

WaBoLu-Hefte

WaBoLu

**04
07**

ISSN
1862-4340

Evaluation von Standards und Modellen zur probabilistischen Expositionsabschätzung

Teil 3: Szenarien

Umwelt
Bundes
Amt 
Für Mensch und Umwelt

UMWELTFORSCHUNGSPLAN DES
BUNDESMINISTERIUMS FÜR UMWELT,
NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT

Forschungsbericht 202 61 218/02
UBA-FB 001073/3



Evaluation von Standards und Modellen zur probabilistischen Expositionsabschätzung

Teil 3: Szenarien

von

**Odile Mekel¹, Olaf Mosbach-Schulz²,
Michael Schümann^{3,7}, Petra-Karin Okken⁴,
Claudia Peters⁷, Jens Herrmann^{†2}, Oliver Hehl⁵,
Michael Bubenheim⁶, Rainer Fehr¹, Jürgen Timm²**

- 1: Landesinstitut für den Öffentlichen Gesundheitsdienst NRW
- 2: Universität Bremen, FB 3: Risikoforschung Umwelt Gesundheit
- 3: Behörde für Soziales, Gesundheit und Verbraucherschutz, Hamburg
- 4: Universität Bielefeld, Fakultät Gesundheitswissenschaften
- 5: Niedersächsisches Landesgesundheitsamt
- 6: Universitätsklinikum Hamburg-Eppendorf, Inst. f. med. Biometrie und Epidemiologie (IMBE)
- 7: Universitätsklinikum Hamburg-Eppendorf, IMBE / Arbeitsgruppe Epidemiologie

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

Diese Publikation ist auch als Download unter
<http://www.umweltbundesamt.de>
verfügbar.

Die in der Studie geäußerten Ansichten
und Meinungen müssen nicht mit denen des
Herausgebers übereinstimmen.

Herausgeber: Umweltbundesamt
Postfach 1406
06844 Dessau-Roßlau
Tel.: +49-340-2103-0
Telefax: +49-340-2103-2285
Internet: <http://www.umweltbundesamt.de>

Redaktion: Fachgebiet II 1.3
Dirk Wintermeyer
André Conrad

Dessau-Roßlau, November 2007



Evaluation von Standards und Modellen zur probabilistischen Expositionsabschätzung

Teil 3 Szenarien

Abschlussbericht

Inhaltsverzeichnis Teil 3

Verzeichnis der Abbildungen	IV
-----------------------------------	----

Verzeichnis der Tabellen	VI
--------------------------------	----

Vorwort zum Teil 3 – Szenarien.....	IX
-------------------------------------	----

1	Szenario „Leben auf einer Altlast“	1
----------	---	----------

Petra Okken und Odile Mekel

1.1	Definition des Szenarios	1
1.2	Ausgangsbasis.....	2
1.2.1	Boden.....	2
1.2.2	Pflanzen	3
1.3	Dosis-Wirkungsabschätzung.....	4
1.4	Expositionsabschätzung	4
1.5	Stoffspezifische Parameter	6
1.5.1	Konzentration im Boden	6
1.5.2	Konzentration im Hausstaub.....	6
1.5.3	Konzentration in der Außenluft	7
1.5.4	Konzentration in der Innenraumluft.....	7
1.5.5	Cadmium in der Nahrung.....	7
1.5.6	Pflanzen aus Kleingärten.....	8
1.5.7	Resorptionsraten.....	9
1.6	Personenbezogene Parameter	9
1.6.1	Körpergewicht	11
1.6.2	Aufenthalts- und Aktivitätsparameter.....	11
1.6.3	Aufnahme von Boden	12
1.6.4	Nahrungsverzehr	13
1.6.4.1	Üblich gekaufte Nahrung	13
1.6.4.2	Selbstangebautes Obst und Gemüse.....	16
1.7	Ergebnisse	16
1.8	Risikocharakterisierung.....	18
1.9	Unsicherheitsanalyse „Boden- und Hausstaubaufnahme“	19
1.10	Fazit	22
	Anhang Expositions-Gleichungen für das Altlastenszenario	25
	Literatur Kapitel 1	28

2	Szenario „Innenraum“: Berechnung und Evaluation einer bevölkerungsbezogenen Expositionsprognose am Beispiel Tetrachlorethylen.....	31
	<i>Michael Schümann</i>	
2.1	Ziele des Anwendungstests	31
2.1.1	Definition des zu betrachtenden Szenarios	32
2.2	Kurzinformation zur Substanz Tetrachlorethylen	33
2.2.1	Physikalisch-chemische Eigenschaften.....	33
2.2.2	Verteilung und Transformation in der Umwelt	34
2.2.3	Produktion und Verwendung	35
2.2.4	Expositionspfade und Toxikokinetik.....	36
2.2.5	Toxikologie.....	37
2.2.6	Toxikologische und regulatorische Bewertung	37
2.3	Ansätze der Zusammenhangsanalyse und Modellbildung.....	38
2.3.1	Epidemiologische Ansätze: Datenbasierte Regressionsanalyse des Expositionsprozesses	40
2.4	Modellierung des Expositionsprozesses	46
2.4.1	Modellierung der Außenluftbelastung	49
2.4.2	Modellierung der Innenraumluftbelastung	53
2.4.2.1	Analyse der Einflussfaktoren auf die Innenraumluft-Immission	58
2.4.2.2	Einflussfaktor Chemischreinigungen.....	60
2.4.2.3	Personal-Sampler-Messungen des Umweltbundesamtes.....	61
2.4.3	Personenbezogene Variation des individuellen Verhaltens	65
2.4.3.1	Modellierung der innenraum- und außenluftbezogenen Aktivitäten und Atemraten	65
2.4.3.2	Integration: Exposition über einen Tag	66
2.4.4	Daten zur Atemrate.....	74
2.5	Ansätze zur Modellvereinfachung	78
2.5.1	Beiträge aus Trinkwasser	78
2.5.2	Beiträge aus Nahrungsmitteln	78
2.5.3	Beitrag über die Hautaufnahme.....	83
2.5.4	Bewertung der Beiträge	83
2.6	Expositionsabschätzung basierend auf Personal-Sampler-Daten	83
2.7	Zielgröße: Innere Exposition / PER-Konzentration im Blut	86
2.8	Entwicklung eines bevölkerungsbezogenen Prognosemodells für die PER-Körperlast	89
2.8.1	Skriptdarstellung des populationsbezogenen Simulationsmodells.....	91
2.8.2	Ergebnisse der bevölkerungsbezogenen Expositionsprognose.....	97
2.9	Evaluation der Übereinstimmung zwischen Prognose und Messungen im Hamburger Untersuchungsprogramm	102
2.10	Zusammenfassung und Bewertung des aktuellen Standes	108

Literatur Kapitel 2	111
3 Modellierung der Exposition gegenüber Quecksilber und Arsen für die Bewohner einer Altlast.....	119
<i>Oliver Hehl, Michael Hoopmann, Sandra Heidrich, Katja Claußen</i>	
3.1 Aufgabenstellung	119
3.2 Daten der Ausgangsstudie	120
3.3 Arsen	122
3.3.1 Trinkwasser	124
3.3.2 Fischverzehr	125
3.3.3 Kleingartennutzung	126
3.3.4 Grundbelastung	128
3.3.5 Gesamtmodell für Arsen	129
3.3.6 Ergebnisse Arsen	129
3.4 Quecksilber	131
3.4.1 Selektion der Eingangsvariablen im Quecksilbermodell	133
3.4.2 Amalgamfüllungen und Kaugummi-Kauen	134
3.4.3 Berufliche Exposition	135
3.4.4 Quecksilber-Grundbelastung	135
3.4.5 Gesamtmodell für Quecksilber	136
3.4.6 Ergebnisse Quecksilber	136
3.4.7 Einfluss des Lebensalters auf die Quecksilber-Exposition	138
3.4.8 Quecksilber-Exkretion im Urin der Nicht-Amalgamträger	140
3.5 Fazit	142
Literatur Kapitel 3	143
4 Zur Bedeutung von Expositionsfaktoren für eine nationale und europäische Chemikalienpolitik.....	145
<i>Odile Mekel</i>	
4.1 Stellenwert von Expositionsabschätzungen in REACH	147
4.1.1 Expositionsbeurteilung im Rahmen des Stoffsicherheitsberichts	147
4.1.2 Waiving	149
4.2 Technische Ausarbeitung der Anforderungen an die Expositionsbeurteilung	150
4.3 Anwendung von Xprob-Ergebnissen in REACH	154
Literatur Kapitel 4	156

