

Originalarbeiten

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

Ergebnisse aus der umweltmedizinischen Sprechstunde des Frankfurter Gesundheitsamtes

Ursel Heudorf¹, Jürgen Angerer²

¹ Abteilung Umweltmedizin und Hygiene, Stadtgesundheitsamt Frankfurt am Main (Amtsleiterin: Dr. M. Peters), Braubachstr. 18-22, D-60311 Frankfurt

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

Korrespondenzautorin: Dr. Ursel Heudorf; e-mail: ursel.heudorf@stadt-frankfurt.de

DOI: <http://dx.doi.org/10.1065/ufp2000.07.001>

Zusammenfassung. Aufgrund früherer Anwendung von Parkettklebern auf Teerbasis kann es bei Alterung und Beschädigung des Parkettbodens zu hohen Kontaminationen des Hausstaubs mit polycyclischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK), resp. Benzo(a)pyren (BaP) kommen. In der Raumluft konnten praktisch nie erhöhte BaP-Kontaminationen gefunden werden. Demzufolge ist für Erwachsene und größere Kinder keine erhöhte inhalative BaP-Belastung in solchen Wohnungen abzuleiten. Für kleine Kinder aber, die BaP-belasteten Hausstaub oral über Hand-Mund-Kontakt aufnehmen können, ist eine Zusatzaufnahme von PAK, resp. BaP jedoch anzunehmen. Eine erste Untersuchung bei 60 Kindern zeigte auch eine – allerdings nicht signifikante – Tendenz zu höheren PAK-Metaboliten im Urin im Vergleich zu 23 Kontrollkindern. Hier werden die Humanbiomonitoring-Ergebnisse von 347 Kindern unter 6 Jahren vorgestellt, die in den ehemaligen US-Housing in Frankfurt am Main in Wohnungen mit alten Parkettfußböden wohnen und deren Urine im Rahmen der speziell für diese Bewohner eingerichteten umweltmedizinischen Sprechstunde des Gesundheitsamtes untersucht wurden.

Probanden und Methoden: Alle Bewohner der ehemaligen US-Housing konnten sich untersuchen lassen, ohne jegliche Ausschlusskriterien. Insgesamt nahmen 1213 Bewohner dieses Angebot wahr, darunter 347 Kinder unter sechs Jahren. In den Spontanurinen wurden die monohydroxylierten Phenanthrene und 1-Hydroxypyren nach Anreicherung auf einer Vorsäule mittels HPLC getrennt und durch Fluoreszenzdetektion analysiert. Die Nachweisgrenze für die einzelnen Metaboliten lag bei 5 ng/l.

Ergebnisse: Untersuchungen des Klebers zeigten, dass in mehr als einem Drittel der Wohnungen kein teerhaltiger Kleber verwendet worden war; in einem weiteren war die BaP-Belastung zwischen 10 und 3000 mg/kg, in einem weiteren Drittel lag sie über 3000 mg/kg. Weniger als 10% der Hausstäube enthielten über 1 mg BaP/kg, in etwa einem Prozent der Proben wurde mehr als 10 mg BaP/kg gemessen. Insgesamt war kein Einfluss der BaP-Konzentration im Kleber oder Hausstaub auf die PAK-Metabolitenausscheidung der Kinder zu erkennen. Die Metabolitenausscheidung im Urin der Kinder aus den Wohnungen ohne oder mit teerhaltigem Parkettkleber wies keine signifikanten Unterschiede auf. Die Medianwerte der 1-, 2-, 3-, 4-Hydroxyphenanthrene und von 1-Hydroxypyren der Kinder aus Wohnungen ohne Teerkleber betragen 427, 227, 362, 42 und 184 ng/g Kreatinin, die der Kinder aus den Wohnungen mit über 3000 mg BaP/kg Kleber 467, 222, 368, 48, 152 ng/g Kreatinin.

Diskussion: Durch diese größere Untersuchung konnten frühere Ergebnisse kleinerer Untersuchungen bestätigt werden. Teerhaltiger Parkettkleber in der Wohnung führt bei Kindern unter sechs Jahren, die gegenüber Bodenstaub exponiert sind, nicht zu einer statistisch signifikanten Zusatzbelastung an PAK. Vor diesem Hintergrund kann für Bewohner solcher Wohnungen keine Gefahr postuliert werden, die eine Sanierung erforderlich machten. Aus Vorsorgegründen sind jedoch beim Überschreiten bestimmter BaP-Konzentrationen im Hausstaub Minderungsmaßnahmen zu empfehlen.

Schlagwörter: Benzo(a)pyren; 1-Hydroxypyren; PAK; PAK-Metaboliten; Parkettkleber; Phenanthrene, hydroxylierte; polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe

Abstract

Urinary Levels of 1-Hydroxypyrene, 1-, 2-, 3, and 4-Hydroxyphenanthrenes in Children Living in Flats with High PAH-Contents of Glue Used for Parquet Floors – Data out of the Former American Housing Estates, Frankfurt am Main, Germany.

Objective: In former years tar oil based parquet glue containing high concentrations of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) was standard construction practice in Germany. Due to broken or loose boards this may lead to high contamination in household dust. Infants and children playing on the floor are considered to be at risk of an elevated PAH exposure by ingesting PAH-contaminated dust when playing on the floor. For assessing internal exposure human biomonitoring was offered to all inhabitants of the former American Housing estates in Frankfurt am Main, which had been built with parquet flooring in 1955/56.

Probands and methods: Spot urines of 347 children < 6 years old were analysed for hydroxylated phenanthrenes and 1-hydroxypyrene by HPLC and flame ionization detector. The limit of detection was 5 ng/l.

Results: In about a third of the flats tested, the parquet flooring had been built with a tarfree glue, in about one third of the flats BaP contamination was 10-3000 mg/kg, and in another third it was above 3000 mg/kg with a maximum value of 12 000 mg BaP/kg glue. Internal exposure in children living in flats with high BaP-contamination in the parquet glue were not different from those children where this glue had not been used. Median urine levels for 1-, 2-, 3- and 4-hydroxyphenanthrene and 1-hydroxypyrene in the urine samples of the children potentially exposed was 467; 222; 368; 48; 152 ng/g

creatinine compared with 427; 227; 362; 42 und 184 ng/g creatinine in the urine specimen of the unexposed children.

Conclusion: Based on these data, where an increased internal PAH exposure in children playing in homes with old parquet flooring and a coal tar based parquet glue could not be demonstrated, the hypothesis of an increased health risk could not be confirmed. In special cases however, with high BaP-levels in household dust measures should be undertaken to minimize exposure for reason of prevention.

Keywords: Benzo-a-pyrene; , 1-hydroxypyrene; PAH; PAH-metabolites; parquet glue; polycyclic aromatic hydrocarbons; phenanthrenes, hydroxylated

1 Einleitung

Polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) sind eine Gruppe von mehreren hundert Substanzen mit mehr als zwei und bis zu sechs kondensierten Benzolringen. Elf dieser Stoffe sind von der Senatskommission der Deutschen Forschungsgemeinschaft als krebserzeugend eingestuft, darunter Benzo(a)-pyren (BaP), das nach national und international üblicher Praxis häufig als Leitsubstanz für PAK insgesamt angewandt wird. Inhalative PAK-Aufnahme kann Lungenkrebs, dermale Exposition kann Hautkrebs verursachen.

PAK entstehen bei unvollständiger Verbrennung von Holz, Öl, Kohle und Gas, ebenso wie beim Zigarettenrauchen oder Grillen. Sie sind ubiquitär verbreitet: In der Außenluft konnten sie durch die Luftreinhaltemaßnahmen der letzten Jahrzehnte in industrialisierten Gebieten deutlich vermindert werden. Im Innenraum ist Zigarettenrauch, der bis zu 150 verschiedene PAKs enthält, die hauptsächliche PAK-Quelle; seltener sind offene Kamine die Quelle.

