

Gesundheitliche Bewertung dioxinähnlicher polychlorierter Biphenyle in der Innenraumluft

Mitteilungen der Ad-hoc-Arbeitsgruppe der Innenraumraumlufthygiene-Kommission des Umweltbundesamtes und der Obersten Landesgesundheitsbehörden

Teil 1

Ableitung eines Prüfwertes für die zulässige PCB-TEQ-Konzentration in der Innenraumluft

Die bisherige gesundheitliche Bewertung der polychlorierten Biphenyle (PCB) stützt sich auf die Bewertung technischer Gemische (sog. Arochlor- bzw. Clophen-Muster) [1, 2, 3, 4, 5]. Die hauptsächlich als Transformatorenöl, als Kondensatorendielektrikum sowie als Additiv zu Flamm-schutzanstrichen und Fugenmassen eingesetzten PCB-Gemische unterscheiden sich in ihrer Zusammensetzung jedoch erheblich von dem Muster derjenigen PCB-Kongenere, welche vom Menschen mit der Nahrung und über den Luftpfad aufgenommen werden. In der Nahrungskette reichern sich hauptsächlich die schwerflüchtigen höher chlorierten PCB an, während in der Raumluft in der überwiegenden Zahl der aufgetretenen Fälle die leichter flüchtigen niedrig chlorierten PCB dominieren.

Auch das in Deutschland bislang übliche Vorgehen bei der Beurteilung von PCB-Raumluftbelastungen beruht auf einem TDI (tolerable daily intake – duldbare tägliche Zufuhr), der sich aus tier-

experimentellen Untersuchungen nach oraler Aufnahme technischer PCB-Gemische ableitete [1]. In der Folgezeit wurde dieses Ableitungsverfahren kritischer gesehen. Das Gemeinsame Expertenkomitee zu Lebensmittelsusätzen (Joint Expert Committee on Food Additives – JECFA) der Lebensmittel- und Landwirtschaftsorganisation der Vereinten Nationen und der Weltgesundheitsorganisation (World Health Organization – WHO) stellte 1990 fest, dass für PCB keine vorläufige duldbare Aufnahme festgelegt werden kann, da sich die tierexperimentell verfütterten technischen PCB-Gemische in ihrer Zusammensetzung erheblich von den in der menschlichen Nahrung enthaltenen unterscheiden und keine Daten zur Körperlast und zur Kinetik der verfütterten PCB-Einzerverbindungen (sog. Kongenere) vorliegen [6]. Auch nach Ansicht einer Arbeitsgruppe der WHO sind die aus technischen PCB-Gemischen gewonnenen toxikologischen Erkenntnisse als Grundlage für eine gesundheitliche Bewertung der Expositionssituation des Menschen gegenüber umweltrelevanten PCB infrage zu stellen [7]. Sie empfahl daher, der Risikobewertung zukünftig solche Studien zugrunde zu legen, bei denen umweltrelevante PCB

in rekonstituierten Gemischen eingesetzt wurden.

Ein weiterer Grund für die Überarbeitung der bisherigen Bewertungsgrundlagen ist die Erkenntnis, dass ein Teil der PCB-Kongenere eine dioxinähnliche Molekülstruktur aufweist und ihnen demzufolge eine dioxinähnliche Wirkung unterstellt werden kann. Das Vorkommen dioxinähnlicher PCB-Kongenere hängt dabei im Wesentlichen vom Chlorierungsgrad des technischen Gemisches und vom Herstellungsverfahren ab (■ **Tabelle 1**). Vor diesem Hintergrund stellt sich die Frage, welche gesundheitlichen Wirkungen mit den in der Innenraumluft vorwiegend auftretenden nicht-dioxinähnlichen PCB verknüpft und wie diese in Relation zu den nachteiligen Effekten der sie begleitenden dioxin-ähnlichen PCB zu bewerten sind.

Im November 2001 stellte die WHO ein Verfahren zur Entwicklung eines Bewertungsmaßstabes für nicht-dioxinähnliche PCB vor; dabei wurde jedoch eine Reihe von Kenntnislücken identifiziert [7]. Im April 2002 forderte der Ausschuss für Umwelt, Volksgesundheit und Verbraucherschutz des europäischen Parlaments die Kommission auf, Grenzwerte für nicht-dioxinähnliche PCB in Lebensmit-

Tabelle 1

Konzentration von dioxinähnlichen PCB in deutschen und US-amerikanischen technischen Gemischen in Abhängigkeit vom Chlorierungsgrad und vom Herstellungsverfahren. Arochlor 1254 wurde zu Beginn der 1930er-Jahre bis 1973 mithilfe einer sog. Einstufenchlorierung (G 4), von 1974–76 mit der sog. 2-Stufenchlorierung (A 4) hergestellt, die zu einem deutlich höheren PCB-TEQ-Anteil führt. Obwohl die Produktionsmenge des A-4-Subtyps weniger als 1 % der Gesamtproduktionsmenge darstellte, wurden vor allem die Langzeitstudien und andere relevante toxikologische Studien mit dem TEQ-reicheren Arochlor-1254-A-4-Subtyp durchgeführt (Daten aus EFSA (2005) [8]).

Clophen-Typ (Deutschland)	Clophen A 30	Clophen A 40	Clophen A 50	Clophen A 60
Gehalt (µg PCB-TEQ/g Clophen)	2,6	6,9	114	472
Arochlor-Typ (USA)	Arochlor 1242	Arochlor 1248	Arochlor 1254	Arochlor 1260
Gehalt (µg PCB-TEQ/g Arochlor)	1,7–5,2	5,2–16	17–37 (G 4) 38–392 (A 4)	2–15

Tabelle 2

Konzentration von dioxinähnlichen PCB in technischen Gemischen und Bezug zum TDI-Wert von 2 µg TEQ/kg Körpergewicht und Tag (EU-SCF 2001 [10]). Aus dem PCB-TEQ-Gehalt der Clophen-Typen (Daten aus EFSA (2005) [8]) lässt sich der TDI-Wert für das jeweilige Clophen-Gemisch abschätzen. Der TDI-Wert in der unteren Zeile sinkt mit zunehmendem Gehalt an dioxinähnlichen Kongeneren des jeweiligen Clophen-Gemisches.

Clophen-Typ (Deutschland)	Clophen A 30 Niedrig chloriert	Clophen A 40 Niedrig chloriert	Clophen A 50 Höher chloriert	Clophen A 60 Höher chloriert
Gehalt an dioxinähnlichen PCB (µg PCB-TEQ/g Clophen)	2,6	6,9	114	472
TDI, bezogen auf PCB-TEQ (µg Clophen/kg KG/d)	0,8	0,3	0,02	0,004

teln festzulegen. Die Europäische Kommission griff diese Forderung auf und beauftragte die Europäische Behörde für Lebensmittelsicherheit (European Food Safety Authority – EFSA) mit der Erstellung eines Berichtes zur gesundheitlichen Bewertung der nicht-dioxinähnlichen PCB. Dieser Bericht wurde 2005 vorgelegt [8].

Das Wissenschaftliche Gremium für Verunreinigungen in der Lebensmittelkette (CONTAM) der EFSA kam zu folgenden wesentlichen Feststellungen:

- Nicht nur die unterschiedlichen Zusammensetzungen der technischen PCB-Gemische, sondern auch deren Verunreinigungen mit dioxinähnlichen PCB und Dioxinen führen wirkseitig zu unterschiedlichen Ergebnissen. Die beobachteten toxischen Wirkungen (besonders auf die Leber, das Immunsystem und endokrine System sowie reproduktions- und neurotoxische Effekte und die Kanzerogenität) sind nicht spezifisch auf nicht-dioxinähnliche PCB beschränkt, sondern treten auch bei

Expositionen gegenüber dioxinähnlichen PCB und Dioxinen auf. Die toxikologische Datenbasis zu technischen PCB-Gemischen sowie zu rekonstituierten umweltrelevanten PCB-Gemischen ist für eine Bewertung der nicht-dioxinähnlichen PCB als ungenügend zu bewerten und lässt es auch nicht zu, zwischen den einzelnen Wirkungen der dioxinähnlichen und nicht-dioxinähnlichen PCB sowie der Dioxine zu unterscheiden.

- Die nicht-dioxinähnlichen PCB sind weder gentoxisch noch krebserzeugend. Die tierexperimentell nach Fütterung mit technischen PCB-Gemischen beobachteten Leber- und Schilddrüsentumore werden eher den dioxinähnlichen PCB zugeschrieben. Die IARC (International Agency for Research on Cancer) hat PCB in die Gruppe 2A (möglicherweise kanzerogen beim Menschen) eingestuft.
- Andere Wirkungen, wie z. B. neurologische Störungen, Entwicklungsstörungen und Immundefekte, die mit nicht-dioxinähnlichen PCB in Ver-

bindung gebracht werden, werden auch von den (teilweise weitaus potenteren) dioxinähnlichen PCB verursacht, die häufig neben den nicht-dioxinähnlichen PCB in kleinsten Konzentrationen (0,1 % oder weniger) vorkommen. Deshalb ist es schwierig, den genauen Beitrag der nicht-dioxinähnlichen PCB zur beobachteten Wirkung eines PCB-Gemisches zu ermitteln. Daten über die Wirkung einer Belastung mit nicht-dioxinähnlichen PCB sollten mit Vorsicht interpretiert werden.

- Auch wenn einige der sog. Indikator-kongeneren inzwischen toxikologisch besser untersucht sind, ist jedoch insgesamt die Datenlage für die überwiegende Zahl der 197 nicht-dioxinähnlichen PCB nach wie vor zu begrenzt und die Dateninterpretation bei gleichzeitiger Exposition gegenüber nicht-dioxinähnlichen und dioxinähnlichen PCB zu ungenügend, um eine gesundheitlich tolerable Dosis für nicht-dioxinähnliche PCB festzulegen.