Verzeichnis der Abbildungen

Abbildung 1.1	Darstellung der relevanten personenbezogenen Expositionspfade.....	2
Abbildung 1.2	Häufigkeitsverteilung der Cadmiumgehalte im Untersuchungsgebiet.....	3
Abbildung 1.3	Cadmiumgehalte in Wurzelgemüse aus 5 Hausgärten.....	8
Abbildung 1.4	Kumulative Verteilungen der resorbierten Cadmiumdosen für das Unterszenario „Wohnen“ pro Expositionspfad und für die Gesamtexposition.....	17
Abbildung 1.5	Verteilung der resorbierten Cadmiumdosis für das Unterszenario „Garten“ je Expositionspfad und Gesamtexposition.....	17
Abbildung 1.6	Verteilung der resorbierten Cadmiumdosis für die Unterszenarien „Garten“ und „Wohnen“	18
Abbildung 1.7	Einfluss verschiedener Verteilungsannahmen zur Boden- und Hausstaubaufnahme auf die resorbierte Cadmiumdosis durch Boden- und Hausstaubaufnahme für Kinder von 1-3 Jahren (Darstellung ab 80 %-Quantil)	21
Abbildung 1.8	Verteilung der resorbierten Gesamt-Cadmiumdosis im Unterszenario „Wohnen“ über die Lebenszeit	22
Abbildung 2.1	Regressionsmodelle zur Beschreibung von Zusammenhängen.....	39
Abbildung 2.2	Variablen eines einfachen Expositionsmodells zur Prädiktion der PER-Körperlast.....	39
Abbildung 2.3	Vereinfachtes Expositionsmodell für die Aufnahme von PER aus verschiedenen Quellen.....	40
Abbildung 2.4	Illustration der angenommenen Zusammenhangsstruktur in einem Regressionsmodell	41
Abbildung 2.5	Studiendesign der Hamburger Evaluationsstudie zur PER-Immission und zur Blutbelastung in der Nachbarschaft von Chemisch- Reinigungen.....	42
Abbildung 2.6	Illustration der zeitlichen Veränderung in der PER-Immission (Aktiv- und Passivmessungen), im Zeitbudget und in der PER- Blutbelastung bei Bewohner aus der Nachbarschaft von Chemischreinigungen.....	43
Abbildung 2.7	Streudiagramm der Zusammenhangsstruktur zwischen der PER- Aktiv- und Passivmessung, dem Zeitbudget und der Konzentration von PER im Blut (Gesamtauswertung, Konzentrationen in log. Einheiten).....	44
Abbildung 2.8	Streudiagramm der durch das Regressionsmodell vorhergesagten (Ordinate) und der gemessenen PER-Blutkonzentrationen (Abszisse) in logarithmierter Darstellung (Gesamtdatensatz).....	46
Abbildung 2.9	Relationale Struktur eines Expositionsmodells für die Exposition gegenüber Tetrachlorethylen.....	47
Abbildung 2.10	Angenommene Einflussfaktoren auf die äußere PER-Exposition und die PER-Blutbelastung	48
Abbildung 2.11	Verteilung der Wohnorte nach der Anzahl der Einwohner (Datengrundlage: BGS 1998) gewichtet nach Korrektur für Repräsentativität (Variable W98).....	50

Abbildung 2.12	Dichteverteilung (links) und kumulierte Verteilungsfunktion (rechts) der simulierten Außenluftbelastung.....	51
Abbildung 2.13	Zeitliche Entwicklung der gemessenen PER-Immission in einem industriellen und in einem Reinluftgebiet.....	52
Abbildung 2.14	Dichteverteilung der PER-Innenraum-Konzentration (479 Messungen) in logarithmischer Darstellung	55
Abbildung 2.15	PER-Innenraumluft-Konzentration: Verteilungsanpassung in @Risk	55
Abbildung 2.16	P-P-Plot (a, links) und Q-Q-Plot (b, rechts): Anpassung der loglogistischen Verteilung an die PER-Innenraum-Konzentrationen	56
Abbildung 2.17	PER-Innenraumluft-Konzentration in Abhängigkeit von der Jahreszeit der Messung (Mittelwert)	58
Abbildung 2.18	Gemessene PER-Konzentration in Personal-Samplern	62
Abbildung 2.19	PER-Innenraumluftkonzentration im Personal-Sampler in Abhängigkeit zum Besuch einer Chemischreinigung in den vergangenen 7 Tagen	63
Abbildung 2.20	Streudiagramm der relativen Zeitanteile von Aktivitäten bei Frauen (Alter 20-34, Datengrundlage NVS 1991) mit den Variablen Schlafen, Beruf, Wegezeiten, Hausarbeit, Einkaufen und Restzeit als Beispiel der Restriktion der Zeitanteile	68
Abbildung 2.21	Zusammenhangsstruktur der relativen Zeitanteile von Aktivitätsniveaus bei Männern und Frauen abgeleitet aus den Daten des BGS 1998	70
Abbildung 2.22	Alters- und Geschlechtsabhängigkeit der relativen Zeitanteile von Aktivitätsniveaus bei Männern und Frauen abgeleitet aus den Daten des BGS 1998	71
Abbildung 2.23	Empirische (links) und simulierte (rechts) Aufteilung eines Werktages bei 20-29 Männern nach Schlaf/Ruhen, Sitzen, leichte, mittelschwerer und anstrengender Aktivität [h/d] unter Anwendung von Mittelwerten und Streuungen von fünf Profilclustern als Streudiagramm dargestellt	73
Abbildung 2.24	Alters- und Geschlechtsabhängigkeit des Körpergewichts, der täglichen Energieaufnahme (7-Tage-Mittel) [kcal/d], der körpergewichtsbezogenen Energieaufnahme [kcal/(kg·d)] und der berechneten Tagesatmung [m³/d] für Männer (links) und Frauen (rechts) entsprechend der Daten aus NVS (1985-89).....	77
Abbildung 2.25	Körpergewichtsbezogene Fettaufnahme pro Tag. Durchschnitt aus dem 7-Tageprotokoll der NVS 1985-89.....	79
Abbildung 2.26	Verteilung der aus der Grobschätzung resultierenden, körpergewichtsbezogenen PER-Gesamtaufnahme [µg/(kg·d)] bei Männern im Alter zwischen 25-29 J.	82
Abbildung 2.27	Analyse der Sensitivität für die möglichen PER-Beiträge aus Nahrungsmitteln (Regressionsmodell) bei Männern im Alter zwischen 25-29 J.....	82
Abbildung 2.28	Struktur des bevölkerungsbezogenen PER-Expositionsmodells	90
Abbildung 2.29	Alters- und geschlechtsstratifizierte Betrachtung der Quantile der simulierten Expositionsprognose für PER im Blut	100
Abbildung 2.30	Streudiagramm und lineare Regressionsgleichung (mit Regressionskonstante) für den Zusammenhang zwischen	

	individuellen PER/Blutmessungen und modellbasierten Expositionsprognosen in logarithmischer Darstellung.....	105
Abbildung 2.31	Streudiagramm und lineare Regressionsgleichung (ohne Konstante) für den Zusammenhang zwischen individuellen PER/ Blutmessungen und modellbasierten Expositionsprognosen in logarithmischer Darstellung	106
Abbildung 3.1	Gemessene vs. modellierte tägliche Arsenausscheidung mit dem Urin für das exponierte und das Vergleichskollektiv.....	131
Abbildung 3.2	Gemessene vs. modellierte tägliche Quecksilberausscheidung mit dem Urin für das exponierte und das Vergleichskollektiv	137
Abbildung 3.3	Differenz zwischen gemessener und modellierter Quecksilberausscheidung mit dem Urin in Abhängigkeit vom Lebensalter	139
Abbildung 3.4	Amalgamwertigkeit in Abhängigkeit vom Lebensalter.....	139
Abbildung 3.5	Differenz zwischen gemessener und modellierter Quecksilberausscheidung mit dem Urin in Abhängigkeit von der Wertigkeit der Amalgamfüllungen	140
Abbildung 3.6	Differenz zwischen gemessener und modellierter Quecksilberausscheidung mit dem Urin in Abhängigkeit vom Lebensalter für die Teilgruppe der Nicht-Amalgamträger	141
Abbildung 4.1	Akteure und Prozessablauf in REACH	146
Abbildung 4.2	Stellung der Expositionsabschätzung in REACH.....	148
Abbildung 4.3	Der European Exposure Assessment Werkzeugkasten in EIS- ChemRisks	153

Verzeichnis der Tabellen

Tabelle 1.1	Personenbezogene Eingangsvariablen	10
Tabelle 1.2	Altersabhängige Bodenaufnahme.....	12
Tabelle 1.3	Mittlere tägliche resorbierte Cadmiumdosis aus beiden Unterszenarien nach Expositionspfaden und für die Gesamtexposition und oberer Bereich der Gesamtexposition	19
Tabelle 2.1	Produktion, Verwendung und Emission von Tetrachlorethylen	36
Tabelle 2.1	Produktion, Verwendung und Emission von Tetrachlorethylen	36
Tabelle 2.2	Beobachtete PER-Blutbelastung [$\mu\text{g/L}$] bei Messwiederholung 1-3	43
Tabelle 2.3	Regressionsmodell für die Prädiktion der PER-Blut-Konzentration (Gesamtdatensatz).....	45
Tabelle 2.4	Detaillierung des PER-Expositionsmodell.....	47
Tabelle 2.5	PER-Immission nach LAI (2000).....	49
Tabelle 2.6	Ausgangsdaten von Begerow et al. (1996) zur PER-Außenluftbelastung	50
Tabelle 2.7	Deskriptive Kennwerte der Simulation einer Gammaverteilung für die PER-Außenluft-Belastung entsprechend der Annahmen des LAI unter Berücksichtigung der Bevölkerungsverteilung nach Gemeindegröße und Prävalenz der Nähe zu Industrie und Gewerbestandorten.....	52
Tabelle 2.8	Übersicht über Datenquellen zur PER-Innenraumluft-Konzentration	53
Tabelle 2.9	Empirischen Quantile der Innenraumluftbelastung (Umwelt-Survey 1985/86)	57

