietwohnungen der ehemaligen US-Housing in Frankfurt am Main Parkettkleber und Hausstaub untersucht. Die Hausstaubprobe wurde dabei mit einem modifizierten Kehr/Wischverfahren mit dem Vileda-Superfeger genommen. Dabei wird der auf dem Boden liegende, möglichst 7 Tage alte Hausstaub mit einer PU-Schaumrolle zusammengefegt und der auf dem Boden zusammengefegte Hausstaub sowie die an der PU-Rolle des "Fegers" befindlichen Staubreste auf- bzw. abgesaugt und zur Hausstaubprobe vereinigt.

2 Ergebnisse der Kleber- und Hausstaubuntersuchungen

Steinkohlenteeröhlhaltiger Parkettkleber (ca. 100 bis 12 000 mg BaP/kg) war nicht in allen, sondern "nur" in etwa 60% der Wohnungen verwendet worden. Entgegen der ursprünglichen Erwartung war in 40% der Wohnungen ein Kleber mit einem

BaP-Gehalt von weniger als 10 mg BaP/kg eingebracht worden, der entsprechend der publizierten Empfehlung als "nicht belastet" eingestuft wird; weiterer Handlungs- und Sanierungsbedarf wird hier nicht gesehen.

In 91% der (ca. 1 600) Kehr/Wischproben war weniger als 1 mg BaP/kg nachweisbar, ca 8% enthielten zwischen 1 und 10 mg BaP/kg. Bei etwa 1% der Wohnungen war der "Richtwert" von 10 mg BaP/kg überschritten und unverzüglicher Sanierungsbedarf gegeben. Der Medianwert der BaP-Konzentrationen in allen untersuchten Hausstaubproben lag bei 0,05 mg BaP/kg, das 95ste Perzentil bei 2,7 mg BaP/kg.

3 Ergebnisse der ergänzenden Auswertung der Humanbiomonitoringuntersuchungen bei Kindern

Im Dezember 1997 haben wir 60 Kinder untersucht, die in ehemaligen US-Housing wohnten, in denen sich ein Parkettboden befand. Zu diesem Zeitpunkt sind wir davon ausgegangen, daß in allen diesen Wohnungen PAK-haltiger Parkettkleber verwendet worden war. Im Vergleich zu anderen Frankfurter Kindern (n = 23) aus Wohnungen ohne Parkettböden wiesen diese Kinder eine Tendenz zu einer höheren Ausscheidung an PAK-Metaboliten (Hydroxyphenanthrene und 1-Hydroxypyren) im Urin auf [1]. Nachdem mittlerweile entsprechend den Expertenempfehlungen die BaP-Konzentrationen im Parkettkleber dieser Wohnungen gemessen und auch die durch Kehren gewonnenen Stäube untersucht worden sind, haben wir die von uns mitgeteilten Ergebnisse einer ergänzenden Auswertung unterworfen. Wir teilen hier die Ergebnisse von 55 statt der 60 zuerst untersuchten Kindern mit, weil uns die Ergebnisse der Kleber- und Hausstaubuntersuchungen aus 4 Wohnungen nicht vorliegen.

Analog zur ersten Auswertung waren die Unterschiede der PAK-Metabolitenkonzentrationen in Harnproben von Kindern aus Wohnungen mit steinkohlenteeröhlhaltigen Klebern (Mittelwert: 2 826 mg BaP/kg, Bereich 117 – 8 000 mg BaP/kg) im Vergleich mit Kindern, in deren Wohnungen nur vergleichsweise niedrige BaP-Konzentrationen im Kleber gefun-

Tabelle 2: PAK-Metaboliten im Urin von Kindern aus den ehemaligen US-Housing in Frankfurt/M – differenziert nach Kindern aus Wohnungen mit mehr als 100 mg BaP/kg Parkettkleber (n = 27) und Kindern aus Wohnungen mit weniger als 10 mg BaP/kg Kleber (n = 28) – im Vergleich mit Kontrollkindern (n = 23)