Vor diesem Hintergrund gelangt die Ad-hoc-Arbeitsgruppe Innenraumrichtwerte zu folgenden Schlussfolgerungen:

a) Die Ad-hoc-Arbeitsgruppe kann bislang keine Einzelstudie zu niedrig chlorierten nicht-dioxinähnlichen PCB-Kongeneren sowie rekonstituierten PCB-Mischungen identifizieren, die nach ihrer Einschätzung als Basis für die Ableitung von Innenraumluftrichtwerten geeignet ist.

b) Die Ad-hoc-Arbeitsgruppe stellt fest, dass neuere Studien (überwiegend zur oralen Exposition) die älteren Befunde hinsichtlich toxischer und biochemischer Wirkungen der PCB im Grundsatz bestätigen. Angesichts des sehr stark variierenden Gehalts an dioxinähnlichen Verbindungen in den technischen Gemischen hält sie es jedoch nicht mehr für ausreichend, alle PCB-Gemische über eine einzige toxikologische Kennzahl zu bewerten. Vielmehr empfiehlt sie, die gesundheitliche Bewertung der niedrig chlorierten PCB-Gemische (Typ Clophen A 30 bis A 40) von der der höher chlorierten PCB-Gemische (Typ Clophen A 50 bis A 60) zu unterscheiden. Eine überschlägige Abschätzung (■ **Tabelle 2**) ergibt, dass für die niedrig chlorierten PCB-Gemische der bisher verwendete TDI-Wert von 1 µg PCB pro kg Körpergewicht und Tag auch nach einem anderen aktuellen Ableitungsverfahren (Vergleich mit dem derzeit gültigen TDI für TEQ) mit Werten von 0,3–0,8 µg PCB pro kg Körpergewicht und Tag größenordnungsmäßig übereinstimmt. Damit werden für die niedrig chlorierten PCB-Gemische die in der bisherigen PCB-Richtlinie zugrunde gelegten Gesundheitsrisiken im Grundsatz bestätigt. Vor diesem Hintergrund empfiehlt die Ad-hoc-Arbeitsgruppe, für die niedrig chlorierten PCB-Gemische die auf der Grundlage der PCB-Richtlinie der ARGEBAU [9] in den jeweiligen Bundesländern eingeführten technischen Baubestimmungen unter Beachtung der in Teil 3 genannten Empfehlungen aufrechtzuerhalten.

c) Für die höher chlorierten PCB-Gemische hält die Ad-hoc-Arbeitsgruppe ein ergänzendes eigenes Bewertungsverfahren für erforderlich. In Übereinstimmung mit der EFSA geht sie davon aus, dass die dioxinähnlichen PCB wesentlich die Toxizi-

Bundesgesundheitsbl - Gesundheitsforsch - Gesundheitsschutz 2007 · 50:
DOI 10.1007/s00103-007-0377-5
© Springer Medizin Verlag 2007

Gesundheitliche Bewertung dioxinähnlicher polychlorierter Biphenyle in der Innenraumluft

Zusammenfassung

Zum Schutz der Gesundheit der Bevölkerung setzt die Ad-hoc-Arbeitsgruppe der Innenraumlufthygiene-Kommission des Umweltbundesamtes und der Obersten Landesgesundheitsbehörden Richtwerte für die Innenraumluft fest. Zur gesundheitlichen Bewertung polychlorierter Biphenyle (PCB) in der Raumluft folgt die Ad-hoc-Arbeitsgruppe der international eingeführten Vorgehensweise über Toxizitätsäquivalenzfaktoren und leitet einen Prüfwert von 5 pg PCB-TEQ pro Kubikmeter Innenraumluft ab. Da die Messung von PCB-TEQ relativ aufwendig ist, wird ein Verfahren vorgestellt, mit dem die Summe der PCB-TEQ auf der Basis von PCB-Raumluftkonzentrationen, die mit Standardmethoden ermittelt wurden, abgeschätzt werden kann. Eine erste Abschätzung des TEQ-Wertes mithilfe des PCB-Summenwertes ist möglich, wenn dabei der Chlorierungsgrad des PCB-Gemisches berücksichtigt wird. So kann gezeigt werden, dass

bei niedrig chlorierten PCB-Quellen (z. B. in Fugendichtungsmassen) die TEQ-Werte deutlich unter 5 pg/m³ liegen, wenn der Gesamt-PCB-Richtwert von 3 µg/m³ eingehalten wird. Bei hoch chlorierten PCB-Quellen (z. B. in Deckenplatten) könnte bereits bei einem Gesamt-PCB-Wert über 1 µg/m³ ein TEQ-Wert von 5 pg/m³ überschritten sein. Angesichts der begrenzten Datenlage sind diese Abschätzungen mit erheblichen Unsicherheiten verbunden. Eine einfachere und gleichzeitig genauere Abschätzung des TEQ-Wertes gelingt unter Einbeziehung des dioxinähnlichen Leitkongeners PCB 118. Bei einer Unterschreitung von 0,01 µg PCB 118/m³ wird unabhängig von dem PCB-Quellentyp ein TEQ-Wert von 5 pg TEQ/m³ in der Raumluft eingehalten.

Schlüsselwörter

Innenraumluft · Dioxinähnliche PCB · PCB 118 · Richtwert · Fugenmasse · Deckenplatte

Health evaluation of dioxin-like polychlorinated biphenyls in indoor air

Abstract

The German Joint Working Group on Indoor Guidelines of the Federal Environment Agency and the States' Departments of Health has issued indoor air guideline values to protect public health. For health evaluation of polychlorinated biphenyls in indoor air, the group follows the international approach using toxicity equivalence factors and derives an indoor air guideline value of 5 pg PCB-TEQ per cubic meter. To avoid expensive measurements it is recommended to measure PCB 118 in addition to the usual PCB standard measurement. The content of dioxin-like compounds is strongly influenced by the type of technical PCB mixtures used. Therefore, it is recommended to evaluate the lower chlorinated PCBs separately from the higher chlorinated PCBs. Regarding sealants as the main source of low chlorinated PCBs, a PCB total (PCB 28, 52, 101,

138, 153, 180) concentration below 3 µg per cubic meter indoor air indicates PCB-TEQ concentrations of less than 5 pg per cubic meter. For higher chlorinated PCBs which usually stem from wall or suspended ceiling boards, however, PCB total concentrations above 1 µg per cubic meter PCB-TEQ concentrations may exceed 5 pg per cubic meter. A simpler and at the same time more reliable estimation of the PCB-TEQ concentration refers to the dioxin-like congener PCB 118. A PCB 118 concentration below 0.01 µg PCB 118 per cubic meter indoor air indicates PCB-TEQ concentrations well below 5 pg per cubic meter regardless of the PCB source.

Keywords

indoor air · dioxin-like PCB · PCB 118 · guideline value · sealant · ceiling board

tät der höher chlorierten PCB-Gemische bestimmen, und schlägt die nachfolgend dargestellte Vorgehensweise für die gesundheitliche Bewertung entsprechender PCB-Belastungen im Innenraum vor.

Vorgehensweise zur gesundheitlichen Bewertung von dioxinähnlichen polychlorierten Biphenylen in der Innenraumluft

Zur gesundheitlichen Bewertung dioxinähnlicher polychlorierter Biphenyle in der Innenraumluft stützt sich die Ad-hoc-Arbeitsgruppe auf die Vorgehensweise im europäischen Lebensmittelbereich. Bei dieser Vorgehensweise handelt es sich um das Konzept der Toxizitätsäquivalenzfaktoren (TEQ-Konzept), das die Beurteilung der dioxinähnlichen Wirkungen sowohl der polychlorierten Dibenzodioxine (PCDD) und Dibenzofurane (PCDF) als auch der dioxinähnlichen PCB umfasst.

Zur Konkretisierung der Gesundheitsgefahr im baurechtlichen Sinne geht die Ad-hoc-Arbeitsgruppe Innenraumrichtwerte bei der Ableitung von gesundheitsbezogenen Beurteilungsmaßstäben für die Innenraumluft von der Schwelle einer beginnenden nachteiligen Wirkung (lowest observed adverse effect level – LOAEL) aus. Geeignete Studien zur Erfassung der gesundheitlichen Wirkung dioxinähnlicher PCB nach inhalativer Exposition wurden nicht gefunden. Die Ad-hoc-Arbeitsgruppe zieht deshalb Studien, in denen gesundheitliche Effekte nach oraler Exposition untersucht wurden, heran. Im Rahmen einer Pfad-zu-Pfad-Übertragung werden die in diesen Studien ermittelten Wirkungen auf die inhalative Expositionssituation übertragen. Im Folgenden werden 3 Schritte dargestellt:

- die Auswahl des als Basis verwendeten LOAEL nach oraler Exposition,
- die Schätzung des Grades der Ausschöpfung des LOAEL durch die aktuelle Belastung über Lebensmittel und
- die Ableitung von gesundheitsbezogenen Beurteilungsmaßstäben für dioxinähnliche PCB in der Luft von Innenräumen.

Auswahl des kritischen Endpunktes und des LOAEL

Angaben zum kritischen Endpunkt und zum LOAEL von 2,3,7,8-TCDD (Tetrachlordibenzodioxin) als Leitkomponente für Dioxine und dioxinähnliche PCB finden sich in den Berichten des Wissenschaftlichen Lebensmittelausschusses (Scientific Committee on Food – SCF) der Europäischen Kommission [10] und des Gemeinsamen Expertenausschusses zu Lebensmittelzusätzen [11]. Der JECFA-Bericht enthält eine ausführliche Bewertung der relevanten Endpunkte Reproduktionstoxizität, Neurotoxizität und Kanzerogenität sowie eine Darstellung der toxikologischen Kenngrößen und der verwendeten Unsicherheitsfaktoren. Als wesentliche Endpunkte bewertet das JECFA Störungen der ZNS-Entwicklung und der Reproduktion sowie die krebserzeugende Wirkung von TCDD.