Tabelle 2.10	Regressionskoeffizienten für die Zielgröße „PER-Konzentration der Innenraumluft“: Prädiktorvariable „Nähe zur Industrie 1 km“ und Prävalenzschätzung „Nähe zu Industrie und Gewerbeeinrichtungen“	59
Tabelle 2.11	Regressionskoeffizienten für die Zielgröße „PER-Konzentration in der Innenraumluft“: Prädiktorvariable „Nähe zur Industrie“, „Sommer“ und „Kategorie ländliche, vor- bzw. vorstädtische und städtische Umgebung“ und Prävalenzschätzung	59
Tabelle 2.12	PER-Immission: Simulationsrechnung für eine inhomogene Verteilung der PER-Innenraumluft-Konzentration [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	60
Tabelle 2.13	Deskriptive Kennwerte der gemessenen PER-Konzentration im Personal Sampler (N = 113), als Indikator der 7-Tage-Exposition, Daten: US 1990/92	62
Tabelle 2.14	Ergebnisse der Simulation der Personal-Sampler-Verteilung durch ein Regressionsmodell und gemessene Daten (N = 10000)	65
Tabelle 2.15	Ergebnisse der Simulation der Personal-Sampler-Verteilung: Spearman's Rangkorrelationen Zielgröße ~ Einflussgrößen (N = 10000)	65
Tabelle 2.16	Aufteilung eines Tages nach Aktivitätsniveaus und Aufenthalt im Innenraum und in der Außenluft (markiert: einfach erfassbare Daten)	66
Tabelle 2.17	Aufteilung eines Werktages bei 20 – 29-jährigen Männern nach Aktivitätsgraden; Daten BGS 1998, N = 489 (15 Fälle fehlen)	72
Tabelle 2.18	Durchschnittliche Aufenthaltszeiten in Innenräumen/im Freien nach Aktivität in Stunden/Tag (AUH 1995)	73
Tabelle 2.19	Atemraten nach ICRP (2003), ergänzt um den Steigerungsfaktor gegenüber der Ruheatmung / Daten für Erwachsene	74
Tabelle 2.20	Aktivitätsniveau, Atemraten [$\text{L}/(\text{min} \cdot \text{kg})$] und abgeleitete Steigerungsfaktoren: Daten aus Cal EPA (2000a)	75
Tabelle 2.21	Vereinfachte Berechnung der PER-Beiträge aus der Luft als @Risk-Modell	81
Tabelle 2.22	Grobschätzung des PER-Beitrages aus Lebensmitteln als Gleichverteilung in der bei ATSDR (1997) genannten Spannweite als @Risk-Modell	81
Tabelle 2.23	Personengebundene 7 Tage-Exposition PER [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] bei 25- bis 69-jährigen Personen aus den alten Bundesländern (N = 113, 33 Werte unter BG von $0,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$), Umwelt-Survey 1990/92	83
Tabelle 2.24	Ergebnisse der Simulation der äußeren Exposition [$\mu\text{g}/\text{d}$] unter Nutzung der empirischen Verteilung der PER-Konzentration aus 7-Tage-Passivsamplern, Aktivitätsmustern [h/d] und den Atemraten [m^3/h] des ICRP (2003), Iterationen = 10.000	84
Tabelle 2.25	Sensitivitätsbetrachtung über Rangkorrelation der Zeitanteilsvariablen zur Gesamt-PER-Aufnahme	85
Tabelle 2.26	Ansätze zur Berechnung des Körperfettanteils (Prozentangabe)	87
Tabelle 2.27	Zusammenstellung von ausgewählten statistischen Kennwerten der PER-Körperlast in publizierten Untersuchungen	89
Tabelle 2.28	Simulationsskript in Formeldarstellung	92
Tabelle 2.29	Quantile der simulierten Verteilungen (Gruppe der Frauen)	99
Tabelle 2.30	Alters- und geschlechtsstratifizierte Betrachtung der Quantile der Expositionsprognose für PER im Blut / Männer	100

Tabelle 2.31	Alters- und geschlechtsstratifizierte Betrachtung der Quantile der Expositionsprognose für PER im Blut / Frauen.....	100
Tabelle 2.32	Sensitivitätsbetrachtungen (Rangkorrelation Spearman's Rho) für die Zielgrößen PER-Aufnahme pro Tag, körpertgewichtsbezogene PER-Aufnahme pro Tag und PER/Blut nach Geschlecht.....	101
Tabelle 2.33	SPSS-Skript zur Prognose der individuellen PER-Körperlast.....	103
Tabelle 2.34	Modellprognose und empirische Daten zur PER-Blutbelastung im Vergleich über die drei Messwiederholungen	104
Tabelle 2.35	Modellprognose und empirische Daten: Regressionskoeffizienten im Vergleich über die drei Messwiederholungen	107
Tabelle 2.36	Modellprognose und empirische Daten: Sensitivitätsbetrachtungen mittels Rangkorrelation zwischen Einfluss- und Zielgrößen	108
Tabelle 3.1	Stichprobenumfänge des exponierten und Vergleichskollektivs.....	121
Tabelle 3.2	Altersstruktur der Probanden der Ausgangsstudie	121
Tabelle 3.3	Arsengehalte in μg im 24h-Urin des exponierten Kollektivs und des Vergleichskollektivs	121
Tabelle 3.4	Quecksilbergehalte in μg im 24h-Urin des exponierten Kollektivs und des Vergleichskollektivs	122
Tabelle 3.5	Modellkonstanten für das Arsenmodell	130
Tabelle 3.6	Modellkonstanten für das Quecksilber-Modell	136
Tabelle 3.7	Ergebnisse des Alternativmodells mit einer vom Kollektiv abhängigen Grundbelastung	137
Tabelle 3.8	Nicht-Amalgamträger mit gemessenen Quecksilber-Ausscheidungen, die um mehr als $0,5 \mu\text{g}/24\text{h}$ vom Modellwert abweichen.....	142
Tabelle 4.1	Übersicht über REACh-Implementation-Projects (RIP) mit Detaillierung für RIP 3	152

Vorwort zum Teil 3 - Szenarien

Der dritte Teil des Berichtes enthält die Vorstellung von drei szenarienbasierten Fallstudien und einen Ausblick auf die Anwendungsmöglichkeiten der Daten und der Methodik im Rahmen der neuen europäischen Chemikalienregulierung. Die Fallstudien wurden bereits zu einem frühen Zeitpunkt im zeitlichen Ablauf des Gesamtprojektes begonnen, teilweise mehrfach den sich ändernden Fragestellungen angepasst, erweitert und projektbegleitend fertig gestellt. Durch ihre „Vorreiter-Funktion“ im Projekt haben die Fallstudien ganz erheblich zur Klärung von methodischen Fragestellungen, zur Präzisierung der Datenanforderungen, zur Verbesserung der interaktiven Oberfläche der Datenbank RefXP, zur Klärung von Datenlücken und zur präzisierten Formulierung von weiterem Forschungs- und Entwicklungsbedarf beigetragen. Nicht in allen Bereichen wurden die optimistisch gesteckten Ziele der Fallstudien erreicht, die Begründungen für notwendige Einschränkungen werden jedoch transparent dargestellt.

Im Rahmen der Durchführung von szenarienbasierten Fallstudien sollte die im Bericht erläuterte Methodik der bevölkerungsorientierten Expositionsabschätzung in Beispielanwendungen erprobt und in ihrer Anwendbarkeit demonstriert werden. Ihre Durchführung hatte daher auch immer Rückwirkungen auf die gegebenen Empfehlungen und Verfahrensvorschläge. Die Inhalte und Darstellung des Berichts wurden deshalb deutlich durch die Fallstudien beeinflusst. Auf der anderen Seite wurden hierdurch auch Begrenzungen im Datenbestand, bzw. im jeweils aktuellen Stand der verfügbaren und im Projekt ausgewerteten Expositionsfaktoren, sowie in fachlichen und technischen Details der Expositionsmodellierung und ihrer Umsetzung in Software-Umgebungen identifiziert. Die aus den Fallstudien resultierenden Anforderungen an geeignete Daten und Referenzwerte haben somit die Auswahl und Prioritätensetzungen bei der statistischen Analyse und bei der nachfolgenden Dokumentation in der Datenbank RefXP direkt beeinflusst. Wie die Empfehlungen für neue Referenzwerte in einer konkreten Anwendung genutzt werden können und wie evtl. vorhandene Datenlücken oder unvollständige Informationen zu stoff-, verteilungs- oder personenbezogenen Datengrundlagen überwunden werden können, sollte ebenfalls durch die konkreten Anwendungen geklärt und so den Lesern dieses Berichtes vermittelt werden. Mögliche Anwendungsgrenzen der Projektergebnisse und der verteilungsbasierten Schätzmethodik sollten, auch zur Formulierung des weiteren Forschungsbedarfs, beleuchtet werden.

Die Auswahl der im Xprob-Projekt betrachteten Fallbeispiele erfolgte hinsichtlich

- der betrachteten Expositionspfade,
- der relevanten Expositionsfaktoren und

- der zur Verfügung stehenden schadstoffspezifischen Datengrundlagen.

Im ersten Szenario wird die mögliche Größenordnung der Gesamtexposition in einer Altlastensituation betrachtet, differenziert nach Exposition aus unterschiedlichen Quellen und nach Beiträgen aus den relevanten Aufnahmepfaden. Als Beispiel dient eine Bodenverunreinigung mit Cadmium. Die alters-, geschlechts-, wohnzeitbezogenen Einflüsse wurden herausgearbeitet, um die lebenszeitbezogene Exposition näherungsweise bestimmen zu können. Im Vordergrund steht dabei die Frage nach der Bewertung der kumulativen Exposition und der resultierenden Notwendigkeit von Maßnahmen. Mit der Diskussion von Modell- und Datenvarianten wurde die aus der Datenlage resultierende Unsicherheit ebenso transparent gemacht wie die Wirkung unterschiedlicher Annahmen.