Die Bevölkerung nimmt PAK (BaP) im Wesentlichen über PAK-belastete Nahrung auf. In verschiedenen Untersuchungen wurden nahrungsbedingte PAK-Aufnahmen von bis zu 16 µg/d beschrieben, die mittlere BaP-Zufuhr lag etwa bei 0,1 µg/d, mit Maximalwerten von bis zu 1-2 µg/d (SANTODONATO et al. 1981, DENNIS et al. 1983, LIOY et al. 1988, VAESSEN et al. 1988, DE VOS et al. 1990, MENZIE et al. 1992, BUCKLEY et al. 1995, LODOVICI et al. 1995). Demgegenüber ist die Aufnahme über die Luft in der Regel sehr gering; die PAK-Zufuhr durch Zigarettenrauchen kann jedoch nochmals im gleichen Bereich wie die orale Zufuhr liegen.

1997 wurde – eher zufällig – eine weitere mögliche Quelle für eine PAK-Zufuhr "entdeckt": In durch Staubsaugen gewonnenen Hausstaubproben aus Wohnungen der ehemaligen US-Housing in Frankfurt am Main wurden sehr hohe PAK-, resp. BaP-Gehalte gefunden (mittlere Belastung ca. 90 mg PAK/kg resp. ca 5 mg BaP/kg, maximal 1400 mg PAK/kg resp. 90 mg BaP/kg), verursacht durch einen PAK-haltigen Parkettkleber (ca. 20 000 mgPAK/kg, ca 1200 mg BaP/kg). In der Raumluft dieser Wohnungen war der BaP-Gehalt unauffällig, sodass nicht von einer inhalativen BaP-Belastung für die Bewohner dieser Wohnungen auszugehen war. Der belastete Hausstaub kann jedoch von am Boden spielenden Kindern über Hand-Mund-Kontakt oral aufgenommen werden und so zu einer erheblichen Zusatzbelastung an PAK führen.

Weitere Recherchen zeigten, dass es sich bei diesem PAK-haltigen Parkettkleber nicht um ein lokales oder ein Problem ehemaliger US-Liegenschaften in Deutschland handelt, sondern – angesichts der früher in Deutschland allgemein üblichen Verwendung PAK-haltiger Parkettkleber – um ein Problem alter Parkettböden in Deutschland generell. Angesichts dieser bundesweiten Bedeutung des Problems wurden auf Bundesebene Empfehlungen zum Umgang mit dieser neu erkannten Problematik im Innenraum veröffentlicht (UBA 1998a, b). Eine entsprechende Empfehlung der Arbeitsgemeinschaft der Bauministerien der Länder ist derzeit in Vorbereitung (ARGEBAU 2000).

In Frankfurt am Main wurde – parallel zu den flächendeckenden Untersuchungen von Kleber- und Hausstaubproben in den ehemaligen US-Liegenschaften – ab Februar 1998 den Bewohnern eine umweltmedizinische Beratung und Untersuchung angeboten, die auch ein Humanbiomonitoring zur Untersuchung der individuellen inneren Belastung mit einschloss. Mehr als 1200 Menschen ließen sich untersuchen. Nachfolgend werden die Untersuchungsergebnisse der Kinder unter sechs Jahren vorgestellt, die wegen des Spielens auf dem Boden und der möglichen oralen und dermalen PAK-aufnahme als potentielle "Risikogruppe" angesehen wurden.

2 Probanden und Methoden

2.1 Ambientmonitoring

Im Auftrag der großen Wohnungsgesellschaften wurden flächendeckend alle entsprechenden Wohnungen untersucht: Parkettkleber wurde nach Anlegen eines Bohrkerns an einer wenig sichtbaren Stelle im Parkettboden entnommen und in drei verschiedenen Labors mittels GC/MS untersucht. Die Nachweisgrenze lag bei etwa 1 mg BaP/kg. Die Hausstaubproben wurden entsprechend der Empfehlung des Umweltbundesamtes mit einem modifizierten Kehr/Wischverfahren entnommen. Dabei wurde der auf dem Boden liegende, möglichst sieben Tage alte Hausstaub mit einer PU-Schaumrolle zusammengefasst, zusammen mit den an der PU-Rolle befindlichen Staubresten aufgenommen und zur Hausstaubprobe vereinigt. Die Analytik erfolgte in drei Labors mittels GC/MS, mit einer Nachweisgrenze von 0,1 mg/kg.

2.2 Humanbiomonitoring

Die Bewohner wurden im Rahmen eines Informationsabends über die Schadstoff-Problematik und das Angebot der umweltmedizinischen Beratung und Humanbiomonitoring-Untersuchung informiert. Auch die Presse berichtete hierüber. Darüber hinaus wurde durch in alle Briefkasten verteilte Informationsblätter mehrfach auf die umweltmedizinische Sprechstunde hingewiesen. Bis Ende Dezember 1998 hatten 1213 (12,7%) der insgesamt 9548 Bewohner das Angebot angenommen. Die Teilnahme rate von Kindern unter sechs Jahren lag mit 27,2% (347 von 1275) am höchsten. Generell wurden alle Interessierten aus den ehemaligen US-Housing untersucht, ohne jedwelche Ausschlusskriterien. Diese spezielle umweltmedizinische Sprechstunde wurde bis Ende Dezember 1998 durchgeführt. Wegen des übergroßen Andrangs wurde mit den niedergelassenen Kinderärzten vereinbart,

dass die Kinder den Spontanurin zur Untersuchung auf PAK-Metabolite zunächst bei Ihren Kinderärzten abgeben. Ab Mai wurden die Kinder zusammen mit ihren Eltern im Rahmen der Spezialsprechstunde im Gesundheitsamt untersucht.

Darüber hinaus wurden fragebogengestützt Angaben zu Beschwerden und Erkrankungen der Kinder erhoben (Ergebnisse hier nicht vorgestellt). Fragen zur (Passiv)-Rauchbelastung oder zur konkreten Ernährung an den Tagen vor der Urinabgabe enthielt der standardisierte Fragebogen nicht.

Die Urine wurden tiefgefroren und dann in das Labor des Instituts für Arbeits-, Sozial- und Umweltmedizin der Universität Erlangen-Nürnberg verbracht. Dort wurden die Urine nach einer modifizierten Methode von LINTELMANN et al. (1994, 1998) untersucht. Dabei werden 1-Hydroxypyren sowie die monohydroxylierten Phenanthrene auf einer Vorsäule angereichert und von anderen Harnbestandteilen abgetrennt. Die PAK-Metaboliten werden dann mittels HPLC getrennt und durch Fluoreszenzdetektion analysiert. Die Nachweisgrenze für die einzelnen Metaboliten liegt bei ca. 5 ng/l.

3 Ergebnisse

3.1 Ambientmonitoring

Steinkohlenteerölhaltiger Parkettkleber war nicht in allen Wohnungen verwendet worden: in mehr als einem Drittel der Wohnungen lag der BaP-Gehalt im Parkettkleber unter 10 mg/kg, was auf ein bituminöses Material hinweist. In einem Drittel der Wohnungen wurden zwischen 10 und 3000 mg BaP/kg Kleber gemessen, in einem weiteren Drittel fanden sich sehr hohe Werte mit mehr als 3000 mg BaP/kg, mit einem Maximalwert von 12 000 mg BaP/kg.