Parameter	Mittelwert + Standardabw. ng/g Kreatinin	Median ng/g Krea.	P 95 ng/g Krea.	Maximalw. ng/g Krea.
1-OH-Phenanthren				
Housing (BaP im Kleber > 100 mg/kg)	471 + 279	515	1 058	1 059
Housing (BaP im Kleber < 10 mg/kg)	422 + 364	409	1 283	1 355
Kontrollen	461 + 651	297	2 700	2 897
2-OH-Phenanthren				
Housing (BaP im Kleber > 100 mg/kg)	188 + 106	172	392	407
Housing (BaP im Kleber < 10 mg/kg)	204 + 183	163	653	764
Kontrollen	207 + 217	146	936	994
3-OH-Phenanthren				
Housing (BaP im Kleber > 100 mg/kg)	433 + 251	486	956	1 071
Housing (BaP im Kleber < 10 mg/kg)	332 + 289	359	1 019	1 054
Kontrollen	341 + 396	204	1 745	2 005
4-OH-Phenanthren				
Housing (BaP im Kleber > 100 mg/kg)	43 + 46	26	143	152
Housing (BaP im Kleber < 10 mg/kg)	41 + 54	n.n.	194	226
Kontrollen	220 + 946	n.n.	3 673	4 555
1-OH-Pyren				
Housing (BaP im Kleber > 100 mg/kg)	257 + 201	238	769	918
Housing (BaP im Kleber < 10 mg/kg)	195 + 174	186	579	626
Kontrollen	168 + 88	149	329	334

den worden waren (< 10 mg BaP/kg), und den entsprechenden Kontrollkindern aus Wohnungen ohne Parkettböden nicht signifikant. Trotzdem tritt bei der neuerlichen Auswertung die Tendenz zu höheren Hydroxypyren- und Hydroxyphenanthrenkonzentrationen etwas stärker in Erscheinung als wir dies in unserer ersten Veröffentlichung zeigen konnten, insbesondere bei der Betrachtung der Medianwerte. Die niedrigsten Medianwerte finden sich bei den Kontrollkindern. Höher liegen die Medianwerte bei den Kindern aus Wohnungen, in denen der BaP-Gehalt im Kleber unter 10 mg/kg lag.

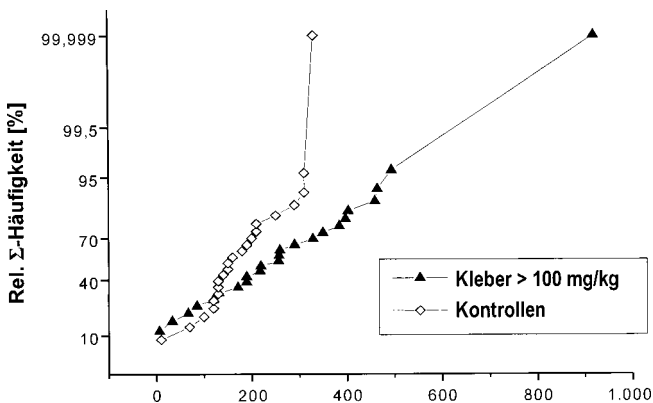


Abb. 1: Relative Summenhäufigkeit der Hydroxypyrenausscheidung (ng/g Kreatinin) im Harn von Kindern aus Wohnungen mit steinkohlenteerhaltigem Parkettkleber (> 100 mg BaP/kg Kleber) im Vergleich zu den entsprechenden Werten von gleichaltrigen Kindern aus Wohnungen ohne Parkett

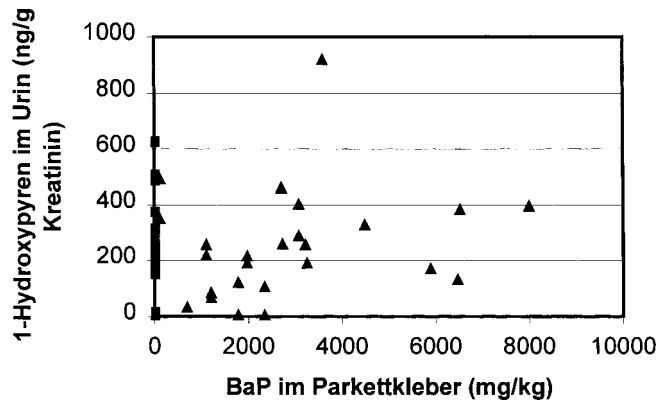


Abb. 2: 1-Hydroxypyren im Urin von Kindern aus den ehemaligen US-Housing in Frankfurt/M – in Abhängigkeit von der BaP-Konzentration im Parkettkleber der Wohnung (Kinder aus Wohnungen mit < 10 mg BaP/kg Kleber: Viereck-Symbole; Kinder aus Wohnungen mit > 100 mg BaP/kg Kleber: Dreieck-Symbole)