Das zweite Szenario beschreibt exemplarisch die mögliche Belastung der Innenraumluft durch eine flüchtige Substanz, die resultierende Exposition unter gegebenen Expositionsannahmen und die zu erwartende Körperlast (Konzentration im Blut). Der Anwendungstest wurde für die Substanz Tetrachlorethylen (PER) durchgeführt, da für diesen in den 90er Jahren noch relevanten Stoff eine vergleichsweise gute empirische Datenlage bezogen auf Umweltdaten und Humanbiomonitoring-Daten vorliegt, die als Basis für die Evaluation der Prognosegüte von Expositionsmodellen genutzt werden konnte. Dieser Ansatz ermöglichte eine detaillierte Untersuchung und Diskussion der Abhängigkeiten von Variablen in den Expositionsannahmen für die Ebenen der Umgebungs- und der Innenraumluft sowie der relevanten Einflussgrößen wie Aufenthaltszeiten, Aktivität, Atemraten etc. in Relation zum Alter, zum Geschlecht und den hiermit verbundenen Differenzen in den anthropometrischen Basisdaten (Gewicht, Verteilung des Fettkompartiments). Die Probleme der erforderlichen Betrachtung dieser Einflussgrößen in der Modellierung und in der Datenlage werden ebenso wie mögliche Hilfsannahmen vorgestellt. Die Studie zeigt für das Innenraumszenario eine vergleichsweise hohe Prognosegüte.

Die dritte szenarienbasierte Fallstudie wurde im Rahmen einer Anwendungsstudie vom Niedersächsischen Landesgesundheitsamt in Hannover durchgeführt. Der Schwerpunkt lag speziell auf der Erprobung der Xprob-Empfehlungen bei der Durchführung von Expositionsabschätzungen und auf der hierbei erforderlichen Anforderung an und Nutzung von generierten Expositionsfaktoren. Für die Fragestellung lag ein empirischer Datensatz zu Biomonitoringdaten vor, der als Referenz für Vergleiche herangezogen werden konnte. In dieser Fallstudie konnten am Beispiel der Quecksilberexposition insbesondere methodische Begrenzungen herausgearbeitet werden.

In einem abschließenden Beitrag werden die Möglichkeiten des Einsatzes von verteilungsbasierten Expositionsmodellen zur Charakterisierung der zu erwartenden Exposition in der Bevölkerung, basierend auf den im Xprob-Projekt abgeleiteten Expositionsfaktoren, betrachtet. Die Anwendbarkeit der vorgeschla-

genen Methodik wird in Bezug auf die Chemikalienpolitik, insbesondere mit Blick auf die auszugestaltenden REACH-Vorgaben zur Ableitung von Expositionsprognosen im Zusammenhang mit Verwendungs- und Expositions-kategorien (VEK), näher untersucht. Die mögliche Stellung von bevölkerungsorientierten Expositionsabschätzungen in REACH für ausgewählte Bevölkerungsgruppen und Szenarien, in denen die Unterschiedlichkeit von Personen sowie ihrer Lebens-, Umwelt-, Konsum- und Verhaltensgewohnheiten berücksichtigt werden, wird vor dem Hintergrund der teilweise bislang nicht empirisch begründeten Default-Annahmen in den vorgesehenen Expositions-berechnungen kritisch betrachtet. Mit diesem Kapitel schließt sich dieser Berichtsteil 3.

1 Szenario „Leben auf einer Altlast“

Petra Okken, Odile Mekel

Für das Altlastenszenario wurde eine Expositionsabschätzung anhand eines realen, jedoch für Demonstrationszwecke abgewandelten Falles einer Bodenverunreinigung mit Cadmium in einer städtischen Wohnsiedlung in Nordrhein-Westfalen durchgeführt.

Ziel der Expositionsabschätzung ist es, die Exposition für die betroffene Bevölkerung bei der ermittelten lokalen Umweltbelastung zu schätzen. Dabei steht die Frage im Vordergrund, wie hoch die Exposition der betroffenen Bevölkerung beim weiteren Fortbestehen der Umweltbelastung sein wird. Hiermit soll ebenfalls die Frage beantwortet werden, ob aufgrund der geschätzten Exposition Maßnahmen zum Schutz der betroffenen Bevölkerung, z. B. Bodensanierung oder Verhaltenshinweise zur Verhinderung von Exposition notwendig sind.

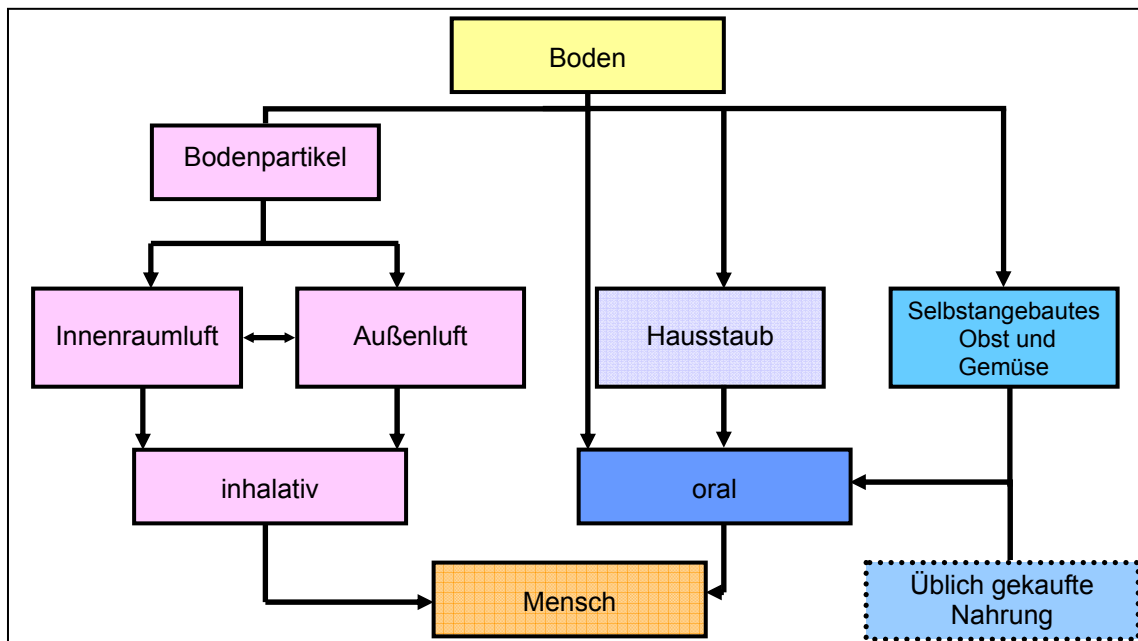
1.1 Definition des Szenarios

Anhand einer probabilistischen Expositionsmodellierung soll die Gesamtexposition gegenüber Cadmium über die Lebenszeit (0-75 Jahre) dargestellt werden. Als Unterszenarien werden „Wohnen“ und „Garten“ bearbeitet. Im Szenario „Wohnen“ wird der Verzehr von selbstangebautem Obst und Gemüse nicht berücksichtigt. Dieser wird im „Garten“-Szenario als zusätzlicher Expositionspfad aufgegriffen. Als relevante Expositionspfade wird in dieser Arbeit die orale und inhalative Cadmiumaufnahme angesehen. Der dermale Aufnahmepfad bleibt, unter der Annahme einer dermalen Resorptionsquote für Cadmium von 0% (Kalberlah 1999), unberücksichtigt.

Folgende Expositionspfade (vgl. Abbildung 1.1) werden in den Unterszenarien „Wohnen“ und „Garten“ betrachtet:

- Direkte orale Aufnahme von Cadmium durch verschluckte Boden- und Staubpartikel
- Aufnahme von Cadmium über den Verzehr von gekaufter Nahrung
- Cadmiumaufnahme über die Inhalation von Innenraum- und Außenluft
- Aufnahme von Cadmium über den Verzehr von selbstangebautem Obst und Gemüse (nur im Szenario „Garten“)