Störungen der ZNS-Entwicklung

JECFA bewertet die epidemiologischen Studien an Kindern in Deutschland, in den Niederlanden und den USA wie folgt [12]: Es wurden Beeinträchtigungen der ZNS-Entwicklung, beim Schilddrüsenhormonspiegel, der Immunkompetenz u. a. beobachtet. Die beobachteten Entwicklungsdefizite waren subtil und lagen innerhalb des Normbereiches. Im Alter von 6 Jahren waren keine Entwicklungsdefizite mehr nachweisbar. Ihre möglichen Konsequenzen für die zukünftige intellektuelle Funktion sind unbekannt. JECFA weist darauf hin, dass beim Vergleich zwischen gestillten und flaschengefütterten Kindern die gestillten Kinder trotz höherer Belastung mit PCB in neuropsychologischen Verhaltenstests besser abschnitten. Ferner wird angemerkt, dass in den Studien überwiegend die PCB-Belastung gemessen wurde, während PCDD/PCDF kaum untersucht wurden. Ab welcher Körperlast an PCB, PCDD und PCDF Störungen der ZNS-Entwicklung als gesundheitlich nachteilig anzusehen sind, ist nicht bekannt.

Kanzerogenität

Zur Bewertung der krebserzeugenden Wirkung von PCDD, PCDF und PCB geht JECFA [11] von 2,3,7,8-TCDD aus.

In Rattenstudien fand sich eine erhöhte Inzidenz für Lebertumore im Vergleich zu einer Kontrollgruppe bei einer Dosis von 10 ng/kg KG/d bzw. einer Gleichgewichtskörperlast (steady-state-body burden) von 290 ng/kg KG. Dies entspricht beim Menschen einer Zufuhr von 150 pg/kg KG/d, also dem 100-fachen der derzeitigen durchschnittlichen PCDD/PCDF-TEQ-Zufuhr. Beim Menschen fanden sich unter Arbeitsplatzbedingungen bei der Produktion bestimmter TCDD-haltiger chlorierter Herbizide insgesamt mehr Tumoren, aber nicht für einzelne Organe. Laut JECFA müssen diese Befunde mit Vorsicht bewertet werden, da es für dieses Phänomen kaum andere Beispiele gibt, wesentliche Störfaktoren nicht bewertet wurden und das Gesamtrisiko nicht hoch war. Eine Dosis, die zu einer bestimmten Zunahme der Krebssterblichkeit führt [angegeben z. B. als Effektive Dosis (ED)], konnte nicht bestimmt werden, da sich eine große Streubreite ergab und das jeweilige Ergebnis vom gewählten Modell abhing.

Reproduktionstoxizität

Identifiziert wurden 5 tierexperimentelle Leitstudien, relevante Endpunkte waren zumeist verringerte Spermienzahl und Spermienfunktionsstörungen sowie vermindertes Prostatagewicht und ein reduzierter Anogenitalabstand bei den männlichen Nachkommen 2,3,7,8-TCDD-exponierter Ratten. In diesem Zusammenhang verweist JECFA auf Erfahrungen aus Seveso, wo mehr Mädchen von Vätern mit einer Körperlast von mehr als 80 pg TCDD/g Fett (16–20 ng/kg KG) zum Zeitpunkt der Zeugung geboren wurden.

Vier von den 5 Studien waren Bolusstudien mit einer Exposition gegenüber 2,3,7,8-TCDD an den Gestationstagen 14 oder 15, die zu einem LOEL von 28, 28, 50 bzw. 51 ng/kg KG führten. Die fünfte Studie (Faqi et al. 1998) [13] wies ein Dosisregime mit Auflade- und Erhaltungsdosis durch subkutane Injektion von der Zeugung bis zum Ende der Stillperiode auf. Diese Studie, bei der sich bei den männlichen Nachkommen in der Pubertät und im Erwachsenenalter eine verminderte Spermienbildung, eine erhöhte Zahl missgebildeter Spermien, eine verlängerte Passagezeit der Spermien durch die Cau-

da epididymidis und ein verschlechtertes Kohabitationsverhalten (jedoch ohne dass die Fertilität der Ratten eingeschränkt war) zeigten, führte zu einem LOAEL (body burden) von 25 ng TCDD/kg Körpergewicht. In einer der Bolusstudien nahm die Androgenrezeptor-mRNA-Konzentration bei 13 ng/kg KG ab. Da bei dieser Dosis keine adversen Effekte an der Ratte beobachtet wurden, stuft JECFA diese Dosis als NOAEL ein. Unter Verwendung eines linearen und eines Potenzmodells sowie eines Anreicherungs-faktors zur Einbeziehung der für TCDD unterschiedlichen Halbwertszeiten von 3 Wochen bei der Ratte und von 7,6 Jahren beim Menschen für TCDD schätzt JECFA für den LOAEL der Faqi-Studie eine äquivalente menschliche monatliche Aufnahme von 423–630 pg TCDD/kg KG ab. Dies entspricht einer täglichen Aufnahme beim Menschen von 14–21, im Mittel von 18 pg TCDD/kg Körpergewicht.

Zur Abschätzung der Dosis für empfindliche Personen verwendet das JECFA folgende Unsicherheitsfaktoren zur Toxikodynamik und zur Toxikokinetik: Hinsichtlich mehrerer biochemischer Endpunkte (z. B. Rezeptorbindung) kann laut JECFA eine geringere Empfindlichkeit des Menschen im Vergleich zum Tier angenommen werden. Allenfalls sind die empfindlichsten Menschen so empfindlich wie der Durchschnitt der untersuchten Tiere. Daher besteht nach Ansicht des JECFA keine Notwendigkeit, einen Unsicherheitsfaktor zur Toxikodynamik einzufügen. Ein Anpassungsfaktor zur Toxikokinetik Tier-Mensch wird nicht benötigt, da – wie bereits dargestellt – nicht von der Dosis, sondern von der Körperlast ausgegangen wird. Für die interindividuelle Variabilität der Toxikokinetik beim Menschen setzt das JECFA den Default-Faktor der WHO [14] von 3,2 ein, da die Bandbreite der Halbwertszeit beim Menschen nicht sicher bekannt ist. Mit dem Unsicherheitsfaktor von 3,2 ergibt sich gerundet ein LOAEL für empfindliche Personen von 6 pg TCDD bzw. TEQ/kg Körpergewicht und Tag.

Beitrag der oralen Exposition durch die aktuelle Belastung der Nahrung

Nach dem Basisschema ist vor der Festsetzung von Richtwerten für die Innenraumluft zu prüfen, ob die Inhalation den wesentlichen Aufnahmepfad darstellt oder ob die zulässige Aufnahme des Stoffes noch mit anderen Aufnahmepfaden abgeglichen werden muss. Für die PCB ist unstrittig, dass die Exposition überwiegend durch den Verzehr PCB-verunreinigter Lebensmittel erfolgt. Repräsentative neuere Daten lassen darauf schließen, dass die ernährungsbedingte durchschnittliche tägliche Zufuhr von Dioxinen und dioxinähnlichen PCB in der EU im Bereich von 1,2–3 pg TEQ pro kg Körpergewicht liegt¹ [11, 15]. Für Deutschland ist davon auszugehen, dass die aktuelle ernährungsbedingte Zufuhr von Dioxinen und dioxinähnlichen PCB bei Erwachsenen überwiegend im unteren Teil und die von Kleinkindern eher im oberen Teil des genannten Bereiches liegt [16, 17, 18]. Dies bedeutet, dass ein Teil der Bevölkerung die in der EU geltende duldbare wöchentliche Zufuhr (tolerable weekly intake – TWI) von 14 pg TEQ pro kg Körpergewicht erreicht bzw. überschreitet [17]. Eine TWI-Überschreitung führt nicht zwingend zu adversen Effekten, verringert aber den Abstand zum LOAEL. Nach Auffassung der Europäischen Kommission sind deshalb weitere Maßnahmen zur Vermeidung nachteiliger Auswirkungen von Dioxinen und PCB auf Umwelt und Gesundheit dringend erforderlich [15].

Nach vorliegenden Human-Biomonitoringdaten ist die Körperlast an dioxinähnlichen PCB bzw. PCDD/F im Kleinkindalter maßgeblich durch die Aufnahme in der Stillperiode bestimmt. So wiesen über mehr als 17 Wochen gestillte Säuglinge am Ende des ersten Lebensjahres gegenüber ihren Müttern 1,5- bis 3,6-fach höhere Blutfettgehalte an PCB bzw. PCDD/F auf [19]. Obwohl Kleinkinder über die Nahrung etwa doppelt so viel dioxinähnliche PCB bzw. PCDD/F aufnehmen wie Erwachsene

(vgl. [17]), bauen sich die Blutfettgehalte an PCB bzw. PCDD/F im weiteren Kindesalter wieder ab (mit den niedrigsten Werten im Alter von etwa 5 Jahren [20]) und liegen im Alter von 10 Jahren deutlich unter den Werten Erwachsener [4, 21]. Erklärungsansätze für diese Beobachtungen an Kindern sind eine wachstumsbedingte Vergrößerung des Verteilungsvolumens und eine im Vergleich zum Erwachsenen kürzere Eliminationshalbwertszeit [20]. Zwar gibt es in der Literatur Hinweise auf direkte Effekte der erhöhten Aufnahme an PCB und PCDD/F im Säuglings- und Kleinkindalter, jedoch wurden diese von JECFA als vorübergehend und somit nicht bewertungsrelevant eingestuft. Die Richtwertableitung von JECFA geht vielmehr vom tierexperimentell belegten Wirkungsendpunkt Reproduktionstoxizität bei männlichen Nachkommen in Abhängigkeit von der mütterlichen Körperlast an PCDD/PCDF aus. Die vorliegenden HBM-Daten lassen diesbezüglich den Schluss zu, dass die Körperlast junger Mädchen an dioxinähnlichen PCB und PCDD/F bei Erreichen der Geschlechtsreife diejenige gebärfähiger Frauen nicht übersteigt. Insofern erscheint es gerechtfertigt, bei der weiteren Ableitung gesundheitsbezogener Beurteilungsmaßstäbe für dioxinähnliche PCB von der nahrungsbedingten Aufnahme bei Erwachsenen auszugehen.