In über 90% der (ca. 1600) Hausstaubproben war weniger als 1 mg BaP/kg nachweisbar, ca 8% enthielten zwischen 1 und 10 mg BaP/kg und in weniger als 1% der Wohnungen war der vom Umweltbundesamt genannte "Richtwert" von 10 mg BaP/kg überschritten und demnach unverzüglicher Sanierungsbedarf gegeben. Der Medianwert der BaP-Konzentrationen in allen untersuchten Hausstaubproben lag bei 0,05 mg BaP/kg, das 95. Perzentil bei 2,7 mg BaP/kg, der Maximalwert bei 490 mg/kg.

3.2 Humanbiomonitoring

Die Gesamt-Auswertung der Urinproben von insgesamt 347 Kindern unter sechs Jahren ist in **Tabelle 1** dargestellt. Die Konzentrationen an 1-Hydroxyphenanthren in den Urinproben waren generell am höchsten, gefolgt von 3-Hydroxyphenan-

thren und 1-Hydroxypyren. Die niedrigsten Konzentrationen wurden stets bei 4-Hydroxyphenanthren gemessen.

Bei 259 der Kinder war der BaP-Gehalt des Parkettklebers aus der Wohnung bekannt, bei 257 Kindern auch die BaP-Konzentration im Hausstaub. Es war kein Einfluss der BaP-Konzentration im Parkettkleber auf die Höhe der Metaboliten-Ausscheidung im Harn der Kinder zu erkennen (→ *Abb. 1*), die Korrelationen waren sämtlich nicht signifikant (→ *Tabelle 4*). In der Gruppenauswertung war die PAK-Metabolitenausscheidung im Urin der Kinder mit hoher und sehr hoher BaP-Belastung im Parkettkleber nicht höher als die der Kinder ohne teerölhaltigen Parkettkleber in der Wohnung (→ *Tabelle 2, Abb. 2*). Auch zwischen der BaP-Konzentration im Hausstaub und der PAK-Metabolitenausscheidung im Urin der Kinder ließen sich keine Zusammenhänge erkennen (→ *Tabelle 3, Abb. 3*; da die meisten Werte im Hausstaub unter 1 mg BaP/kg lagen, wurde hier die logarithmische Darstellung gewählt). Auch hier war in der Gruppenbetrachtung kein Einfluss des BaP-Gehalts im Hausstaub auf die innere Belastung der Kinder erkennbar (→ *Tabelle 3, Abb. 4*).

Die hier erzielten Ergebnisse können mit drei anderen Studien verglichen werden, bei denen insgesamt 74 Kinder untersucht wurden, deren Wohnungen keine Parkettböden aufwiesen (HEUDORF und ANGERER 1998, LEDERER und ANGERER 1998, ANGERER 1999). Zwei dieser Studien betrafen Kinder unter 6 Jahren, eine Kinder bis zu 12 Jahren. Die PAK-Metabolitenausscheidung der hier vorgestellten Kinder lag insgesamt im erwarteten Bereich (→ *Tabelle 5*).

4 Diskussion

Die durch PAK-haltige Parkettkleber verursachten, teilweise sehr hohen PAK- (BaP)-Befunde in Hausstaubproben aus Wohnungen mit alten Parkettböden lösten im ganzen Bundesgebiet eine intensive Untersuchungstätigkeit aus. Das Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Umweltbundesamtes konnte mehr als 5000 von verschiedenen Untersuchungsinstituten aus ganz Deutschland übermittelte Datensätze zusammenstellen und in einem Bericht veröffentlichen (DIECKOW et al. 1999): Insgesamt wurden 34% der untersuchten Parkettkleber als teerfrei (< 10 mg BaP/kg) und 29% als stark teerhaltig (> 3000 mg BaP/kg) eingestuft. 7% der untersuchten Hausstaubproben wiesen eine BaP-Gehalt von mehr als 10 mg/kg auf, 13% der Saugproben und 2% der Kehproben. Es konnte weder eine Beziehung zwischen den BaP-Gehalten im Kleber und denen im Hausstaub noch zwischen den BaP-Gehalten im Hausstaub und denen in der

Tabelle 1: PAK-Stoffwechselprodukte im Urin von 347 Kindern unter sechs Jahren aus den ehemaligen US-Housing in Frankfurt am Main (ng/g Kreatinin)

PAH-Metabolit	X ± SD	Bereich	P 5	P 25	P 50	P 75	P 95
1-OHPhe	543 ± 375	< 5 - 2887	176	318	445	653	1210
2-OHPhe	293 ± 255	< 5 - 2588	90	160	218	327	768
3-OHPhe	455 ± 321	< 5 - 2687	134	262	367	539	1136
4-OHPhe	95 ± 197	< 5 - 2613	< 5	23	47	103	310
1-OHPyr	187 ± 158	< 5 - 1429	< 5	97	148	232	467

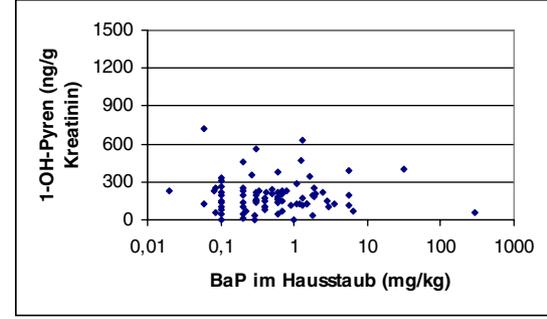
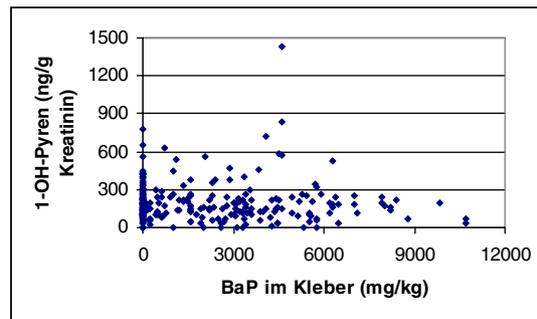
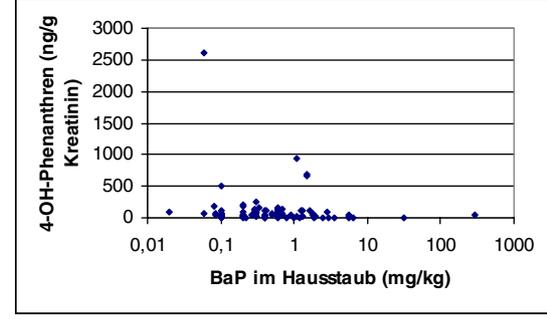
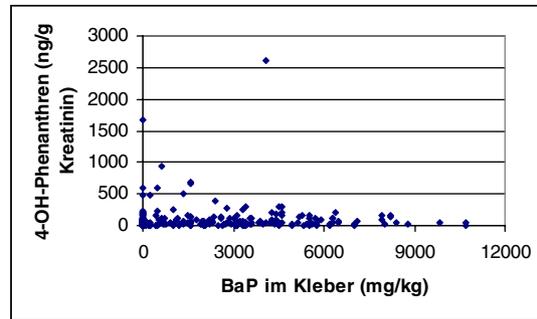
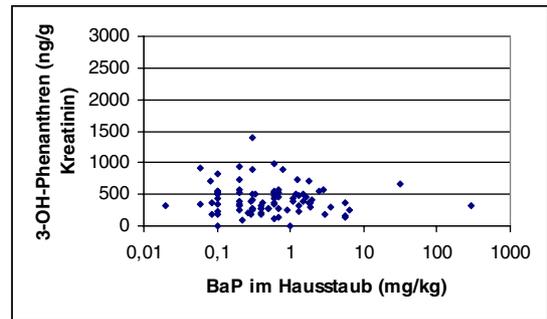
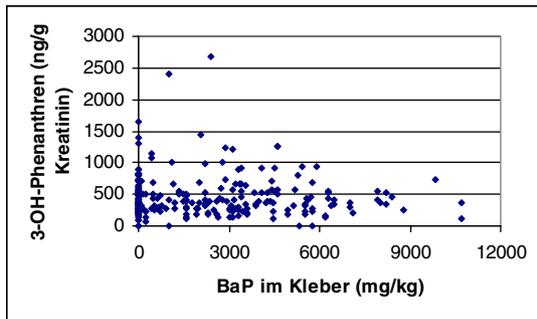
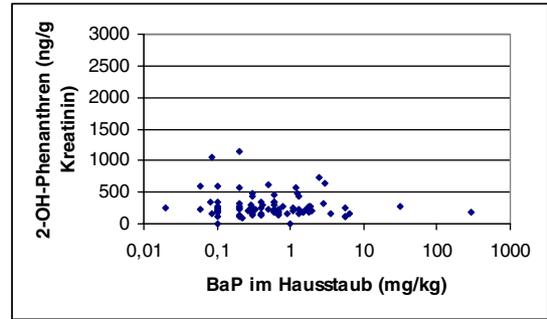
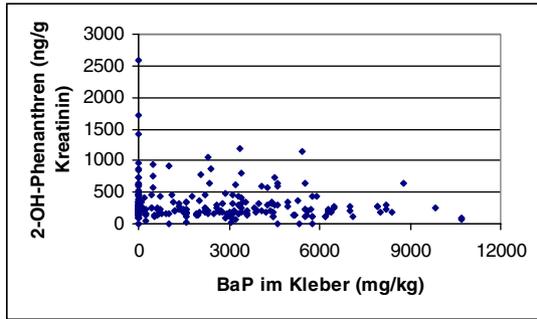
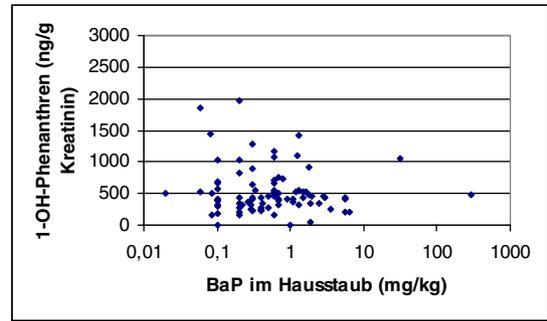
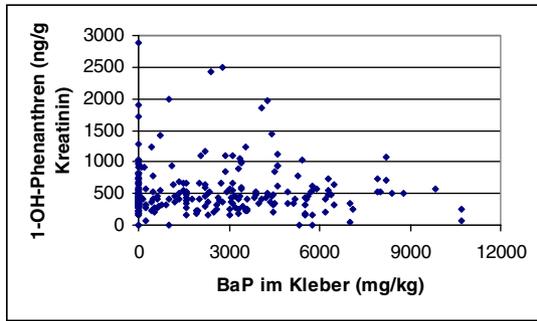