Abbildung 1.1 Darstellung der relevanten personenbezogenen Expositionspfade



1.2 Ausgangsbasis

1.2.1 Boden

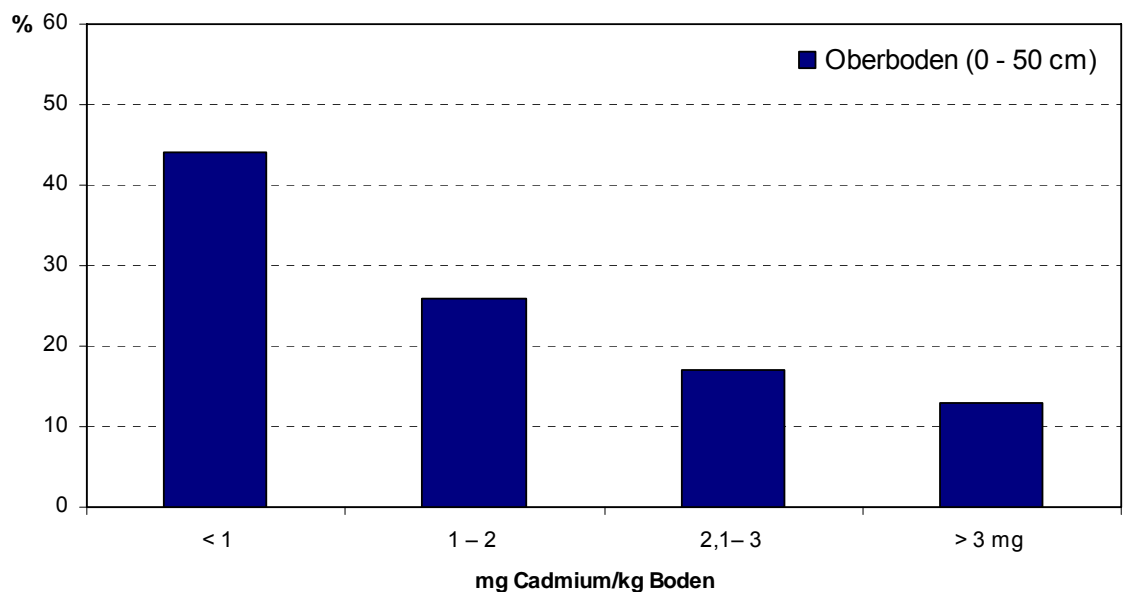
Das betroffene Wohngebiet wurde auf ehemaligen Rieselfeldern bzw. Klärschlammaufbringungsflächen errichtet. Nach Einstellung dieser Nutzung Anfang der 50er Jahre wurde die Fläche zunächst landwirtschaftlich genutzt, bis Mitte der 70er Jahre mit dem Bau von Ein- und Zweifamilienhäusern begonnen wurde. Insgesamt ist das Gebiet mit ca. 150 Häusern mit Nutz- und Ziergärten bebaut (Scholz et al. 1990). 1984 fielen bei routinemäßigen Bodenuntersuchungen erstmals erhöhte Schwermetallgehalte im Boden auf (Crößmann 1985). 1985 wurden die Untersuchungen zum Schwermetallgehalt erweitert und durch Pflanzenaufwuchsuntersuchungen ergänzt (Crößmann und Seifert 1986). Die Bodenuntersuchungen ergaben, dass von den Schwermetallen vor allem Cadmium in erhöhten Konzentrationen im Ober- und Unterboden vorlag.

Darüber hinaus konnten durch die Aufwuchsuntersuchungen Cadmiumanreicherungen in den essbaren Teilen von Pflanzen festgestellt werden.

1986 wurden aufgrund der gefundenen Bodenbelastung im Nutzgartenbereich von fünf Hausgärten weitere orientierende Bodenuntersuchungen durchgeführt. Die Probenahme erfolgte aus zwei Bodentiefen (i) 0-50 cm (Oberboden) und (ii) 50-100 cm (Unterboden). In vier der Hausgärten wurden Cadmiumanreicherungen festgestellt. Aufgrund dieser Untersuchungsergebnisse wurden weitere Bodenproben, insgesamt 566 Mischproben aus 6 Einstichen, genommen und

nach Unter- und Oberboden getrennt analysiert. Bei Hausgärten mit Nutzanbau wurde die Beprobung auf den Nutzgartenbereich beschränkt, bei den anderen Flächen wurde die gesamte unversiegelte Fläche beprobt. Neben den Schadstoffgehalten wurden Bodenparameter wie pH-Wert, Tongehalt, organischer Stoffgehalt, Nährstoffgehalt etc. erhoben. Die Cadmiumbelastungen im Oberboden lagen im Bereich von <1 mg/kg bis ca. 8 mg/kg Trockensubstanz (vgl. Abbildung 1.2).

Abbildung 1.2 Häufigkeitsverteilung der Cadmiumgehalte im Untersuchungsgebiet



(nach Crößmann und Seifert 1986)

1.2.2 Pflanzen

Cadmium wird aufgrund seiner guten Wasserlöslichkeit von Pflanzen hauptsächlich über die Wurzeln aufgenommen. Zur Ermittlung der Cadmiumkonzentration von Pflanzen, die auf dem Altlastengebiet gezogenen wurden, fanden 1986 systematische Pflanzenaufwuchsuntersuchungen statt. In sechs ausgewählten Gärten, deren Böden verschiedene Gehalte an Cadmium aufwiesen, wurden 12 verschiedene Gemüsearten gezogen. Insgesamt wurden 61 Proben analysiert.

Eine erste orientierende Bewertung der gemessenen Schadstoffkonzentration in Pflanzen kann durch einen Vergleich mit den EU-Höchstgehalten in Lebensmitteln geschehen (Anonym 2001). Diese Höchstgehalten lösen die ehemals vom BgVV aufgestellten sog. ZEBS-Werte bzw. Richtwerte für Schadstoffgehalte in Lebensmitteln ab (Schneider et al. 2004). Von den 61 analysierten Proben der Pflanzenaufwuchsuntersuchung wiesen 14 Proben eine Überschreitung des entsprechenden Höchstgehaltenes auf.

1.3 Dosis-Wirkungsabschätzung

Akute Toxizitätseffekte sind für Cadmium erst bei hohen Dosen zu erwarten, die i. d. R. im umweltbezogenen Gesundheitsschutz bzw. bei Bodenverunreinigungen nicht auftreten. Relevante toxische Wirkungen sind bei chronischer Exposition gegenüber relativ niedrigen Cadmiumdosen zu erwarten. Deshalb wird in vorliegender Modellrechnung die toxische Wirkung bei chronischer Cadmiumexposition über die Lebenszeit betrachtet. Gesundheitliche Effekte durch die chronische Aufnahme von Cadmium zeigen sich zuerst in der Nierenrinde. Maßgeblich für die „kritische Dosis“ ist die Wirkung des Schadstoffes in diesem Zielorgan. Eine geeignete human-toxikologische Kenngröße stellt die tolerierbare resorbierte Dosis (TRD) dar. TRD-Werte sind ein Bewertungsmaßstab für die tägliche Belastung, bei der bei lebenslanger Exposition auch bei empfindlichen Personen mit hinreichender Wahrscheinlichkeit nicht mit nachteiligen gesundheitlichen Effekten zu rechnen ist (Kalberlah et al. 1999). Für Cadmium kann ein TRD von 25 ng/kg·Tag als Bewertungsmaßstab für eine langfristige orale Exposition zugrunde gelegt werden (Kalberlah 1999).

1.4 Expositionsabschätzung

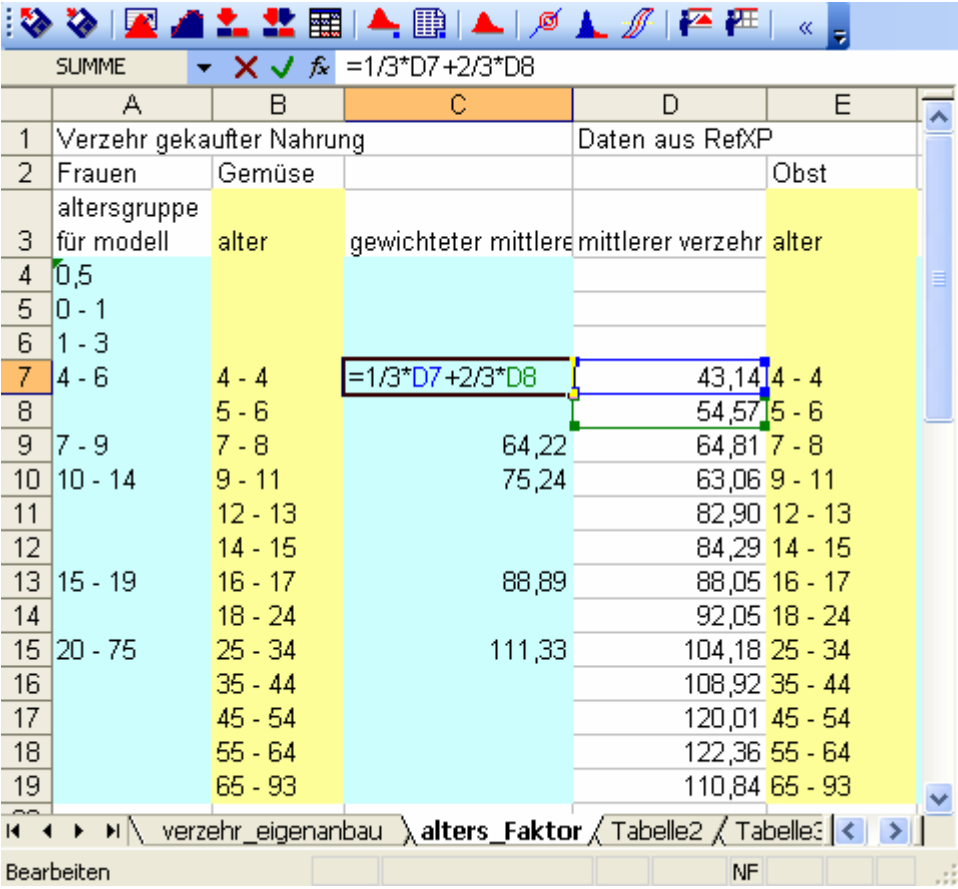
Vom Xprob-Projekt wird empfohlen, zunächst eine Punktschätzung des ungünstigen Falles zur Bestimmung der Notwendigkeit einer detaillierten und zeitaufwendigeren verteilungsbasierten Schätzung durchzuführen. Ziel der vorliegenden Modellanwendung ist, das Vorgehen einer probabilistischen Expositionsabschätzung zu demonstrieren und dabei auch die Xprob-Projektergebnisse zu erproben. Auf eine Punktschätzung wird an dieser Stelle verzichtet und auf eine ältere Punktschätzung (Mekel et al. 2004/1997) verwiesen, da die probabilistische Methodik hier im Mittelpunkt steht. Die Punktschätzung des ungünstigen Falles ergab für Expositions Betrachtung über Verzehr von Obst und Gemüse aus eigenem Garten eine Überschreitung der zugrunde gelegten duldbaren Aufnahmemenge und legt eine nähere Betrachtung in Form verteilungsbasierter Schätzung nahe.