Die höchsten Medianwerte traten bei den Kindern aus Wohnungen auf, in denen steinkohlenteerhaltiger Kleber verwendet worden war (→ Tabelle 2). Diese Tendenz wird bei der Betrachtung der Darstellung der relativen Summenhäufigkeiten der Metabolitenkonzentrationen besonders deutlich. Stellvertretend für alle im Harn untersuchten PAK-Metaboliten zeigt Abbildung 1 die Hydroxypyrenkonzentration im Harn der Kinder aus Wohnungen mit steinkohlenteerhaltigem Parkettkleber der ehemaligen US-Housing im Vergleich mit den Kontrollkindern aus anderen Wohnungen.

Direkte Zusammenhänge zwischen der BaP-Belastung im Kleber und der 1-Hydroxypyrenausscheidung der in diesen Wohnungen lebenden Kinder konnten dagegen nicht festgestellt werden ($r = 0,215$, n.s.). Demgegenüber deuten sich Zusammenhänge zwischen der BaP-Belastung in den im Sommer 1998 durch Kehren/Wischen gewonnenen Hausstaubproben (Median: n.n., Bereich: n.n. - 0,76 mg BaP/kg) und der 1-Hydroxypyrenausscheidung der Kinder an ($r = 0,565$).

4 Diskussion

Auf der Basis der heute vorliegenden Untersuchungen des BaP-Gehalts im Kleber aller Wohnungen, wurde es möglich, die untersuchten Kinder in drei statt vorher zwei Gruppen einzuordnen: Kinder aus Wohnungen, in denen der BaP-Gehalt im Kleber über 100 mg/kg lag, und Kinder aus Wohnungen, in denen zum Verkleben des Parketts steinkohlenteeröhlhaltiger Kleber nicht eingesetzt worden war (BaP unter 10 mg/kg Kleber). Die Kontrollkinder aus Wohnungen, in denen Parkett nicht verlegt ist, bilden die dritte Gruppe.

Bei der Einstufung der Kinder entsprechend der BaP-Belastung des Klebers in der Wohnung wurde die Tendenz zu einer höheren PAK-Metabolitenausscheidung bei Kindern aus Wohnungen mit tatsächlich PAK-haltigem Kleber im Vergleich mit den Kontrollkindern etwas deutlicher erkennbar. Die Unterschiede zu den Kindern aus den anderen US-Housing-Wohnungen oder den Kontrollkindern sind aber weiterhin gering und nicht signifikant. Allerdings haben auch die Kinder aus den ehemaligen US-Housing, in deren Wohnungen nach den Ergebnissen der Kleberanalyse kein steinkohlenteeröhlhaltiger Parkettkleber vorhanden ist, in der Tendenz etwas höhere Werte als die Vergleichskinder.

Leider liegen bislang keine systematischen Erhebungen des Parkettzustands der ehemaligen US-Housing in Frankfurt/M vor, sodaß hier derzeit keine weitere Bewertung der PAK-Metabolitenkonzentrationen im Urin der dort wohnenden Kinder vorgenommen werden kann. Besonders bei stark schadhaftem Parkettzustand ist jedoch zu erwarten, daß hohe BaP-Belastungen im Kleber auch zu höheren inneren Expositionen der Raumnutzer führen können. Ergebnisse von Untersuchungen bei Kindern aus ehemaligen US-Housing in Bayern sprechen für diese Hypothese [9].