Beitrag des Inhalationspfades

Die Ad-hoc-Arbeitsgruppe geht vereinfachend davon aus, dass neben der oralen TEQ-Aufnahme über Lebensmittel und der inhalativen Aufnahme keine weiteren wesentlichen Expositionspfade zu berücksichtigen sind. Wie in Abschnitt Reproduktionstoxizität dargestellt, entspricht der von JECFA für empfindliche Personen abgeleitete LOAEL einer äquivalenten menschlichen Tagesdosis von 6 pg TEQ/kg KG. Da JECFA für die orale Aufnahme eine Resorptionsrate von 50 % annimmt, entspricht der LOAEL einer resorbierten täglichen Dosis von 3 pg TEQ/kg KG und die in Abschnitt 2 genannte Zufuhr über Lebensmittel bis 3 pg TEQ/kg KG einer resorbierten täglichen Dosis bis 1,5 pg TEQ/kg KG. Wenn man vom LOAEL die nahrungsbedingte Aufnahme abzieht,

¹ Die Anwendung der aktualisierten TEF [WHO 2006] im Lebensmittelbereich würde dazu führen, dass die Analysenergebnisse um etwa 10–20 % niedriger ausfallen [WHO 2006].

verbleibt rechnerisch ein noch nicht ausgeschöpfter Anteil von 1,5 pg TEQ/kg KG/d für die inhalative Aufnahme.

Zur Berechnung der gesundheitlich tolerablen TEQ-Konzentration in der Innenraumlufte wird von einer Atemrate von 0,3 m³ pro kg Körpergewicht und Tag ausgegangen. Diese Annahme basiert auf Angaben aus AUH (1995) [22] und gilt für einen ungünstigen Fall mit erhöhter Atemrate (95. Perzentil bei Jugendlichen bis Erwachsenen). Legt man eine vollständige Resorption zugrunde, errechnet sich die tolerable TEQ-Konzentration in der Innenraumlufte mit 1,5 pg TEQ/kg KG/d/0,3 m³/kg KG/d = 5 pg TEQ/m³. Bei einer geringeren Resorptionsrate oder bei kürzeren Expositionszeiten würde sich die inhalativ aufgenommene TEQ-Aufnahme verringern, und eine höhere TEQ-Konzentration in der Raumlufte wäre zulässig. Die Ad-hoc-Arbeitsgruppe verzichtet auf eine Berücksichtigung einer möglichen geringeren Resorptionsrate oder kürzeren Expositionszeit, um auch mögliche nicht berücksichtigte Belastungen aufzufangen. Eine solche nicht berücksichtigte Belastung können Beiträge zu den TEQ durch Verunreinigungen der technischen PCB-Gemische mit PCDD/PCDF sein, die nach den zu Clophen A 60 vorliegenden Daten in besonders ungünstigen Fällen die Gesamt-PCB-Gehalte in der Innenraumlufte um bis zu 30 % erhöhen können; bei Clophen-A-40-Quellen liegt eine mögliche Erhöhung deutlich unter 10 % [24, 25].

Teil 2

Verfahren zur Abschätzung der Summe der Toxizitätsäquivalente aus PCB-Belastungen der Innenraumlufte

Wegen der dioxinähnlichen Eigenschaften einiger PCB ergibt sich die Frage, ob und unter welchen Bedingungen der für die nicht-dioxinähnlichen PCB abgeleitete Richtwert von 3 µg/m³ auch die Einhaltung von TEQ-Vorgaben im Hinblick auf die dioxinähnliche Wirkung der PCB ausreichend gewährleistet. Die Ad-hoc-Arbeitsgruppe der Innenraumlufthygiene-Kommission des Umweltbundesamtes und der Arbeitsgemeinschaft der

Tabelle 3

Kenngößen der Ausgleichsgeraden für die Beziehung TEQ-Wert über Gesamt-PCB-Konzentration in Abhängigkeit von der PCB-Quelle			
PCB-Quelle	Anzahl n	TEQ über Gesamt-PCB Geradengleichung	Regressionskoeffizient
Fugendichtungsmasse, A40	25	y=0,453 x	0,669
Fugendichtungsmasse, A50	19	y=0,642 x	0,655
Farbanstrich, A60	13	y=2,09 x	0,667
Deckenplatten, A60	47	y=2,94 x	0,891
Alle A40- + A50-Quellen (Abb. 2)	44	y=0,581 x	0,648
Alle A60-Quellen (Abb. 3)	60	y=2,75 x	0,805

Tabelle 4

Kenngößen der Ausgleichsgeraden für die Beziehung zwischen TEQ-Wert und PCB-118-Konzentration aus beiden Studien in Abhängigkeit von der PCB-Quelle			
PCB-Quelle	Anzahl n	TEQ über PCB 118 Geradengleichung	Regressionskoeffizient
Fugendichtungsmasse, A40	25	y=0,280 x	0,893
Fugendichtungsmasse, A50	19	y=0,196 x	0,963
Farbanstrich, A60	13	y=0,255 x	0,889
Deckenplatten, A60	47	y=0,220 x	0,921
Alle PCB-Quellen (Abb. 5)	104	y=0,221 x	0,934
Alle A60-Quellen (Abb. 3)	60	y=2,75 x	0,805

Obersten Landesgesundheitsbehörden stellte Überlegungen dazu an, ob immer die aufwändige Analyse aller einzelnen PCB erforderlich ist oder unter bestimmten Umständen ein einfacheres Verfahren genügt. Dabei zeigten erste Hinweise, dass PCB 118 als Leitkongener verwendet werden kann. Zur Absicherung dieses Befundes wurden 2 Forschungsvorhaben durchgeführt. Vorteilhaft bei der Auswahl von PCB 118 als Leitkongener ist, dass es mit der eingeführten VDI-Standardmethode zur Erfassung der Indikatorkongenere (PCB 28, PCB 52, PCB 101, PCB 153, PCB 138 und PCB 180) [23] mit nur geringfügigem Mehraufwand miterfasst werden kann.

Neue Studienergebnisse zum Zusammenhang zwischen PCB-Gesamtkonzentrationen und TEQ-Werten in PCB-belasteten Gebäuden

Folgende Forschungsvorhaben lieferten neue Ergebnisse, die im Abschnitt 3 verwendet werden: die UFOPLAN-Studie des UBA [24] und die BW-Plus-Studie der Materialprüfungsanstalt der Universität Stuttgart in Baden-Württemberg [25]. Die UFOPLAN-Studie wurde mit dem Ziel durchgeführt, eine möglichst große Zahl von verschiedenen Messobjekten mit unterschiedlicher PCB-Belastung auch unter extremen Randbedingungen (Sommer 2003, Innenraumtemperaturen bis 35°C) zu untersuchen (n=62). Ein Schwerpunkt der BW-Plus-Studie (n=42) lag in der längerfristigen Untersuchung des klimatischen Einflusses auf die PCB-Konzentrationen in einigen belasteten Gebäuden. Für beide Untersuchungen wurden im Rahmen einer externen Qualitätssiche-

rung Vergleichsmessungen durchgeführt, die sehr gut übereinstimmende Ergebnisse zeigten. Die Daten können daher ohne Einschränkung zusammengeführt werden.

Während der Laufzeit dieser Studien wurden von der WHO die Toxizitätsäquivalenzfaktoren (TEF) sowohl für die PCDD/F als auch für PCB aktualisiert [26]. Die Ergebnisse der Studien sind noch mit den alten Faktoren [27] berechnet worden, jedoch ist eine Umrechnung mit den neuen Faktoren gut möglich, und dies wird an einem Beispiel durchgeführt (s. Abschnitt Sensitivitätsanalyse), um die Auswirkung der neuen Faktoren auf die Auswertung zu zeigen.

Die Studien belegen eine Korrelation zwischen der Gesamt-PCB-Belastung – ermittelt aus der Summe der 6 Indikator kongenere (PCB 28, PCB 52, PCB 101, PCB 153, PCB 138 und PCB 180) mit 5 multipliziert – und der Summe der Toxizitätsäquivalente der dioxinähnlichen non-ortho-PCB (PCB 77, PCB 81, PCB 126 und PCB 169) und mono-ortho-PCB (PCB 105, PCB 114, PCB 118, PCB 123, PCB 156, PCB 157, PCB 167 und PCB 189) in Abhängigkeit von der PCB-Quelle (Clophen A40–A60, mit steigendem Chlorierungsgrad). Daher ist eine erste Abschätzung des TEQ-Wertes möglich, wenn der Typ der PCB-Quelle und die PCB-Gesamtkonzentration in der Raumluft bekannt sind. In der **Abb. 1** ist der Zusammenhang dargestellt. Die dargestellten TEQ-Werte stehen für eher ungünstige Annahmen, da für alle mono-ortho- und non-ortho-PCB-Einzerverbindungen unter der Bestimmungsgrenze ein Wert von 2/3 der Bestimmungsgrenze in die TEQ-Berechnung eingeflossen ist [28]. Wie sich die TEQ-Angaben ändern, wenn Konzentrationen unterhalb der jeweiligen Bestimmungsgrenze nicht mit 2/3, sondern anders einbezogen werden, wird weiter unten (s. a. **Abb. 6**) eingehender gezeigt.