Die Expositionen über die einzelnen Expositionspfade werden aus sieben Altersabschnitten zur Lebenszeitexposition zusammengesetzt. Dadurch können auch einzelne Lebensphasen, in denen die Exposition beispielsweise erhöht ist, identifiziert werden. Die Ableitung der betrachteten Altersgruppen erfolgte durch eine Abwägung zwischen sinnvoller Differenzierung und möglicher Vereinfachung des Modells. Das Modell sollte bezüglich der Altersgruppen also so zusammengefasst sein, dass durch eine weitere Aufteilung der Altersgruppen keine zusätzlichen Informationen gewonnen werden könnten. Darüber hinaus wurden die Altersgruppen so gewählt, dass sie inhaltlich sinnvolle Lebensabschnitte repräsentieren. Dabei erschien eine starke Differenzierung der Kinder- und Jugendjahre, wegen physiologischen und verhaltensbezogenen Veränderungen, sinnvoll. Daraus folgte eine Einteilung von < 1; 1 - 3; 4 - 6; 7 - 9; 10 - 14; 15 - 19 und 20 - 75 Jahre (vgl. Ihme 1994).

Da während des Xprob-Projekts z. T. feinere Altersstratifizierungen empfohlen wurden, müssen in der hier dargestellten Anwendungsstudie die vom Projekt abgeleiteten Verteilungsparameter an einigen Stellen wieder zusammengefasst werden.

Praktischer Hinweis zur Zusammenfassung von Verteilungen für größere Altersgruppen

Für die standardisierten Auswertungen im Xprob-Projekt wurde eine sehr feine Alterseinteilung verwandt. Die abgeleiteten Verteilungsparameter können für probabilistische Modelle, die größere Altersbereiche nutzen, zusammengefasst werden. Zur Bildung einer solchen zusammengesetzten Verteilung müssen die Verteilungen der feineren Altersgruppen gewichtet eingehen. Der Gewichtungsfaktor muss dabei für jede Altersgruppe gebildet werden, die in die größere Altersgruppe einfließt und den Jahresanteil der feineren Altersgruppe an der größeren Altersgruppe repräsentieren (vgl. nachfolgende Abbildung).



	A	B	C	D	E
1	Verzehr gekaufter Nahrung			Daten aus RefXP	
2	Frauen	Gemüse			Obst
3	altersgruppe für modell	alter	gewichteter mittlerer	mittlerer verzehr	alter
4	0,5				
5	0 - 1				
6	1 - 3				
7	4 - 6	4 - 4	=1/3*D7+2/3*D8	43,14	4 - 4
8		5 - 6		54,57	5 - 6
9	7 - 9	7 - 8	64,22	64,81	7 - 8
10	10 - 14	9 - 11	75,24	63,06	9 - 11
11		12 - 13		82,90	12 - 13
12		14 - 15		84,29	14 - 15
13	15 - 19	16 - 17	88,89	88,05	16 - 17
14		18 - 24		92,05	18 - 24
15	20 - 75	25 - 34	111,33	104,18	25 - 34
16		35 - 44		108,92	35 - 44
17		45 - 54		120,01	45 - 54
18		55 - 64		122,36	55 - 64
19		65 - 93		110,84	65 - 93

Zur Modellierung wurde das Softwarepaket @RISK 4.5 genutzt. Die Simulation wurde für beide Unterszenarien mit 20.000 Iterationen durchgeführt.

1.5 Stoffspezifische Parameter

Als stoffspezifische Parameter gehen in diese Anwendung Cadmiumkonzentrationen in den relevanten Kontaktmedien (Boden, Hausstaub, Außen- und Innenraumluft) und in der Nahrung, sowie Resorptionsraten für die orale und inhalative Aufnahme ein. Idealerweise stehen gemessene Konzentrationswerte zur Verfügung. Im vorliegenden Fall stehen solche Messwerte allerdings nur für Boden und selbstgezoogenes Gemüse zur Verfügung. Andere benötigte Konzentrationsangaben müssen deshalb aus der Literatur oder mit Hilfe von Annahmen abgeleitet werden.

1.5.1 Konzentration im Boden

Für die beiden Unterszenarien sind Konzentrationswerte in der oberen Bodenschicht relevant, da (i) durch die direkte orale Aufnahme nur Boden aus dieser Schicht verfügbar ist und (ii) der Transfer von Cadmium aus den Böden in Pflanzen größtenteils über die Wurzeln geschieht und diese Schicht durchwurzelt ist. Häufig werden in Expositionsabschätzungen von Bodenbelastungen Mittelwerte über alle gemessenen Schadstoffkonzentrationen eingesetzt. Im vorliegenden Fall erscheint ein solches Vorgehen nicht sinnvoll, da die Bodenkontamination über die Fläche nicht homogen ist (vgl. Abbildung 1.2). Detaillierte Informationen über die räumliche Verteilung der Schadstoffbelastung in den Böden liegen nicht vor. Für die Modellbildung wurde die Belastungssituation des Bodens durch eine kumulative Verteilung wiedergegeben, da nur Kategorialdaten zur Häufigkeit der Belastungshöhe der untersuchten Grundstücke vorlagen (vgl. Abbildung 1.2). Für verteilungsbasierte Modellierung mit Angaben der Eingangsverteilung als kumulierte Verteilung wird von den Software-Paketen ein Minimum- und Maximumwert verlangt. Dabei ergab sich bei dem vorliegenden Datenmaterial das Problem, dass beide nicht angegeben wurden. Deshalb wurde nach eigener Einschätzung auf die Verteilung mit einem Minimum von 0 mg/kg Boden und einem Maximum von 10 mg/kg Boden konstruiert. Diese letzte Annahme basiert auf einer Hypothese, dass der gemessene Maximalwert durch die Auswahl der Probeentnahmestellen zufällig zustande gekommen ist und höhere Schadstoffkonzentration an anderen Stellen der Siedlung vorhanden sein könnte. Dies wird unterstützt durch spätere Pflanzenaufwuchsuntersuchungen, die auf einem Grundstück jedoch mit anderer Probennahmetechnik einen Maximumwert von 10 mg/kg nachweisen konnten.

1.5.2 Konzentration im Hausstaub

Die Konzentration von Cadmium im Hausstaub wird besonders durch Einbringung von Bodenpartikeln in die Innenräume beeinflusst und ist damit von der Schadstoffkonzentration im Boden abhängig. Daten aus Messungen zur Hausstaubbelastung liegen für die betrachtete Wohnsiedlung nicht vor. Aufgrund dessen wird die Hausstaubbelastung durch Annahmen abgeleitet. Nach Ihme (1994) und Lin (1994) kann für normale bis moderate Cadmium-Bodenbelas-

tungen von einem Verhältnis von 4:1 ausgegangen werden. Zur Ermittlung der Hausstaubkonzentration wird bei der Modellierung die jeweilige Bodenkonzentration der verschiedenen Iterationen mit vier multipliziert.

1.5.3 Konzentration in der Außenluft

Cadmium kommt in der Luft an Schwebstaub gebunden vor. Luftbelastungen mit Cadmium wurden in der Wohnsiedlung nicht gemessen. In das Modell wird daher ein Jahresmittelwert für Cadmium aus der Literatur entnommen. Für Bielefeld wurde über das Jahr 1992 ein Jahresmittelwert von $1,1 \text{ ng/m}^3$ ermittelt (LIS 1994). In die Modellierung geht dieser Wert als mittlere Luftbelastung ein.

1.5.4 Konzentration in der Innenraumluf

Die Cadmiumkonzentration im Innenraum wird maßgeblich von der Außenluftkonzentration, durch Innenraumquellen und z. T. durch aufgewirbelte Bodenpartikel bedingt.

Für den Übergang von luftgetragenen Partikeln aus der Außenluft in die Innenraumluf wird von Liou et al. (1988) und Moschandreas et al. (1981) für alle partikelgebundenen Schadstoffe ein Faktor von 0,5 bis 1 genannt. Nach Überlegungen von Lin (1994) wird im vorliegenden Fall für Cadmium von dem Faktor 0,9 ausgegangen.

In der Innenraumluf wird ein geringer Teil der Konzentration durch aufgewirbelte Bodenpartikel verursacht. Nach Murphy und Yocom (1986) kann dieser Anteil mit $30 \text{ } \mu\text{g}$ Partikeln des lokalen Bodens pro m^3 Innenraumluf veranschlagt werden.

Innenraumquellen verursachen nach Moschandreas et al. (1981) eine zusätzliche Cadmiumbelastung der Innenraumluf von $0,15 \text{ ng/m}^3$ für Nichtraucherhaushalte und $1,79 \text{ ng/m}^3$ für Raucherhaushalte. Gewichtet über Raucher- und Nichtraucherhaushalte errechnet Lin (1994) eine durchschnittliche Konzentration von $1,25 \text{ ng/m}^3$, welcher hier eingesetzt wird.

Die Innenraumlufbelastung mit Cadmium errechnet sich für das vorliegende Fallbeispiel durch Addition der folgenden Komponenten:

- (i) Cadmiumbelastung der Außenluft multipliziert mit einem Faktor von 0,9
- (ii) Cadmiumbelastung des Hausstaubes multipliziert mit aufgewirbelten Partikeln
- (iii) Cadmiumbelastung durch Innenraumquellen.