Abb. 1: PAK-Metaboliten im Urin der Kinder in Relation zum BaP-Gehalt des Parkettklebers

Abb. 3: PAK-Metaboliten im Urin der Kinder in Relation zum BaP-Gehalt des Hausstaubs

Tabelle 2: PAK-Stoffwechselprodukte im Urin von Kindern aus den ehemaligen US-Housing in Frankfurt am Main in Abhängigkeit vom BaP-Gehalt im Parkettkleber der Wohnung

PAK-Metabolit	BaP im Kleber < 10 mg/kg			BaP im Kleber 10-3000 mg/kg			BaP im Kleber ≥ 3000 mg/kg			Kruskal-Wallis-Test
	n	X ± SD	Median	n	X ± SD	Median	n	X ± SD	Median	
1-OHPhe	81	538 ± 411	427	87	537 ± 430	418	91	536 ± 354	467	0,737
2-OHPhe	81	322 ± 348	227	87	307 ± 247	220	91	279 ± 210	222	0,856
3-OHPhe	81	439 ± 286	362	87	475 ± 413	363	91	439 ± 261	368	0,964
4-OHPhe	81	88 ± 200	42	87	106 ± 168	54	91	99 ± 276	48	0,504
1-OHPyr	81	211 ± 147	184	87	181 ± 124	150	91	192 ± 196	152	0,244

Tabelle 3: PAK-Stoffwechselprodukte im Urin von Kindern aus den ehemaligen US-Housing in Frankfurt am Main in Abhängigkeit vom BaP-Gehalt im Hausstaub der Wohnung

PAK-Metabolit	BaP im Hausstaub < NWG			BaP im Hausstaub NWG-1 mg/kg			BaP im Hausstaub ≥ 1 mg/kg			Kruskal-Wallis-Test
	n	X ± SD	Median	n	X ± SD	Median	n	X ± SD	Median	
1-OHPhe	167	544 ± 413	445	64	532 ± 389	423	26	497 ± 307	427	0,814
2-OHPhe	167	316 ± 308	219	64	274 ± 194	224	26	286 ± 164	221	0,911
3-OHPhe	167	464 ± 363	360	64	425 ± 253	365	26	393 ± 163	374	0,991
4-OHPhe	167	90 ± 159	46	64	114 ± 326	53	26	120 ± 245	32	0,241
1-OHPyr	167	199 ± 173	157	64	177 ± 127	158	26	204 ± 140	163	0,870

Raumluft festgestellt werden. Die in Frankfurt erhaltenen und hier vorgestellten Werte sind hiermit gut vergleichbar.

Die Forschungs- und Materialprüfungsanstalt der Universität Stuttgart führte im Auftrag des Landesgesundheitsamtes Baden-Württemberg eine differenzierte Untersuchung in Räumen mit und ohne PAK-haltigen Parkettkleber durch. Dort wurden neben Parkettkleber auch Raumluftproben sowie Alt-, Frisch- und Sedimentationsstäube untersucht – nicht nur auf BaP, sondern auch auf andere PAK. Auch in dieser Untersuchung war eine erhöhte BaP-Belastung des Innenraums durch kontaminierten Bodenstaub eher die Ausnahme, und es wurden für das schwerflüchtige BaP ebenfalls keine Korrelationen zwischen den verschiedenen untersuchten Medien gefunden. Bei anderen, leichter flüchtigen PAK, wie z.B. Phenanthren in verschiedenen Medien waren jedoch durchaus Zusammenhänge zum BaP-Gehalt des Klebers erkennbar, die Korrelationen waren teilweise signifikant (LGA und FMPA Baden-Württemberg 1999).

Nach den ersten Hausstaub- und Raumluftuntersuchungen aus Frankfurt am Main (s. Einleitung) wiesen rechnerische Expositionsabschätzungen darauf hin, dass für erwachsenen Bewohner nicht mit einer nachweisbar höheren inneren PAK (BaP)-Belastung zu rechnen war. Für am Boden spielende kleine Kinder jedoch, die beim Spielen über Hand-Mund-Aktivität PAK (BaP)-belasteten Hausstaub aufnehmen können, musste von einer nicht unerheblichen oralen und dermalen Zusatzexposition ausgegangen werden. Erste orientierende rechnerische Expositionsabschätzungen – mit der Annahme einer Belastung von 5 oder 100 mg BaP/kg Hausstaub, einer Bodenstaubaufnahme von 20 oder 100 mg pro Tag (AGLMB 1995) und vollständiger Resorption – zeigten, dass es hier zu erheblichen Zusatzbelastungen kommen

kann, die die allgemeine PAK-Aufnahme mit der Nahrung im ungünstigen Fall bis um ein Mehrfaches übersteigen kann.