In der **Abb. 1** werden – ebenso wie in den **Abb. 2–5** – neben den einzelnen Messpunkten der Datensätze auch die berechneten Ausgleichsgeraden gezeigt. Als Kenngrößen dieser Ausgleichsgeraden, die durch den Nullpunkt gelegt werden, dienen die Geradengleichung $y=a \cdot x$ (Steigung a , entspricht einem Rechenfaktor)

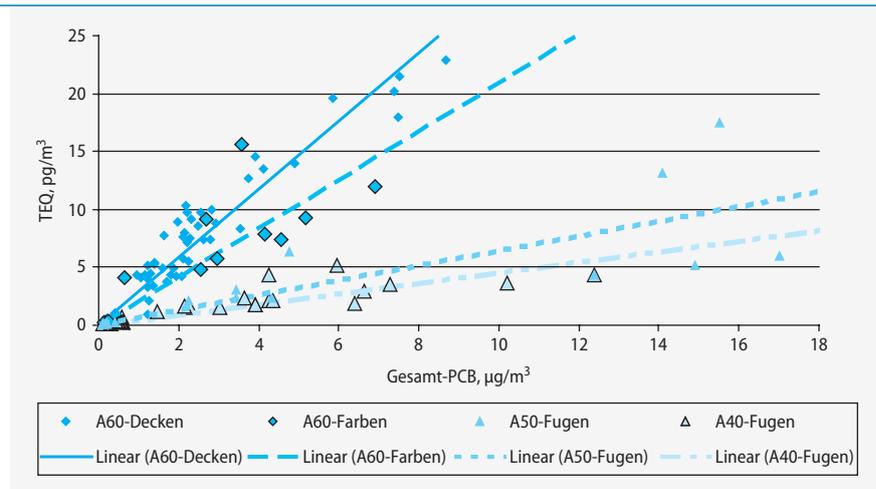


Abb. 1 ▲ PCB-TEQ-Werte (UFOPLAN-Studie und BW-Plus-Studie) in Abhängigkeit von dem PCB-Quellentyp und der PCB-Gesamtkonzentration in der Innenraumluft

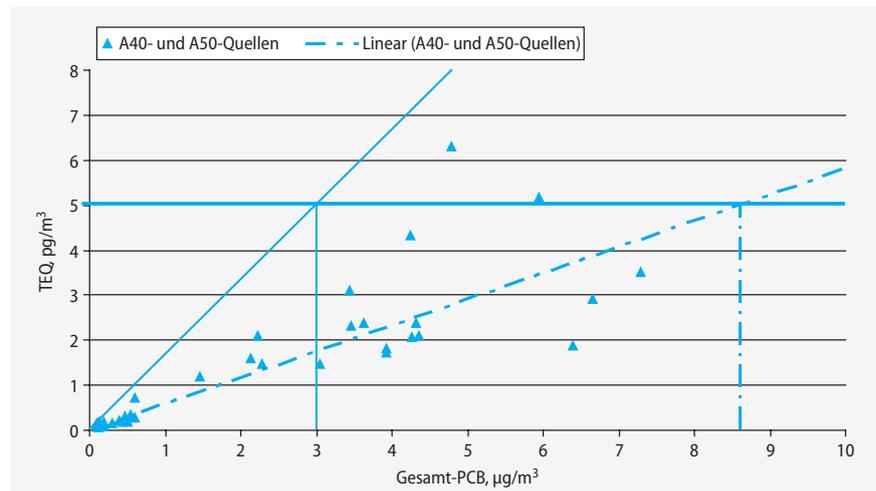


Abb. 2 ▲ PCB-TEQ-Werte in Abhängigkeit von PCB-Gesamtkonzentrationen in der Innenraumluft (UFOPLAN-Studie und BW-Plus-Studie), wenn Clophen-A40- oder Clophen-A50-Quellen (PCB-haltige Fugendichtungsmassen) vorliegen

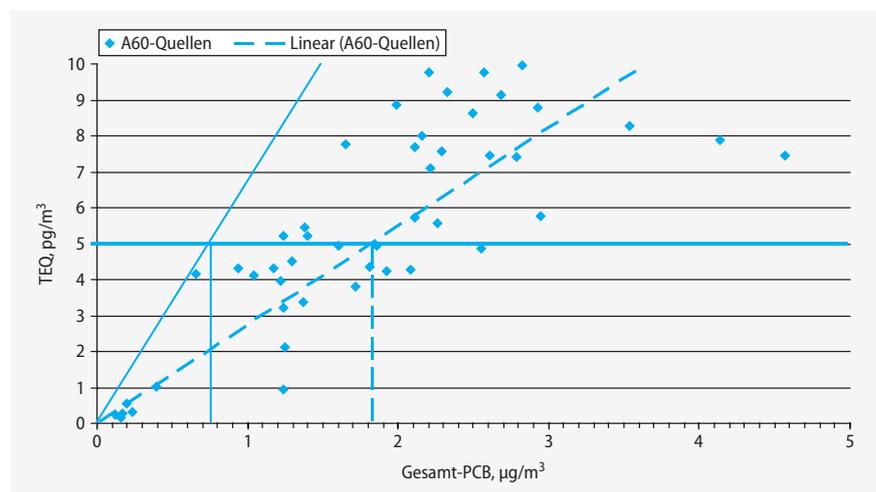


Abb. 3 ▲ PCB-TEQ-Werte in Abhängigkeit von PCB-Gesamtkonzentrationen in der Innenraumluft (UFOPLAN-Studie und BW-Plus-Studie), wenn Clophen-A60-Quellen (PCB-haltige Deckenplatten und Farbanstriche) vorliegen

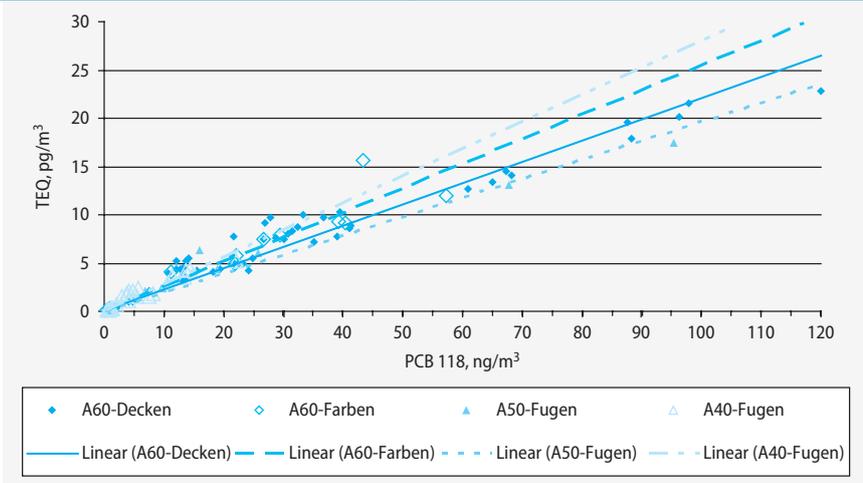


Abb. 4 ▲ PCB-TEQ-Werte aus beiden Studien (UFOPLAN-Studie und BW-Plus-Studie) in Abhängigkeit von dem PCB-Quellentyp und von der Konzentration des PCB 118 in der Innenraumluft

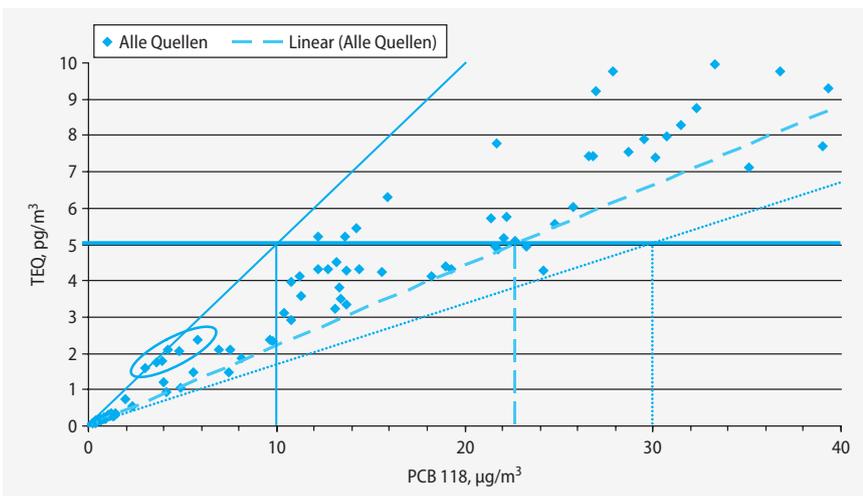


Abb. 5 ▲ PCB-TEQ-Werte der beider Studien (UFOPLAN-Studie und BW-Plus-Studie, dargestellt werden nur Daten in Ursprungsnähe) in Abhängigkeit von der Konzentration des PCB 118 in der Innenraumluft

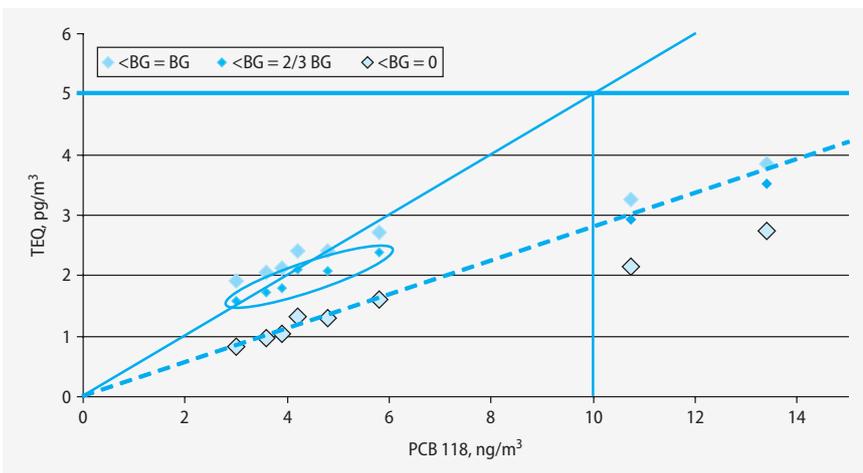


Abb. 6 ▲ PCB-TEQ-Werte aus einer Studie bei Vorliegen einer Clophen-A40-Quelle in Abhängigkeit von der Konzentration des PCB 118 mit unterschiedlicher Einbeziehung von PCB-Werten $\langle BG >$ in die TEQ-Berechnung

und der Regressionskoeffizient R_2 (Quadrat des Korrelationskoeffizienten, Maß für den Zusammenhang).