1.5.5 Cadmium in der Nahrung

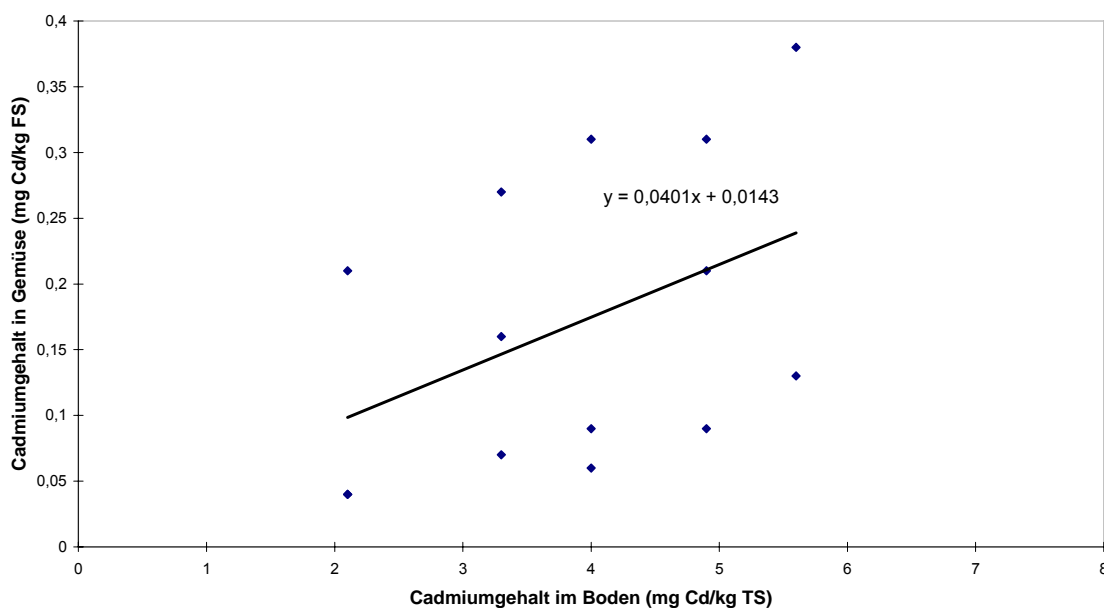
Die Cadmiumbelastung üblicher Nahrung kann aus Verzehrsuntersuchungen abgeleitet werden. Die von Becker et al. (1993) und Müller et al. (1993) durch Verzehrsstudien abgeleiteten Cadmiumkonzentrationen in der Nahrung lassen unter Berücksichtigung der Gesamtverzehrsmengen für Erwachsene eine

durchschnittliche Cadmiumkonzentration in der Nahrung von 3 - 5 µg/kg annehmen. Für die probabilistische Modellierung wurde mit diesen Werten eine Gleichverteilung gebildet, da keine weiteren Informationen zur Verteilungsfunktion vorlagen.

1.5.6 Pflanzen aus Kleingärten

Aus den Aufwuchsuntersuchungen stehen die Cadmiumkonzentrationen der Pflanzen und der Böden, auf denen sie gezogen wurden, zur Verfügung. Eine Regressionsanalyse dieser Daten zeigte einen positiven Zusammenhang zwischen der Boden- und Pflanzenkonzentration. Für einzelne Produktgruppen (Wurzel-, Blatt- und Kohl-, Fruchtgemüse und Kartoffeln) ergaben sich unterschiedlich starke Relationen. Außerdem zeigte, wahrscheinlich durch eine heterogene Cadmiumbelastung des Bodens, die Einbeziehung des höchstbelasteten Versuchsgartens (7,6 mg/kg Boden) ein vom Trend abweichendes Konzentrationsmuster. Deshalb wurden die Messwerte dieses Gartens von der weiteren Analyse ausgeschlossen. Abbildung 1.3 verdeutlicht am Beispiel Wurzelgemüse dieses Vorgehen.

Abbildung 1.3 Cadmiumgehalte in Wurzelgemüse aus 5 Hausgärten



Für die relevanten Gemüsegruppen und Obst wurden folgende Regressionsgleichungen in der Modellierung verwandt:

Wurzelgemüse	$Y = 0,040x + 0,0143$
Blatt- und Kohlgemüse	$Y = 0,048x - 0,0704$
Fruchtgemüse	$Y = 0,0083x - 0,0011$
Kartoffeln	$Y = 0,0044x - 0,0023$

Aufgrund fehlender Cadmiummessungen für einige Gemüsearten und Obst im Rahmen der Pflanzenaufwuchsuntersuchungen konnten für Hülsenfrüchte und Obst keine Regressionsgleichungen abgeleitet werden.

Die Regressionsgleichungen wurden zur probabilistischen Modellierung herangezogen. Bei jeder Iteration wird so der entsprechende Bodenkonzentrationswert in die Gleichung eingesetzt, um die Abhängigkeit der Pflanzen-Konzentrationen von der Bodenbelastung zu berücksichtigen. Auf eine probabilistische Modellierung der Übergangsfaktoren wurde aus Zeitgründen verzichtet. Für Hülsenfrüchte wurde die Konzentration in der üblich gekauften Nahrung und für Obst wurden die Werte für Fruchtgemüse genutzt.

1.5.7 Resorptionsraten

Für die orale Aufnahme wird von einer Resorptionsrate von 5 % ausgegangen (WHO 1996). Nach Ihme (1994) ist von einer inhalativen Resorptionsrate von 20% auszugehen.

1.6 Personenbezogene Parameter

Die Angaben zu den personenbezogenen Eingangsvariablen wurden, soweit vorhanden, aus den im Xprob-Projekt abgeleiteten Empfehlungen übernommen. Dabei ist zu beachten, dass

- nicht für alle Eingangsgrößen Empfehlungen abgeleitet werden konnten wegen mangelnder repräsentativer Grundlagen;
- für einige Eingangsgrößen die Daten- und Literaturanalyse zum Zeitpunkt der Modellbildung noch nicht vollständig abgeschlossen war und Empfehlungen noch nicht vorlagen.

Deshalb musste an mancher Stelle teilweise oder auch ganz auf andere Datengrundlagen zurückgegriffen werden. Nachfolgende Tabelle 1.1 führt die einzelnen personenbezogenen Eingangsparameter auf und verweist auf ihren Ursprung.

Tabelle 1.1 Personenbezogene Eingangsvariablen

Eingangsvariable	Quelle
Anthropometrische Parameter	
Körpergewicht	Xprob-Verteilungsanpassung mit den Daten des Bundes-Gesundheitssurveys 1998 und aus dem Datenpool der Universität Potsdam
Aufenthalts- u. Aktivitätsparameter	
Aufenthaltszeit außen	Xprob-Verteilungsanpassung mit den Daten des Umwelt-Survey 1990/92; Kinder < 5 Jahre: US-EPA (2002)
Aufenthaltszeit innen	errechnet sich aus: "24 Stunden" – „Aufenthaltszeit außen“
tägliche Schlafzeit	Xprob-Verteilungsanpassung mit den Daten des Umwelt-Survey 1990/92; Kinder/Jugendliche bis 20 Jahre: US EPA (2002)
tägliche Aktivzeit (innen und außen)	errechnet sich aus: „24 Stunden“–„Schlafzeit“
tägliche Aktivzeit innen	errechnet sich aus: "Aufenthaltszeit innen" – „Schlafzeit“
Ingestionsraten zu Boden u. Hausstaub	
Ingestionsrate Boden pro Tag	Bothe et al. 2004
Ingestionsrate Staub pro Tag	Bothe et al. 2004
Inhalationsparameter	
Atemvolumen pro Tag	AUH 1995 (die Xprob-Empfehlung stand noch nicht zur Verfügung)
Verzehrmengen	
Verzehr Gesamtnahrung	Xprob-Verteilungsanpassung mit den Daten der Nationalen Verzehrsstudie (Anders 1990)
Verzehr Gesamtnahrung im Unterszenario „Gartennutzung“	errechnet sich Gesamtverzehr aus „selbstangebaute Vegetabilien“ und „Verzehr Gesamtnahrung“
Verzehr selbstangebautes Wurzelgemüse Verzehr selbstangebautes Blatt- und Kohlgemüse Verzehr selbstangebautes Fruchtgemüse Verzehr selbstangebaute Hülsenfrüchte Verzehr selbstangebaute Kartoffeln Verzehr selbstangebautes Obst	Xprob-Verteilungsanpassung mit Daten aus Verzehrsstudie in Kleingärten im Rhein-Ruhrgebiet, (LUA-NRW 2001)
Gesamtverzehr selbstangebauter Vegetabilien	errechnet sich aus allen Kategorien „selbstangebauter Vegetabilien“ und „selbstangebautes Obst“

1.6.1 Körpergewicht

Im Xprob-Projekt wurden Körpergewichtsdaten für Männer und Frauen aus verschiedenen Studien verteilungsbasiert ausgewertet. Gemäß den Empfehlungen zu diesen anthropometrischen Datengrundlagen (vgl. Teil 2, Kapitel 4) wurden für die Modellierung die Auswertungsergebnisse des Bundes-Gesundheitssurveys 1998 herangezogen. Der Bundes-Gesundheitssurvey stellt allerdings keine Daten für Kinder zur Verfügung. Nur die Datenquelle der Universität Potsdam stellt Körpergewichtsdaten für Kinder aller Altersgruppen bereit. Deshalb gehen für Kinder kumulative Verteilungsangaben ein.

1.6.2 Aufenthalts- und Aktivitätsparameter

Cadmium liegt in Boden und Hausstaub in unterschiedlichen Konzentrationen vor. Des Weiteren ist die Konzentration von Cadmium in Innenraumlufte von der Konzentration in der Außenluft verschieden. Um den verschiedenen Konzentrationen in den Kompartimenten den relevanten „Expositionszeiten“ zuzuordnen, war es nötig, im Modell zwischen der im Innenraum und im Freien verbrachten Zeitanteile zu unterscheiden.