Angeht die bekannten Unsicherheiten der rechnerischen Expositionsabschätzung sollte, wo immer möglich, die tatsächliche innere Belastung untersucht werden (EWERS und SUCHENWIRTH 1996). Voraussetzungen sind u.a. das Vorhandensein geeigneter und ausreichend empfindlicher Untersuchungsparameter. Vor mehr als zehn Jahren hatte Jongeneelen 1-Hydroxypyren als geeigneten Marker für eine PAK-Exposition vorgeschlagen und eine entsprechende analytische Methode publiziert (JONGENELEN et al. 1988, JONGENELEN und ANZION 1991).

In der Zwischenzeit haben zahlreiche Untersuchungen in vielen Ländern gezeigt, dass 1-Hydroxypyren im Urin eine PAK-Belastung valide abbildet, und zwar nicht nur PAK-Belastungen am Arbeitsplatz, sondern angesichts ausreichend niedriger Nachweisgrenzen auch im Umweltbereich (JONGENELEN et al. 1988, JONGENELEN 1998, LEVIN 1995, STRICKLAND et al. 1996, GÜNDEL et al. 1996). Wiederholt wurde jedoch kritisch angemerkt, dass hierbei nur ein Vertreter exemplarisch für eine Vielzahl von entstehenden Metaboliten zur Abschätzung der Exposition gegenüber einem Gemisch mit vielen verschiedenen PAK herangezogen wird. Darüber hinaus erschiene es wünschenswert, auch Metaboliten solcher PAK zu bestimmen, die als krebserzeugend eingestuft sind. An der Entwicklung einer Methode, die z.B. Metaboliten von BaP erfasst, wird zwar derzeit gearbeitet; die Methode ist jedoch noch nicht so weit fortgeschritten, dass sie in größeren umweltmedizinischen Untersuchungen eingesetzt werden könnte.

In der hier vorliegenden Untersuchung wurden in einem Arbeitsschritt zusätzlich zu 1-Hydroxypyren vier verschiedene Hydroxyphenanthrene mit erfasst. Auch Phenanthren

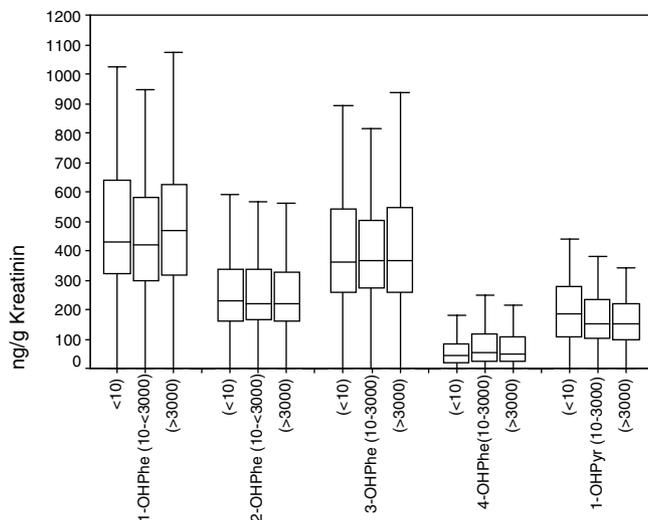


Abb. 2: PAK-Metaboliten im Urin der Kinder in Abhängigkeit vom BaP-Gehalt des Parkettklebers (< 10 mg BaP/kg; 10-3000 mg BaP/kg; > 3000 mg/kg); in den Boxplots sind jeweils angegeben: P 10, P 25, P 50; P 75 und P 90.

Tabelle 4: Korrelationen zwischen den PAK-Metaboliten im Urin der Kinder und dem BaP-Gehalt im Kleber und Hausstaub (modifiziertes Kehr/Wischverfahren)

PAK-Metabolit	BaP im Kleber		BaP im Hausstaub	
	n	r	n	r
1-OHPhe	259	0,017	257	-0,044
2-OHPhe	259	-0,041	257	0,006
3-OHPhe	259	0,023	257	-0,016
4-OHPhe	259	0,062	257	-0,040
1-OHPyr	259	-0,115	257	-0,004

ist zwar nicht als kanzerogen eingestuft, die Phenanthrenkonzentrationen lagen jedoch in allen Kleber-, Hausstaub- oder Raumluftproben in deutlich höheren Konzentrationen vor als Benzo(a)pyren. Darüber hinaus wies Phenanthren in der Raumluft oder im Hausstaub signifikante Korrelationen mit dem BaP-Gehalt des Klebers der Wohnungen auf (LGA und FMPA Baden-Württemberg 1999). Demzufolge erschienen gerade die Phenanthrenmetabolite geeignet, mögliche Unterschiede in der inneren PAK-Belastung durch das Wohnen in Wohnungen mit PAK-haltigem Parkettkleber besonders gut abzubilden.

Aufgrund der Eliminationshalbwertszeiten von 1-Hydroxypyren und der hydroxylierten Phenanthrene (ANGERER 1999, MANN-SCHRECK 1997) kennzeichnen die Konzentrationen im Urin die Exposition während der zurückliegenden 10 bis 30 Stunden.

Der Diskussion der konkreten Ergebnisse der vorliegenden Humanbiomonitoring-Untersuchung sollen einige Vorbemerkungen vorangestellt werden:

1. Es handelt sich hier nicht um Ergebnisse einer epidemiologisch-repräsentativen Studie, sondern um Ergebnisse eines offenen Untersuchungsangebots; einziges Ein-

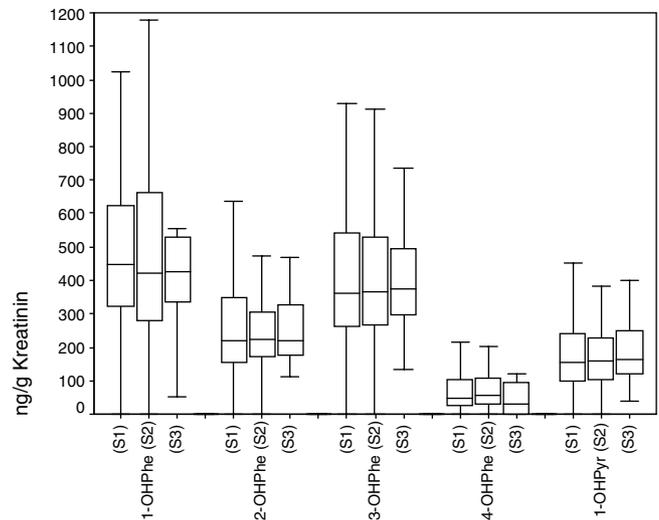


Abb. 4: PAK-Metaboliten im Urin der Kinder in Abhängigkeit vom BaP-Gehalt des Hausstaubs (S1: < NWG; S2: NWG < 1 mg BaP/kg; S3: ≥ 1 mg BaP/kg); in den Boxplots sind jeweils angegeben: P 10, P 25, P 50; P 75 und P 90.

schlusskriterium war das Wohnen in den ehemaligen US-Housing mit Parkettböden aus den 50er Jahren. Ausschlusskriterien gab es keine. Aus Kostengründen konnte keine eigene Kontrollgruppe untersucht werden. Nach Erhalt der Ergebnisse der Kleberuntersuchungen konnte jedoch eine interne Kontrollgruppe aus den Bewohnern der Wohnungen ohne teerpechhaltigen Parkettkleber (BaP < 10 mg/kg) gebildet werden. Diese konnte dann mit zwei Gruppen mit unterschiedlich hoher Belastung des Klebers (10-3000 mg BaP/kg und ≥ 3000 mg BaP/kg) verglichen werden. Dieses Verfahren hat einerseits den Nachteil, dass die Einteilung in Belastungsklassen erst nach der Abgabe des Urins durchgeführt wurde ("ex post"), andererseits besteht der Vorteil, dass die Urinuntersuchung völlig doppelblind (de facto: dreifach blind) durchgeführt wurde. Der individuelle Expositionsstatus war weder den Untersuchten, noch den Ärzten, noch dem Labor bekannt. Die meisten Menschen hatten sich untersuchen lassen, bevor die Wohnungsbaugesellschaften die Ergebnisse der Kleberuntersuchungen mitgeteilt hatten. Insofern kann auch ein Selektions-Bias bei der Teilnahme weitgehend ausgeschlossen werden. Darüber hinaus zeigt der Vergleich der Ergebnisse sämtlicher Kleberuntersuchungen aus den ehemaligen US-Housing in Frankfurt mit den Kleberdaten der Wohnungen der Untersuchungsteilnehmer, dass die Besucher der Sprechstunde, obwohl Selbstmelder, tatsächlich als "repräsentativ" gelten können. Außerdem war gerade bei den Kindern die Teilnahme an der Untersuchung recht hoch: Mehr als jedes vierte Kind unter sechs Jahren aus den ehemaligen US-Housing in Frankfurt ließ seinen Urin untersuchen.