Was nun die BaP-Konzentration im Hausstaub anbelangt, war bereits in unserer ersten Publikation eine auffällige Diskrepanz zwischen den Ergebnissen der rechnerischen Expositionsabschätzung und den Ergebnissen der Humanbiomonitoringuntersuchungen festgestellt worden. Zwischen den 1-Hydroxypyrenkonzentrationen im Urin der Kinder und den durch Saugen gewonnenen Hausstaubproben waren keine Zusammenhänge erkennbar [1]. Da in den damaligen Hausstaubproben kleine schwarze Partikel gesehen worden waren und demzufolge nicht auszuschließen war, daß durch das Saugen aus den Ritzen Altstaub und/oder Parkettkleberpartikel in die Hausstaubprobe gesaugt worden waren, wurde damals u.a.

diskutiert, daß die Probenahme mittels Staubsauger möglicherweise nicht den expositionsrelevanten Staub abbildet.

Unsere Ergebnisse zeigen nun, daß die BaP-Gehalte in dem entsprechend den Empfehlungen des Umweltbundesamtes durch Kehren gewonnenen, auf dem Boden liegenden Hausstaub deutlich niedriger liegen als in den durch Saugen gewonnenen Hausstaubproben. Erste Expositionsabschätzungen – auf der Basis der Ergebnisse der gesaugten Proben – gingen von einer um das Mehr- bis Vielfache der allgemeinen Hintergrundbelastung liegenden inneren Zusatzbelastung für die dort am Boden spielenden Kinder aus. Rechnerische Expositionsabschätzungen mit den BaP-Gehalten im durch Kehren gewonnenen, als expositionsrelevant angesehenen Hausstaub ergeben nun eine relativ geringe Zusatzbelastung. Vor diesem Hintergrund sind die im Humanbiomonitoring gefundenen geringen Unterschiede zwischen den exponierten und den nicht exponierten Kindern plausibel.

Wir teilen hier Daten von einem relativ kleinen Kollektiv mit. Im Frühjahr 1998 wurde am Gesundheitsamt der Stadt Frankfurt am Main eine spezielle umweltmedizinische Sprechstunde für die Bewohner der ehemaligen US-Housing eingerichtet. Inzwischen haben sich dort mehr als 1 000 Menschen vorgestellt und u.a. auf PAK-Metaboliten im Urin untersuchen lassen. Die Auswertung dieser Daten wird zeigen, ob sich der beschriebene Trend bestätigt.

5 Literatur

- [1] HEUDORF, U., ANGERER, J.: Humanbiomonitoring auf PAK-Metaboliten im Urin von Kindern aus Wohnungen mit PAK-haltigem Kleber. *Umweltmed.Forsch.Prax.* (1998) 3: 266-274
- [2] UMWELTBUNDESAMT: Belastung mit polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) in Wohnungen mit Parkettböden. *Presse-Information* vom 27. März 1998, Berlin (1998)
- [3] UMWELTBUNDESAMT: Empfehlungen zu polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) in Wohnungen mit Parkettböden. *Presse-Information* vom 29. April 1998, Berlin (1998)
- [4] FREIE UND HANSESTADT HAMBURG. Behörde für Arbeit, Gesundheit und Soziales: Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) in Wohnungen. Hier: Hinweise zum Vorgehen in Schulen und Kindertagesstätten vom 4.5.1998
- [5] HESSISCHES MINISTERIUM FÜR UMWELT, ENERGIE, JUGEND, FAMILIE UND GESUNDHEIT: PAK (polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe) in Wohnungen mit Parkettklebern, vom 2.6.1998, Erlaß Januar 1999
- [6] MINISTERIUM FÜR UMWELT UND FORSTEN DES LANDES RHEINLAND-PFALZ: Innenraumbelastungen durch PAK-haltige Parkettkleber, vom 14.07.1998
- [7] NIEDERSÄCHSISCHES SOZIALMINISTERIUM: Raumluftbelastung durch teerhaltige Parkettkleber, Hinweis zum Vorgehen in Schulen und Kindergärten bzw. Kindertagesstätten. Entwurf, Juni 1998, Erlaß Januar 1999
- [8] SOZIALMINISTERIUM BADEN-WÜRTTEMBERG: Innenraumbelastungen durch PAK-haltige Parkettkleber, vom 19.6.1998
- [9] ANGERER, pers. Mitteilung

Eingegangen am: 11.02.1999

Akzeptiert am: 22.02.1999