Die Werte für die Ausgleichsgeraden der **Abb. 1** sind in der **Tabelle 3** aufgeführt. Auffallend ist, dass die Ausgleichsgeraden für die A50- und A40-Quellen sehr ähnliche Steigungen aufweisen, die sich aber deutlich von denen der A60-Quellen unterscheiden. Für die Berechnung ist zu beachten, dass die PCB-Werte (x-Achse) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ angegeben sind und die TEQ-Werte (y-Achse) in pg/m^3 .

Die Regressionskoeffizienten in **Tabelle 3** zeigen, dass direkt nur eine grobe Abschätzung des TEQ-Wertes aus der Relation mit der Gesamt-PCB-Konzentration möglich ist. Durch Annahmen oder Vorgaben (z. B. welche TEQ-Werte können bei einer bestimmten PCB-Gesamtkonzentration nach Maßgabe der vorhandenen Messungen sicher eingehalten werden?) kann eine genügend große Sicherheitsspanne, die die Streuung der Messwerte berücksichtigt, einbezogen werden, wie in den **Abb. 2 und 3** gezeigt wird.

Die Prüfgerade $y=1,67x$ (oder $y=5/3x$) in der **Abb. 2**, die für die Abfrage steht, ob ein TEQ-Prüfwert von $5 \text{ pg}/\text{m}^3$ bei dem bestehenden Richtwert für Gesamt-PCB von $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ eingehalten wird, verläuft deutlich oberhalb sämtlicher Messwerte aus beiden Studien für Fugendichtungsmassen. Die Steigung der Prüfgeraden ist knapp dreimal so groß wie die Steigung der Ausgleichsgeraden (**Tabelle 3**), die gestrichelt ebenfalls noch einmal eingezeichnet ist; dies steht für eine entsprechende Sicherheitsspanne.

Bei einer Prüfgeraden $y=6,67x$ (oder $y=5/0,75x$) in der **Abb. 3**, die oberhalb sämtlicher Messwerte aus beiden Studien für Clophen-A60-Quellen verläuft, ist die Steigung der Prüfgeraden 2,4-mal so groß wie die Steigung der gestrichelt eingezeichneten Ausgleichsgeraden (s. **Tabelle 3**); damit ist eine entsprechende Sicherheitsspanne ebenfalls belegt.

Bei genauer Kenntnis der PCB-Quellen und mit entsprechenden Sicherheitsspannen ist es also möglich, aus der PCB-Gesamtkonzentration abzuschätzen, ob der TEQ-Prüfwert von $5 \text{ pg}/\text{m}^3$ eingehalten wird.

Folgend wird auf ein alternatives Schätzverfahren, das hinsichtlich der Voraussetzungen weniger eingeschränkt ist, näher eingegangen.

Abschätzung des TEQ-Wertes mithilfe der PCB-118-Konzentration

Anstelle der PCB-Gesamtkonzentration wird bei diesem Verfahren nur PCB 118 als „Leitkongener“ zur TEQ-Abschätzung verwendet. PCB 118 weist die durchschnittliche Flüchtigkeit der Verbindungen aus der Gruppe der non-ortho- und mono-ortho-PCB-Kongeneren auf und trägt mit ca. 40 % auch relativ am stärksten zum TEQ-Wert bei [24]. Für PCB 118 ist daher eine ausreichend hohe Korrelation mit dem TEQ-Wert zu erwarten. Darüber hinaus ist PCB 118 wegen seines hohen Anteils am PCB-Gemisch analytisch auch mit der Standardmethode zu erfassen.

Mithilfe der Konzentration dieses Leitkongeners PCB 118 für die dioxinähnlichen PCB wird die TEQ-Konzentration ermittelt. In der **Abb. 4** wird die Beziehung zwischen TEQ-Wert und PCB-118-Konzentration bei verschiedenen Typen von PCB-Quellen dargestellt. Die generellen messstrategischen Vorbehalte, die für die Abschätzung der PCB-Belastung aus einer eingeschränkten Probenzahl gelten, treffen auch für die Nutzung eines PCB-118-Wertes zu (z. B. Untersuchungszeitraum, Probenahmebedingungen). So kann auch eine Aussage zu dem zu erwartenden Jahresmittelwert nur mit einer sinnvoll angewandten Messstrategie nach VDI 4300-2 [29] getroffen werden.

Auffällig ist, dass die Ausgleichsgeraden für die Untersuchungen für verschiedene PCB-Quellen nun enger beieinander liegen und in der Regel höhere Regressionskoeffizienten aufweisen, wie in der **Tabelle 4** dargestellt. Hier ist zu beachten, dass PCB 118 in ng/m^3 und die TEQ-Werte in pg/m^3 angegeben werden.

Eine Zusammenfassung nicht nur der Ergebnisse aus beiden Studien, sondern auch der Werte der verschiedenen PCB-Quellen bietet sich danach an. Sie wird in der **Abb. 5** dargestellt.

Für alle PCB-Quellen kann aus der PCB-118-Konzentration, wie schon in den **Abb. 2 und 3** für Gesamt-PCB im

Ansatz vorgestellt, eine Abschätzung der maximal zu erwartenden TEQ-Werte erfolgen, wobei auch Sicherheitsspannen einbezogen sind. In der **Abb. 5** ist für diese Berechnung die linke Prüfgerade mit der Geradengleichung $y=0,5 \cdot x$ dargestellt (oder $y=5/10 \cdot x$: Gerade mit etwa doppelter Steigung im Vergleich zur gestrichelt dargestellten Ausgleichsgerade, s. a. auch **Tabelle 2**, letzte Zeile). Einem Vorschlag von Heinzow [30] dem Prinzip nach folgend, wird weiterhin der Bereich aller Messwerte durch eine zusätzliche Prüfgerade (gepunktet) mit der Geradengleichung $y=0,167 \cdot x$ (oder $y=5/30 \cdot x$) eingeschlossen.

Abbildung 5 zeigt auch, wie weiter oben schon angesprochen, dass die ermittelte Regressionsgerade kein exaktes Abbild der Beziehung liefert. Es handelt sich nach der Punkteverteilung eher um eine in Ursprungsnähe steilere, aber im weiteren Verlauf abflachende Kurve, die mit einer Funktion höherer Ordnung besser beschrieben werden könnte. Bei eingehender Betrachtung der Daten kann aber festgestellt werden, dass in der Nähe des Ursprungs – mit den dort extrem niedrigen Konzentrationen der dioxinähnlichen PCB – der mit den Äquivalenzfaktoren errechnete TEQ-Wert eher eine Überschätzung darstellt. Am Beispiel der in **Abb. 5** im Oval eingeschlossenen Werte eines Datenunterkollektivs (Daten einer Studie von nur einem PCB-Quellentyp) wird dies in der folgenden **Abb. 6** eingehender dargestellt. Wenn die Konzentration dioxinähnlicher PCB unter der Bestimmungsgrenze (BG) liegt und $2/3$ der BG in die Berechnung des TEQ-Wertes eingehen, wie für die Werte der **Abb. 1** bis **5** geschehen, wird der TEQ-Wert sehr wahrscheinlich überschätzt, und zwar umso mehr, je höher die BG ist, die vom beteiligten Messinstitut als Verfahrenskenngröße bestimmt und eingesetzt wird.

In der **Abb. 6** ist die gleiche Anordnung wie in **Abb. 5** gewählt worden, jedoch nur mit einem Datenunterkollektiv (Werte aus einer Studie von einem PCB-Quellentyp, Fugenmaterial mit Clophen A40), wobei die im Oval eingeschlossenen, schwarz gekennzeichneten Werte die gleichen Werte sind, die auch in der **Abb. 5** gekennzeichnet sind. Mit

einer unterschiedlichen Einbeziehung der Bestimmungsgrenze, die hier speziell für PCB 126 und PCB 169 bei $0,01 \text{ ng}/\text{m}^3$ liegt, wird die Berechnung der TEQ-Werte in der Nähe des Ursprungs (sehr niedrige PCB-Werte) wesentlich beeinflusst. Die grauen Rauten, die für die Einbeziehung der vollen BG bei Werten unter der BG in die TEQ-Berechnungen ($<BG=BG$) stehen, zeigen geringfügig höhere TEQ-Werte. Wesentlich niedrigere TEQ-Werte werden aber für die TEQ-Werte errechnet, wenn alle Werte unter der BG gleich null gesetzt werden ($<BG=0$) (offene Rauten). Diese liegen aber praktisch auf der gestrichelt gezeichneten Ausgleichsgeraden, die im Wesentlichen durch hohe PCB-118-Werte (bis über $100 \text{ ng}/\text{m}^3$) bestimmt wird, einen Bereich, in dem die hier dargestellten Einflüsse der (Werte unter der BG) nachrangig sind. Umgekehrt ist eine geringfügige Überschreitung der Prüfgeraden bei sehr geringen PCB-Werten ($\text{PCB 118} < 5 \text{ ng}/\text{m}^3$) für die grundsätzliche Bewertung einer PCB-TEQ-Belastung nicht entscheidend, besonders dann, wenn Werte $<BG$ mit einem merklichen Betrag in die TEQ-Berechnung eingehen.

Abschließend kann aus der **Abb. 5** gefolgert werden, dass ein TEQ-Prüfwert von $5 \text{ pg}/\text{m}^3$ in Räumen eingehalten wird, wenn der PCB-118-Wert unter $10 \text{ ng}/\text{m}^3$ liegt. Bei einem PCB-118-Wert über $30 \text{ ng}/\text{m}^3$ liegen alle TEQ-Werte über $5 \text{ pg}/\text{m}^3$. Liegt der PCB-118-Wert zwischen 10 und $30 \text{ ng}/\text{m}^3$, kann durch eine genaue Bestimmung sämtlicher mono-ortho- und non-ortho-PCB der tatsächliche TEQ-Wert genauer ermittelt werden als über die PCB-118-Abschätzung und damit gegebenenfalls eine Unterschreitung des TEQ-Prüfwertes gezeigt werden. Wie die ähnlichen Ausgleichsgeraden für alle untersuchten PCB-Quellen belegen (**Abb. 4** und **Tabelle 4**), kann die TEQ-Abschätzung gemäß **Abb. 5** auch ohne nähere Kenntnis der PCB-Quellen erfolgen.