2. Die Untersuchungen wurden durchgeführt, nachdem die Bewohner über die Problematik informiert worden waren und ihnen geraten worden war, die potenzielle Exposition durch PAK-belasteten Hausstaub durch häufiges feuchtes Wischen zu reduzieren. Demzufolge kann die Hypothese aufgestellt werden, dass vor dieser In-

formation höhere PAK-Metabolitenkonzentrationen im Urin der Kinder zu messen gewesen wären. Nachdem die Information über den teerhaltigen Parkettkleber und die mögliche Exposition über alle Medien verbreitet worden war, ist davon auszugehen, dass die gesamte Bevölkerung informiert war und gegebenenfalls ihr Reinigungsverhalten angepasst hat. Insofern kann diese Hypothese im Nachhinein weder bestätigt noch ausgeschlossen werden. Allerdings ließen die neueren, realistischeren Expositionsabschätzungen mit den BaP-Konzentrationen in den durch modifiziertes Kehrl/Wischverfahren gewonnenen Hausstaubproben, die etwa 100fach niedriger lagen als die BaP-Konzentrationen der durch Saugen gewonnenen Proben, und mit einer 10%igen Resorptionsrate (HACK und SELENKA 1996) keine sehr großen PAK-Zusatzbelastungen durch Hausstaub-Aufnahme mehr erwarten (HEUDORF 1999).

Dies vorausgeschickt, brachte die hier vorliegende Untersuchung zwei wesentliche Ergebnisse:

1. Die Gehalte an 1-Hydroxypyren im Urin der Kinder lagen in dem aus anderen Untersuchungen erwarteten Bereich;
2. Es konnten keine Hinweise auf Zusammenhänge zwischen der Metabolitenkonzentration im Urin der Kinder und der BaP-Belastung in der Wohnung (Kleber oder Hausstaub) gefunden werden.

Zu 1: Zum Vergleich der hier vorgestellten Daten konnten drei Kontrollgruppen von Kindern herangezogen werden, die alle in demselben Institut nach derselben Methode untersucht worden waren (\rightarrow Tabelle 5). Die 1-Hydroxypyren-Konzentrationen der Kinder aus den ehemaligen US-Housing in Frankfurt lagen innerhalb des aus anderen Untersuchungen erwarteten Bereichs. In der internationalen Literatur sind darüber hinaus weitere Untersuchungen von Kindern auf 1-Hydroxypyren im Urin publiziert: In den Niederlanden hatten Van Wijnen und Mitarbeiter 644 Kinder im Alter von ein bis sechs Jahren aus fünf verschiedenen Untersuchungsgebieten mit einer sehr unterschiedlichen PAK-Belastung in der Umwelt untersucht. Die durchschnittlichen 1-Hydroxypyrengehalte im Urin der Kinder lagen bei 680 ± 908 ng/g Kreatinin, mit einem Maximalwert von ca. 14 000 ng/g Kreatinin (VAN WIJNEN et al. 1996). Es muss jedoch angezweifelt werden, ob die Methodik tatsächlich vergleichbar ist, da solch hohe Werte bisher nur bei PAK-Expositionen an PAK-belasteten Arbeitsplätzen beobachtet worden waren (ANGERER 1999). Ebenfalls sehr hohe 1-Hydroxypyrengehalte im Urin wurden bei achtjährigen Kindern in Polen gemessen: die Medianwerte lagen zwischen 300 und 600 ng/g Kreatinin, der Maximalwert bei 7000 ng/g Kreatinin (SIWINSKA et al. 1998);

diese Kinder lebten in einem sehr stark industrialisierten und kontaminierten Gebiet. In einer weiteren Untersuchung mit zwei bis vier Jahre alten Kindern aus Familien mit niedrigen Einkommen in den USA wurde eine durchschnittliche 1-Hydroxypyrenkonzentration im Urin von 98 ± 83 ng/g Kreatinin gefunden, der Bereich lag zwischen 16 und 360 ng/g Kreatinin (CHUANG et al. 1999). Studien zur Hydroxyphenanthren-Ausscheidung bei Kindern sind bislang nicht publiziert, sodass die hier erhaltenen Ergebnisse zu Phenanthren-Metaboliten nicht mit anderen Daten bei Kindern verglichen werden können.

Zu 2: Es konnten keine Hinweise darauf gefunden werden, dass eine BaP-Belastung des Klebers oder des Hausstaubs zu einer nachweisbar höheren PAK-Metabolitenausscheidung im Urin der "Risikogruppe" von Kindern unter sechs Jahren aus diesen Wohnungen führt. Die anhand unterschiedlicher äußerer BaP-Belastung gebildeten Gruppen wiesen keine signifikanten Unterschiede in der inneren Belastung auf, und auch die Korrelationsberechnungen ließen keine Zusammenhänge zwischen innerer und äußerer Belastung erkennen.

Hiermit werden – bei einer großen Zahl untersuchter Kinder – frühere Untersuchungen an kleineren Kollektiven bestätigt. Bei einer ersten Untersuchung im Dezember 1997 bei 60 Kindern unter sechs Jahren aus den ehemaligen US-Housing in Frankfurt und 23 Kontrollkindern waren bei 1-Hydroxypyren und den hydroxylierten Phenanthrenen statt der anhand der rechnerischen Expositionsabschätzungen mit gesaugtem Hausstaub erwarteten großen Unterschiede nur (nicht signifikante) Tendenzen zu höheren Werten festgestellt worden (HEUDORF und ANGERER 1998, 1999). Ähnliche Ergebnisse wurden auch aus Erlangen berichtet: dort lag die 1-Hydroxypyren-Konzentration im Urin von 50 Kindern im Alter bis zu zwölf Jahren aus Wohnungen mit Parkettböden bei 200 ng/g Kreatinin (P 95: 470 ng/g Kreatinin), die der Vergleichsgruppe bei 240 ng/g Kreatinin (P 95: 450 ng/g Kreatinin) (LEDERER und ANGERER 1998).

Verschiedene Duplikat-Diät-Studien haben gezeigt, dass Erwachsene 0,1 bis 2 μ g BaP pro Tag mit der Nahrung aufnehmen; für Kinder liegen keine entsprechenden Daten vor (SANTODONATO et al. 1981, DENNIS et al. 1983, LIOY et al. 1988, VAESSEN et al. 1988, DE VOS et al. 1990, MENZIE et al. 1992, BUCKLEY et al. 1995, LODOVICI et al. 1995). In mehreren Untersuchungen wurden – auch bei Kindern – *interindividuell* 100- bis mehr als 200-fache Unterschiede in der nahrungsbedingten BaP-Aufnahme beschrieben (BUCKLEY et al. 1995, LIOY et al. 1998, CHUANG et al. 1999). Darüber hinaus zeigten Wiederholungsuntersuchungen erhebliche *intraindividuelle* Unterschiede in der nahrungsbedingten BaP-

Tabelle 5: 1-Hydroxypyren im Urin von Kindern unter sechs Jahren aus den ehemaligen US-Housing in Frankfurt am Main im Vergleich mit verschiedenen Kontrollgruppen

n	X \pm SD	Median	P 95	Bereich	Literatur
23	168 \pm 88	149	329	< NWG-334	HEUDORF und ANGERER 1998
29	221 \pm 140	200	470		LEDERER und ANGERER 1998*
22		162	309	< NWG-425	ANGERER 1999
347	187 \pm 158	148	467	< NWG-429	diese Untersuchung

* Kinder bis zu 12 Jahren

Aufnahme bis zum ca. 30-fachen (LIOY et al. 1998). Es ist plausibel, dass Zusatzbelastungen durch kontaminierten Bodestaub im Bereich von 0,001-0,01 µg BaP pro Tag (Expositionsabschätzung mit von der Bodenoberfläche gewonnenem Hausstaub und einer angenommenen Resorptionsrate von 10%; HEUDORF 1999) vor dem Hintergrund der relativ hohen und darüber hinaus sehr variablen BaP-Zufuhr mit der Nahrung nicht nachgewiesen werden können.

In zahlreichen Untersuchungen wurden interindividuelle Unterschiede der 1-Hydroxypyrenausscheidung um das 5- bis 20-fache gefunden (ANGERER et al. 1992, 1997a, b, GÜNDEL et al. 1994, VAN ROOIJ et al. 1994, GÖEN et al. 1995, NIELSEN et al. 1996, OMLAND et al. 1994, GILBERT und VIAU 1997), auch bei Kindern (SIWINSKA et al. 1999). Bei den von uns untersuchten Kindern lagen die Unterschiede der PAK-Metabolitenkonzentrationen im Urin zwischen der 25 und 75. Perzentile um den Faktor 2 und zwischen der 5. und 95. Perzentile um den Faktor 10. Damit lag die Variabilität der hier vorgestellten Humanbiomonitoringbefunde in dem aus den anderen Studien erwarteten Bereich. Es kann davon ausgegangen werden, dass die Unterschiede in der nahrungsbedingten BaP-Aufnahme die Hauptursache für die im Humanbiomonitoring feststellbare interindividuellen Variabilität darstellen.

Bei hoher oraler und inhalativer BaP-Zufuhr konnten darüber hinaus Hinweise auf eine interindividuell unterschiedliche Metabolisierung der aufgenommenen PAK gefunden werden. So wurden bei zehn Versuchspersonen, die alle Grillfleisch mit 6 µg BaP erhielten, im Mittel $6,5 \pm 1,5$ pmol 1-Hydroxypyren-Glucuronid/ml Urin gefunden, der Bereich lag zwischen 2 und 16,6 pmol/ml (KANG et al. 1995). Auch bei hoher inhalativer PAK-Zufuhr durch Zigarettenrauchen konnten, über signifikante Korrelationen zwischen dem Zigarettenkonsum und der Konzentration von 1-Hydroxypyren im Urin hinaus, Hinweise auf einen Einfluss genetischer Polymorphismen (GSTM1 und GSTT1) gefunden werden; allerdings war es angesichts der relativ kleinen Untersuchungsgruppe nicht möglich, diesen Einfluss der genetischen Polymorphismen klar zu definieren (HONG et al. 1999). Ob und gegebenenfalls welche Bedeutung die genetischen Polymorphismen auf die PAK-Metabolitenausscheidung unter niedrigeren allgemeinen Umweltbedingungen haben, ist derzeit angesichts fehlender Studien nicht sicher abschätzbar.

Vor dem Hintergrund der bundesweit erhobenen Daten zur BaP-Belastung in Wohnungen mit PAK-haltigem Parkettkleber sowie der Humanbiomonitoring-Ergebnisse kam die ad-hoc-Arbeitsgruppe aus Mitgliedern der Innenraumlufthygienekommission (IRK) des Umweltbundesamtes und der Länderarbeitsgruppe "Umweltbezogener Gesundheitsschutz" der Arbeitsgruppe der obersten Landesgesundheitsbehörden (AOLG) zu dem Schluss, dass für den Fall einer PAK-Belastung durch teerhaltige Parkettklebstoffe keine Gefahrenschwelle festgelegt werden kann, von der über Vorsorgemaßnahmen hinaus baurechtliche Maßnahmen zwingend geboten sind. Sie hält jedoch das Auftreten bestimmter BaP-Konzentrationen (> 100 mg BaP/kg im Hausstaub von Aufenthaltsräumen und > 10 mg BaP/kg im Hausstaub von Wohnräumen) aus hygienischen Gründen für unerwünscht und *empfiehlt* hier expositions mindernde Maßnahmen. In besonderen Einzelfällen empfiehlt sie das Angebot einer

speziellen umweltmedizinischen Sprechstunde, das ein Humanbiomonitoring mit einschließen sollte. Diese Stellungnahme wurde in die PAK-Hinweise der Arbeitsgemeinschaft der Bauministerien der Länder (ARGEBAU) übernommen (DIBt 2000).

5 Literatur

- ANGERER J, MANNSCHRECK C, GÜNDEL J. Occupational exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in a graphite-electrode producing plant: biological monitoring of 1-hydroxypyrene and monohydroxylated metabolites of phenanthrene. *Int Arch Occup Environ Health* 1997a; 69: 323-331.
- ANGERER J, MANNSCHRECK C, GÜNDEL J. Biological monitoring and biochemical effect monitoring of exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons. *Int Arch Occup Environ Health* 1997b; 70: 365-377.
- ANGERER J. Das Biological Monitoring bei der Beurteilung der Belastung/Beanspruchung durch PAH-Aufnahme in Wohnungen mit teerhaltigem Parkettkleber. *Umweltmed Forsch Prax* 1999; 4: 65-72.
- ARGEBAU, Arbeitsgemeinschaft der Bauministerien der Länder. Empfehlungen Deutsches Institut für Bautechnik (DIBt), im Druck.
- AGLMB, Arbeitsgemeinschaft der leitenden Medizinalbeamten der Länder. Standards zur Expositionsabschätzung. Bericht des Ausschusses für Umwelthygiene. Behörde für Arbeit, Gesundheit und Soziales, editor. Hamburg, 1995.
- BUCKLEY TJ, WALDMAN JM, DHARA R, GREENBERG A, OUYANG Z, LIOY PJ. An assessment of an urinary biomarker for total human environmental exposure to benzo(a)pyrene. *Int Arch Occup Environ Health* 1995; 67: 257-266.
- CHUANG JC, CALLAHAN PJ, LYU CW, WILSON NK. Polycyclic aromatic hydrocarbon exposures of children in low-income families. *J Expo Anal Environ Epidemiol* 1999; 9: 85-98.
- DENNIS MJ, MASSEY RC, MCWEENEY DJ, KNOWLES ME. Analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in UK total diets. *Fd Chem Toxicol* 1983; 21: 569-574.
- DIBt, Deutsches Institut für Bautechnik. Hinweise für die Bewertung und Maßnahmen zur Verminderung der PAK-Belastung durch Parkettböden mit Teerlebstoffen in Gebäuden (PAK-Hinweise) – Fassung April 2000. DIBt-Mitteilungen 2000; (4), im Druck.
- DEVOS RH, VAN DOKKUM, W, SCHOUTEN A, DEJONG-BERKHOUT P. Polycyclic aromatic hydrocarbons in dutch total diet samples (1984-1986). *Chem Toxicol* 1990; 28: 263-268.
- DIECKOW P, ULLRICH D, SEIFERT B. Vorkommen von polycyclischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) in Wohnungen mit Parkettfußböden. Umweltbundesamt. Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene, WaBoLu Heft 2/99; Berlin 1999.
- EWERS U, SUCHENWIRTH R: Modellabschätzungen vs. Humanbiomonitoring. *UWSF – Z Umweltchem Ökotox* 1996; 8: 213-220.
- GILBERT NL, VIAU C. Biological monitoring of environmental exposure to PAHs in the vicinity of a Soderberg aluminium reduction plant. *Occup Environ Med* 1997; 54: 619-621.
- GÖEN TH, GÜNDEL J, SCHALLER K-H, ANGERER J. The elimination of 1-hydroxypyrene in the urine of the general population and workers with different occupational exposures to PAH. *Sci Total Environ* 1995; 163: 195-201.
- GÜNDEL J, GÖEN TH, MANNSCHRECK C, ANGERER J. Biological monitoring of environmental exposures to polycyclic aromatic hydrocarbons. *Zbl Hyg* 1994; 3: 246.
- 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.