Sensitivitätsanalyse – Prüfung mit den TEF der WHO (2006)

Wie bereits oben erwähnt, hat die WHO 2005 den Kenntnisstand zu TEF von PCDD, PCDF und PCB überprüft und aktualisierte TEF veröffentlicht ([26]). Im Rahmen einer Sensitivitätsanalyse wird

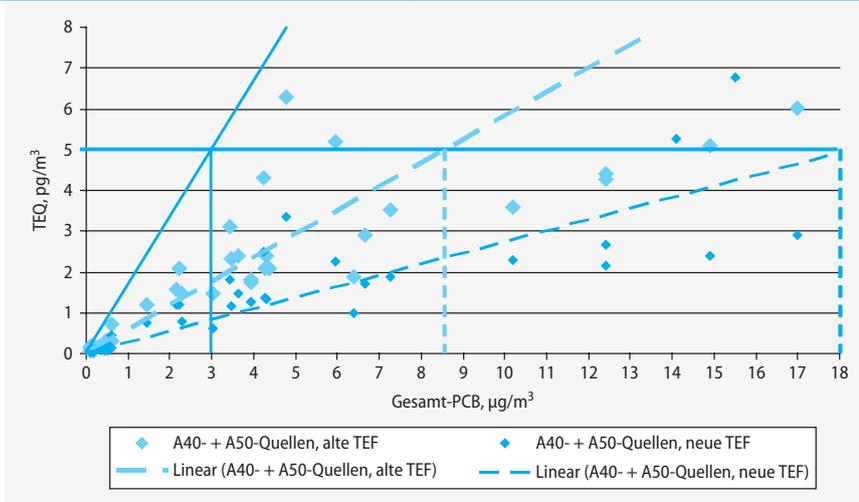


Abb. 7 ▲ PCB-TEQ-Werte in Abhängigkeit von PCB-Gesamtkonzentrationen in der Innenraumluft (UFOPLAN-Studie und BW-Plus-Studie mit TEF der WHO, von 1998 grau, und von 2005), wenn Clophen-A40- oder Clophen-A50-Quellen (PCB-haltige Fugendichtungsmassen) vorliegen

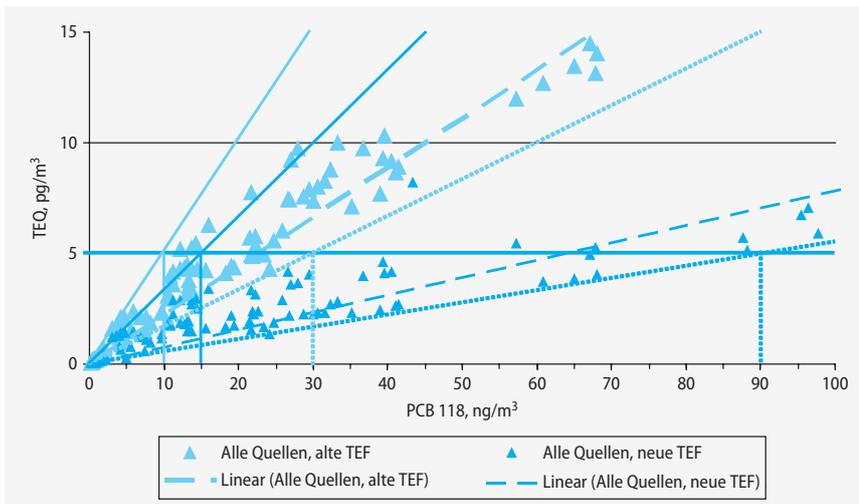


Abb. 8 ▲ PCB-TEQ-Werte der beiden Studien (UFOPLAN-Studie und BW-Plus-Studie mit TEF der WHO von 1998, grau, und 2005, schwarz) in Abhängigkeit von der Konzentration des PCB 118

geprüft, wie stark die abgeleiteten Relationen und die Sicherheitsspannen zur Abschätzung der PCB-TEQ-Werte beeinflusst werden, wenn statt der bisherigen TEF die aktualisierten TEF [26] eingesetzt werden. Die TEF für einige PCB, die wesentlich zur Gesamtbelastung beitragen, sind deutlich reduziert worden, sodass entsprechend verringerte TEQ-Werte errechnet werden. Die resultierenden Ausgleichsgeraden verlaufen deshalb flacher, so z. B. auch für Clophen-A40- und A50-Quellen in der **Abb. 7** mit der Geradengleichung $y=0,273 \cdot x$ statt $y=0,581 \cdot x$ für alte TEF wie in **Abb. 2**; die neue Gerade ist hier in **Abb. 7** schwarz dargestellt. Bei gleicher Prüfgerade $y=1,667$ (oder $y=5/3 \cdot x$,

aus **Abb. 2**) beträgt deshalb die Sicherheitsspanne 6; sie wird mit den neuen TEF also um etwa den Faktor 2 größer.

Alternativ kann natürlich auch die Prüfgerade der Berechnung mit neuen TEF angepasst werden. In **Abb. 8** ist die entsprechende Relation der TEQ-Werte zu den PCB-118-Konzentrationen von allen PCB-Quellen dargestellt.

Aus einer vorgegebenen PCB-118-Konzentration lässt sich auch mit der Prüfgeraden $y=0,333 \cdot x$ (oder $y=5/15 \cdot x$) leicht erkennen, ob ein TEQ-Prüfwert von 5 pg/m^3 sicher eingehalten wird. Mit den neuen WHO-TEF [26] steigt die Sicherheitsspanne auf 4,3 und wird damit fast doppelt so groß wie bei der Prüfung mit den alten

TEF (s. **Abb. 5**, in der **Abb. 8** grau dargestellt). Der gesamte Prüfbereich, der zwischen den beiden Prüfgeraden liegt (zwischen durchgezogener und gepunkteter Linie), vergrößert sich ebenfalls von 20 (30–10 ng/m^3 PCB 118, alte TEF, grau dargestellt) auf 75 (90–15 ng/m^3 PCB 118, neue TEF, schwarz dargestellt). Dieser Prüfbereich für eine sinnvolle und genauere Erfassung der konkreten TEQ-Werte aller dioxinähnlichen PCB ist größer, weil die Streuung der Messdaten um die Ausgleichsgerade ebenfalls größer geworden ist, was sich auch in der Verringerung des Regressionskoeffizienten von 0,934 (alte TEF) auf 0,692 (neue TEF) ausdrückt.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass mit dem Einsatz der alten TEF und der sich darauf stützenden Prüfwerte/Prüfgeraden ein konservativer Ansatz vorliegt, der erhebliche Sicherheitsspannen aufweist.

Teil 3

Empfehlung zum praktischen Vorgehen

Die Ad-hoc-Arbeitsgruppe der Innenraumluftthygiene-Kommission des Umweltbundesamtes und der Obersten Landesgesundheitsbehörden empfiehlt, bei zukünftigen PCB-Routineuntersuchungen zusätzlich zu den bisher üblichen PCB-Kongeneren PCB 28, 52, 101, 138, 153 und 180 mit der Standardmethode auch PCB 118 in der Raumluft zu messen. In Abhängigkeit vom Messergebnis und dem damit identifizierten Quellentyp erfolgt die gesundheitliche Bewertung der gefundenen PCB-Gehalte in der Raumluft. Mit dieser Vorgehensweise kann in vielen Fällen auf die aufwendige Bestimmung der dioxinähnlichen PCB verzichtet werden.

Für einzelne non-ortho- und mono-ortho-PCB-Kongeneren waren erstmals 1997 Toxizitätsäquivalenzfaktoren (TEF) aufgestellt worden [27]. Da die festgelegten TEF insbesondere für die mono-orthosubstituierten PCB erhebliche Unsicherheiten aufwiesen, war vereinbart worden, die TEF regelmäßig zu überprüfen. Die WHO hat auf einem Expertentreffen im Juni 2005 den aktuellen Kenntnisstand evaluiert und modifizierte TEF vorgeschlagen [26]. Diese aktualisierten TEF

sind bisher noch nicht in den relevanten regulatorischen Bereichen (wie z. B. dem Lebensmittelrecht) eingeführt worden, sodass noch keine umfangreichen Erfahrungen zu den neuen TEF vorliegen. Im Teil 2 dieser Mitteilung wurde in einer Sensitivitätsanalyse dargestellt, dass die Verwendung der neuen TEF zu deutlich niedrigeren PCB-TEQ-Raumluftkonzentrationen führt und der Einsatz der alten TEF damit erhebliche Sicherheitsspannen aufweist. Im Rahmen dieser Auswertung hält die Ad-hoc-Arbeitsgruppe aus den genannten Gründen an der Verwendung der alten TEF fest, weist aber darauf hin, dass diese nicht mehr dem aktuellen wissenschaftlichen Stand entsprechen.

In Abhängigkeit vom PCB-Quellentyp empfiehlt die Ad-hoc-Arbeitsgruppe folgendes Vorgehen:

1. Ausschließlich Fugenmassen als PCB-Quelle

Wenn eindeutig Fugenmassen mit PCB vorliegen, deren Chlorierungsgrad geringer ist als bei Clophen A60, dienen die Gesamt-PCB, basierend auf 6 Indikator-PCB ohne PCB 118, als Beurteilungsmaßstab. Unter der Voraussetzung belastbarer Messergebnisse sind bei Raumluftkonzentrationen oberhalb von 3 µg Gesamt-PCB pro Kubikmeter umgehend expositionsmindernde Maßnahmen zu prüfen, da eine Gesundheitsgefahr nicht ausgeschlossen werden kann. Bei Raumluftkonzentrationen unterhalb von 3 µg Gesamt-PCB pro Kubikmeter ist das Lüftungsverhalten zu überprüfen und gegebenenfalls zu verbessern. Als Grundlage für die Veranlassung weiterer Maßnahmen hat eine Kontrollmessung unter definierten Lüftungsbedingungen zu erfolgen [31]: In Räumen mit Lüftungsvorgaben, wie z. B. Schulen, sollen übliche Langzeitmessungen auf PCB während mehrerer Nutzungszyklen unter Einhaltung der vorgeschriebenen Lüftung bei üblicher Nutzung der Räume durchgeführt werden, die Pausenlüftungen erfolgen wie vorgeschrieben. Die Messung beginnt nach dem ersten Schließen der Fenster und endet vor dem letzten Öffnen der Fenster (mehrere Nutzungszyklen eingeschlossen). Vorzugsweise sind die Messungen bei gleichzeitiger Raumnutzung durchzuführen. Die Messdauer sollte nach Möglichkeit mindestens einen vollen Schultag umfassen, um so

den Temperatureinfluss im Tagesgang zu erfassen.