- HACK A, SELENKA F. Mobilization of PAH and PCB from contaminated soil using a digestive tract model. *Toxicol Letters* 1996; 88: 199-210.
- HEUDORF U, ANGERER J. Humanbiomonitoring auf PAK-Metabolite von Kindern aus Wohnungen mit PAK-haltigem Kleber. *Umweltmed Forsch Prax* 1998; 3: 266-274.
- HEUDORF U, ANGERER J. Humanbiomonitoring auf PAK-Metabolite von Kindern aus Wohnungen mit PAK-haltigem Kleber. Ergänzende Mitteilung. *Umweltmed Forsch Prax* 1999; 4: 97-100.
- HEUDORF U. PAK, PCB und Pestizide im Hausstaub. Welche Gesundheitsgefahren drohen den Bewohnern, besonders den auf dem Boden spielenden Kindern? *Pädiatr Prax* 1999; 56: 755-768.
- HONG YC, LEEM JH, PARK HS, LEE KH, LEE SJ, LEE CK, KANG D. Variations in urinary 1-hydroxypyrene glucuronide in relation to smoking and the modification effects of GSTM1 and GSTT1. *Toxicol Lett* 1999; 108: 217-23.
- JONGENELEN FJ. Methods for routine biological monitoring of carcinogenic PAH-mixtures. *Sci Total Environ* 1998; 199: 141-149.
- JONGENELEN FJ, ANZION RBM, SCHEEPERS PTJ, BOS RP, HENDERSON PT, NIJENHUIS EH, VEENSTRA SJ, BROUNS RME, 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.
- JONGENELEN FJ, ANZION RBM. 1-Hydroxypyrene. In: ANGERER J, SCHALLER KH, editors. *Analysis of hazardous substances in biological materials*, Vol. 3. Weinheim: VCH; 1991.
- Kang DH, Rothmann N, Poirier MC, Greenberg A, Hsu CH, Schwartz BS, Baser ME, Groopman, Weston A, Strickland PT. Interindividual differences in the concentration of 1-hydroxypyrene-glucuronide in urine and polycyclic aromatic hydrocarbon-DNA adducts in peripheral white blood cells after charbroiled beef consumption. *Carcinogenesis* 1995; 16: 1079-1085.
- LGA, Landesgesundheitsamt Baden-Württemberg und FMPA, Forschungs- und Materialprüfungsanstalt Baden-Württemberg. Untersuchungen zur PAK-Belastung in Wohnungen mit teerhaltigen Parkettklebern. Sozialministerium Baden-Württemberg und Stadt Heilbronn, editors; 1999.
- LEDERER P, ANGERER J. Untersuchung der PAK-Belastung bei Kindern in Wohnungen mit steinkohleteerhaltigem Kleber in Parkettböden. *Arbeitsmedizin, Sozialmedizin, Umweltmedizin* 1998; 33: 452-455.
- LEVIN JO. First international workshop on hydroxypyrene as a biomarker for PAH-exposure in man – summary and conclusions. *Sci Total Environ* 1995; 163: 165-168.
- LINTELMANN J, HELLEMANN C, KETRUP 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.
- LINTELMANN J, ANGERER J. PAH metabolites (1-hydroxyphenanthrene, 4-hydroxyphenanthrene, 9-hydroxyphenanthrene, 1-hydroxypyrene). In: ANGERER J, SCHALLER KH, editors. *Analyses of hazardous substances in biological materials*. Weinheim: VCH; 1998.
- LIOY PL, WALDMAN JM, GREENBERG A, HARKOV R, PIETARINEN C. The total Human Environmental Exposure Study (THESS) to Benzo(a)pyrene: Comparison of the Inhalation and Food Pathway. *Arch Environm Health* 1988; 43: 306-312.
- LODOVICI M, DOLARA P, CASALINI C, CIAPPELLANO S, TESTOLIN G. Polycyclic aromatic hydrocarbon contamination in the Italian diet. *Food Additives & Contaminants* 1995; 12: 703-713.
- MANNESCHRECK CH. Entwicklung und Validierung von Analyseverfahren zur Bestimmung von Metaboliten der polycyclischen aromatischen Kohlenwasserstoffe in menschlichen Körperflüssigkeiten. Dissertation, Universität Erlangen-Nürnberg, 1997.
- MENZIE CA, POTOCKI BB, SANTODONATO J. Exposure to carcinogenic PAHs in the environment. *Environm Sci Technol* 1992; 26: 1278-1284.
- NIELSEN PS, ANDREASSEN A, FARMER PB, OVREBO S, AUTRUP H. Biomonitoring of diesel exhaust-exposed workers. DNA and hemoglobin adducts and urinary 1-hydroxypyrene as markers of exposure. *Toxicol Lett* 1996; 86: 27-37.
- OMLAND O, SHERSON D, HANSEN AM, SIGSGAARD T, AUTRUP H, OVERGAARD E. Exposure of iron foundry workers to polycyclic aromatic hydrocarbons: benzo(a)pyrene-albumin adducts and 1-hydroxypyrene as biomarkers for exposure. *Occup Environ Med* 1994; 51: 513-518.
- VAN ROOIJ JGM, VEEGER MMS, BODELIER-BADE MM, SCHEEPERS PTJ, JONGENELEN FJ. 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.
- SANTODONATO J, HOWARD P, BASU D. Health and ecological assessment of polynuclear aromatic hydrocarbons. *J Environ Path Toxicol* 1981; 5: 1-176.
- SIWINSKA E, MIELZYNSKA D, SMOLIK E, BUBAK A, KWAPULINSKI J. Evaluation of intra- and interindividual variation of urinary 1-hydroxypyrene, a biomarker of exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons. *Sci Total Environ* 1998; 217: 175-183.
- 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.
- UBA, Umweltbundesamt. Belastung mit polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) in Wohnungen mit Parkettböden. Presse-Information vom 27. März 1998, Berlin, 1998a.
- UBA, Umweltbundesamt. Empfehlungen zu polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) in Wohnungen mit Parkettböden. Presse-Information vom 29. April 1998, Berlin, 1998b.
- VAESSEN HAM, JEKEL AA, WILBERS AAMM. Dietary intake of polycyclic aromatic hydrocarbons. *Toxicol Environm Chem* 1988; 16: 281-294.
- VAN WIJNEN JH, SLOB R, JOGMANS-LIEDERKERKEN G, VAN DE WERDT RHJ, WOUDEBERG F. Exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons among Dutch children. *Environ Health Perspect* 1996; 104: 530-534.

Eingegangen am: 02.05.2000

Akzeptiert am: 03.07.2000

Online-Publikation am: 24.07.2000