2. Clophen-A-50- oder -A-60-haltige Deckenplatten und Anstriche sowie nicht sicher einzuordnende PCB-Quellen

Wenn sichergestellt ist, dass hauptsächlich hochchlorierte Clophene als PCB-Quellen auftreten, kann ebenfalls ein PCB-Gesamtwert zur Beurteilung herangezogen werden. Bei einer Konzentration unter 1 µg Gesamt-PCB/m³ wird ein TEQ-Wert von 5 pg/m³ mit hoher Wahrscheinlichkeit unterschritten. Bei höheren PCB-Gesamtkonzentrationen sollte die PCB-118-Konzentration herangezogen werden. Unter der Voraussetzung belastbarer Messergebnisse sind bei Raumluftkonzentrationen oberhalb von 0,01 µg PCB 118 pro Kubikmeter umgehend expositionsmindernde Maßnahmen zu prüfen, da eine Gesundheitsgefahr durch dioxinähnliche PCB nicht ausgeschlossen werden kann. Bei Raumluftkonzentrationen unterhalb von 0,01 µg PCB 118 pro Kubikmeter ist das Lüftungsverhalten zu überprüfen und gegebenenfalls zu verbessern. Als Grundlage für die Veranlassung weiterer Maßnahmen hat eine Kontrollmessung unter definierten Lüftungsbedingungen zu erfolgen (s. oben).

Anmerkungen

Dieser Text wurde federführend von Drs. M. Csicsaky, H. Sagunski, D. Ullrich, W. Heger, N. Englert, J. Witten, B. Link und M. Kraft bearbeitet. Die Literaturrecherche wurde Ende 2005 abgeschlossen.

Literatur

1. BGA (1983) Polychlorierte Biphenyle (PCB). bga-Schriften 4/83. Bundesgesundheitsamt, Berlin
2. DFG (1988) Polychlorierte Biphenyle – Bestandsaufnahme über Analytik, Vorkommen, Kinetik und Toxikologie. Deutsche Forschungsgemeinschaft. VCH-Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim
3. BGA (1992) Polychlorierte Biphenyle in der Innenraumluft – Sachstand. Bundesgesundheitsbl 35: 434
4. LUA-NRW (2002) Toxikologische Bewertung polychlorierter Biphenyle (PCB) bei inhalativer Aufnahme. Materialien Nr. 62. Landesumweltamt NRW, Essen
5. WHO (2003) Polychlorinated biphenyls: human health aspects. CICAD 55. World Health Organization, Geneva

6. JECFA (1990) Toxicological evaluation of certain food additives and contaminants. Prepared by the 35th meeting of the Joint FAO/WHO – Expert Committee on Food Additives (JECFA). WHO Food Additives Series 26: 187–189. World Health Organization, Geneva
7. WHO (2001) WHO consultation on risk assessment of non-dioxin-like PCBs. Federal Institute for Health Protection of Consumers and Veterinary Medicine (BgVV), 3.–4. September 2001, Berlin
8. EFSA (2005) Opinion of the Scientific Panel on Contaminants in the Food Chain on a request from the Commission related to the presence of non-dioxin-like polychlorinated biphenyls (PCB) in feed and food. EFSA J 284: 1–137
9. DIBt (1995) Richtlinie für die Bewertung und Sanierung PCB-belasteter Baustoffe in Gebäuden. DIBt-Mitteilungen 2: 50–59. Deutsches Institut für Bautechnik, Berlin
10. EU-SCF (2001) Opinion of the Scientific Committee on Food on the risk assessment of dioxins and dioxin-like PCBs in food. Update based on new scientific information available since the adoption of the SCF opinion of 22nd November 2000. Adopted on 30 May 2001. European Commission, Scientific Committee on Food, Brussels. http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/scf/out90_en.pdf
11. JECFA (2002) Safety evaluation of certain food additives and contaminations. Polychlorinated dibenzodioxins, polychlorinated dibenzofurans and coplanar polychlorinated biphenyls. Prepared by the fifty-seventh meeting of the Joint FAO/WHO – Expert Committee on Food Additives (JECFA). WHO Food Additives Series 48. World Health Organization, Geneva. <http://www.inchem.org/documents/jecfa/jecmono/v48je20.htm>
12. Winneke G, Walkowiak J, Lilienthal H (2002) PCB-induced neurodevelopmental toxicity in human infants and its potential mediation by endocrine dysfunction. Toxicology 181–182: 161–165
13. Faqi AS, Dalsenter PR, Merker HJ, Chahoud I (1998) Reproductive toxicity and tissue concentrations of low doses of 2,3,7,8-tetrachlorodibenzo-p-dioxin in male offspring rats exposed throughout pregnancy and lactation. Toxicol Appl Pharmacol 150(2): 383–392
14. WHO (1994) Assessing human health risks of chemicals: Derivation of guidance values for health-based exposure limits. Environmental Health Criteria 170. World Health Organization, Geneva
15. EU-Kommission (2001) Strategie der Gemeinschaft für Dioxine, Furane und polychlorierte Biphenyle. Komm (2001) 593 endg. Amtsbl. EG vom 17.11.2001. C 322: 2–16
16. FAO-CAC (2001) Position paper on dioxins and dioxin-like PCBs. Codex Committee on Food Additives and Contaminants. Thirty-third Session. World Health Organization, Geneva
17. FSA (2003) Dioxins and dioxin-like PCBs in the UK diet: 2001 total diet study samples. Food safety information sheet 38/03 (July 2003). Food Standards Agency, London. http://www.food.gov.uk/science/surveillance/pdfs/fsis38_2003.pdf
18. Heinzow B (2006) Schadstoffbelastung der Nahrung: Studie zur Gesamtaufnahme von polychlorierten Biphenylen (PCB) bei jungen Frauen. ISSN 0935-4379. Landesamt für Gesundheit und Arbeitssicherheit des Landes Schleswig-Holstein, Kiel
19. Abraham K, Paepke O, Gross A et al. (1998) Time course of PCDD/PCDF/PCB concentrations in breast-feeding mothers and their infants. Chemosphere 37(9–12): 1731–1741

20. Kreuzer PE, Csanady GA, Baur C et al. (1997) 2,3,7,8-Tetrachlorodibenzo-p-dioxin (TCDD) and congeners in infants. A toxikokinetic model of human lifetime body burdens by TCDD with special emphasis on its uptake by nutrition. Arch Toxicol 71: 383–400
21. LGA-BW (2000) Projekt Beobachtungsgesundheitsämter, Belastungs- und Wirkungsmonitoring. Bericht zur Untersuchung 1998/1999. Landesgesundheitsamt Baden-Württemberg, Stuttgart
22. AUH (1995) Standards zur Expositionsabschätzung. Ausschuss für Umwelthygiene. Behörde für Arbeit, Gesundheit und Soziales, Hamburg
23. VDI (2005) VDI 2464-1. Messen von polychlorierten Biphenylen (PCB) – GC/MS-Verfahren für PCB 28, 52, 101, 138, 153, 180. Entwurf/Gründruck März 2005
24. Kieper H, Hemminghaus HJ (2005) Untersuchungen zur PCB-Belastung der Luft in Innenräumen unter Einschluss der Verbindungen, für die toxisch besonders bedeutsame TEQ-Werte ermittelt worden sind. WaBoLu-Hefte 03/05. Umweltbundesamt, UFOPLAN, FKZ 203 61 218/04, ISSN 0175-4211
25. Volland G, Neuwirth A (2005) „Dioxinähnliche polychlorierte Biphenyle (PCB) und polychlorierte Dioxine/Furane (PCDD/F) im Innenraum – Modelluntersuchungen zum Einfluss PCB-belasteter Bauteile und Baustoffe auf die Innenraumluft in Abhängigkeit von baulichen Einrichtungen und klimatischen Randbedingungen“, Programm Zukunftsoffensive III – Forschungsbereich „Umwelt und Wohnen“ des Landes Baden-Württemberg, FKZ BW-Plus ZO3W23002
26. Van den Berg M, Birnbaum LS, Denison M et al. (2006) The 2005 World Health Organization reevaluation of human and mammalian toxic equivalency factors for dioxins and dioxin-like compounds. Toxicol Sci 93: 222–241
27. Van den Berg M, Birnbaum L, Bosveld ATC et al. (1998) Toxic equivalency factors (TEFs) for PCBs, PCDDs, PCDFs for humans and wildlife. Environ Health Perspect 106: 775–792
28. Hallez S, Derouane A (1982) Nouvelle Méthode de Traitement de Séries de Données Tronquées dans L'Étude de la Pollution Atmosphérique. Sci Total Environ 22: 115–123
29. VDI (1997) VDI 4300-2. Messen von Innenraumluftverunreinigungen – Messstrategie für polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAH), polychlorierte Dibenzo-p-dioxine (PCDD), polychlorierte Dibenzofurane (PCDF) und polychlorierte Biphenyle (PCB). Beuth Verlag GmbH, Berlin
30. Heinzow B (2004) Vortrag „Dioxin 2004“, 24th International Symposium on Halogenated Environmental Organic Pollutants and POPs, Berlin, September 2004
31. Ad-hoc-Arbeitsgruppe IRK/AOLG (2007) Beurteilung von Innenraumluftkontaminationen mittels Referenz- und Richtwerten. Bundesgesundheitsbl Gesundheitsforsch Gesundheitsschutz