Dem Projekt standen aus der standardisierten Auswertung Aufenthaltszeiten im Freien von Kindern im Alter von 5 - 15 Jahre und Erwachsenen im Alter von 23 - 79 Jahre für Sommer- und Wintermonate basierend auf der Erhebung des Umwelt-Surveys 1990/92 zur Verfügung. Verteilungen lagen altersstratifiziert und für beide Geschlechter getrennt vor. Die Verteilungen für Sommer und Winter wurden im Modell zusammengefasst. Für 16- bis 22-jährige wurde mit Hilfe der zur Verfügung stehenden Informationen der unteren und oberen Altersgruppen interpoliert. Für Kinder unter 5 Jahren wurden wegen mangelnder Daten für Deutschland Angaben aus einer amerikanischen Zusammenstellung für Expositionsparameter für Kinder genutzt (US EPA 2002).

Zur Schlafzeit konnten die vom Xprob-Projekt angepasste Verteilung für Erwachsenen im Alter von 17 - 79 Jahren herangezogen werden. Diese liegen getrennt nach Wochentagen und Wochenenden vor. Die Informationen zum Schlafverhalten an Wochentagen bzw. Wochenenden wurden im Modell nach Zeitanteilen gewichtet aggregiert. Für Kinder und Jugendliche (< 20 Jahre) sind keine repräsentativen Angaben für Deutschland vorhanden. Deshalb wurden diese Informationen zum Schlafverhalten aus der Literatur entnommen (US EPA 2002).

Zur Zeitverwendung im Innenraum liegen Daten und Verteilungen für die deutsche Bevölkerung vor. Die Verknüpfung von Zeitangaben in probabilistischen Modellen kann dazu führen, dass es in der Simulation vereinzelt zur Überschreitung der Tageszeit (> 24 Stunden) kommt. Deshalb muss das Modell über logische Regel und einschränkende Bedingungen hierfür angepasst werden. Folgende Vorgehensweise wurde angewandt: Im Modell wurde die Innen-

raum verbrachte Zeit aus der Schlafzeit und der im Freien verbrachten Zeit errechnet. Dabei wurde die Schlafzeit als Ausgangspunkt genommen, weil nach Sichtung der verschiedenen Erhebungsinstrumente der Ausgangsdaten diese Angabe als am zuverlässigsten eingestuft wurde. Zur Schlafzeit addierte sich in einem zweiten Schritt die Außenzeit. Ergab sich in der Simulation eine Überschreitung von 24 Std., so wurde die Gesamtzeit zu Lasten der im Freien verbrachten Zeit auf 24 Std. normiert. Die Differenz zwischen der Schlafzeit und der im Freien verbrachten Zeitanteile zu 24 Std. wurde als im Innenraum aktiv verbrachte Zeit angesehen. Die aktiv in Innenräumen verbrachte Zeit wurde zur Quantifizierung der oralen Aufnahme von Staubpartikeln genutzt.

1.6.3 Aufnahme von Boden

Die direkte, orale Aufnahme von Boden stellt bei der Betrachtung von Schadstoffbelastungen des Bodens häufig einen bedeutungsvollen Expositionspfad dar. Insbesondere Kinder stellen bedingt durch ihr Verhalten wie häufige Hand- zu Mundkontakte oder Mundkontakte mit verunreinigten Gegenständen für Schadstoffbelastungen aus Bodenquellen eine Risikogruppe dar.

Für die Ableitung von Empfehlungen zur Bodeningestion wurde im Projekt die zur Verfügung stehende internationale Literatur detailliert analysiert (vgl. Teil 2, Kapitel 7). Erst während der laufenden Analyse wurden Daten zur Bodeningestion für Kinder der deutschen Bevölkerung veröffentlicht (Bothe 2004). Die in verschiedenen Studien abgeleiteten Empfehlungen sind aufgrund der verwandten, unterschiedlichen Methodiken und den der Arbeiten zugrunde liegenden Annahmen schwer vergleichbar. Da die Literaturanalyse zum Zeitpunkt der Modellbildung nicht abgeschlossen war, wurden in der vorliegenden Szenarienbetrachtung die aktuellen Daten aus Deutschland (Bothe 2004) genutzt. Diese Arbeit wurde vor dem Hintergrund der Expositionsabschätzung im Strahlenschutz durchgeführt und bezog 22 Probanden im Alter zwischen <1 und 12 Jahren ein. Im Ergebnis wurden Punktschätzer der Bodeningestion auf täglicher Basis gebildet (vgl. Tabelle 1.2).

Tabelle 1.2 Altersabhängige Bodenaufnahme

Alter (Jahre)	n	Mittelwert (mg/d)	Bereich (mg/d)
<1	5	22	12 – 33
1 – 2	5	100	56 – 142
2 – 7	6	35	11 – 81
7 - 12	6	57	34 – 91

nach Bothe (2004)

In verteilungsbasierten Expositionsabschätzungen können diese Punktschätzer (i) als solche übernommen werden oder (ii) mittels einfacher Annahmen in eine Verteilungsform übertragen werden. Da neben einzelnen Punktwerten auch In-

formationen über den Wertebereich vorliegen, bietet sich die Verwendung einer Dreiecksverteilung an. Zur Verteilungskonstruktion in @RISK wird das Minimum, das Maximum und der Mode genutzt. Der Modus ist dabei definiert als der „*most likely*“. Im der vorliegenden Anwendung wird als „*most likely*“ der Mittelwert eingesetzt, da keine Angaben zum Modalwert vorliegen. Studien zur Ableitung von Bodeningestionswerten weisen auf eine linkssteile Verteilungsform von Bodenaufnahmewerten hin. Durch die Nutzung des Mittelwertes anstatt des Modus hat der Expositionspfad „Bodenaufnahme“ in diesem Szenario einen in der Tendenz konservativen Charakter. Die Altersgruppen für die Bothe eine Ingestionsrate ableitet, stimmen nicht mit den Altergruppen des Modells überein. Allerdings sind von Bothe (2004) die Ingestionsraten der einzelnen Probanden und ihr Alter veröffentlicht. Zur Verteilungskonstruktion für die Modellierung wurden deshalb die Ingestionswerte der Altersgruppe genutzt, die am besten mit den Altersgruppen des Modells übereinstimmen.

Auch Erwachsenen nehmen kleine Mengen Boden auf. Die Datenbasis ist aber sehr schmal. Zwei US-amerikanische Studien mit sehr kleinen Stichproben und einigen methodischen Schwächen liefern Schätzwerte für den Mittelwert, die zwischen 10 und 37 mg/Tag variieren (Calabrese et al. 1990 und Stanek et al. 1997). Konkrete Aussagen über die Bodeningestion von Erwachsenen können hieraus schwerlich abgeleitet werden. Einigkeit in der internationalen Literatur besteht allerdings darüber, dass die Aufnahmeraten im Erwachsenenalter stark zurückgehen. Durch die Einbeziehung von Expertenmeinungen wird in der vorliegenden Anwendung die Verteilung zur Ingestionsrate der 7- bis 12-jährigen Kindern um 50 % verringert. Damit ergibt sich für Jugendliche von 15 – 19 Jahren und für Erwachsene im Alter von 20 - 75 Jahren eine mittlere Bodeningestion von ca. 30 mg/Tag.

Für die Aufnahme von Hausstaub wurden die gleichen Werte angenommen.

1.6.4 Nahrungsverzehr

1.6.4.1 Üblich gekaufte Nahrung

Als Verzehrsmengen für üblich gekaufte Nahrung wurden vom Xprob-Projekt die Daten der Nationalen Verzehrsstudie (Anders et al. 1990) standardisiert ausgewertet. Die NVS stellt die aktuellste und für Deutschland repräsentative Datengrundlage dar, die dem Projekt zur Auswertung vorlag. Die NVS betrachtet allerdings nur Personen ab dem 4. Lebensjahr. Für jüngere Altersgruppen wurden die Verzehrsmengen aus der Literatur entnommen (Steffens 1996; Ministerie WVC & LVN 1992).

Praktischer Hinweis zur Übernahme der vom Projekt abgeleiteten Verteilungen in @RISK

In den Studien, deren Daten zur Ableitung der Verteilungen herangezogen wurden, werden Informationen abgefragt, die für einzelne Befragungsteilnehmer nicht zutreffen. Bei Befragungen zu Aufenthaltszeiten oder -orten werden beispielsweise nicht alle Probanden sich an den abgefragten Orten (z. B. in Autos) aufgehalten haben, oder einige abgefragte Aktivitäten sind für einen Teil der Befragten nicht relevant. Für das Beispiel der Aufenthaltszeit im Auto beträgt der Wert für diese Personen demgemäß 0 Stunden.

Durch die Aufsummierung solcher Antworten entsteht in den Daten eine so genannte „Null-Masse“. Diese stellt die Eintrittswahrscheinlichkeit der Ausprägung „0“ dar. Aus methodischen Gründen konnten die Null-Massen und die sonstigen Angaben nicht zusammen an eine Verteilung angepasst werden. In der Datenbank sind deshalb die Null-Masse und die Verteilungsparameter separat aufgeführt. Für die probabilistische Modellierung in beispielsweise @RISK muss die Information zur Null-Masse wieder mit den Verteilungsparametern zusammengeführt werden.

Dazu wird in einem ersten Schritt die Null-Masse in @RISK mit Hilfe einer Binominal-Verteilung dargestellt. @RISK benötigt dafür verschiedenen Angaben. Zur Darstellung der Punkt-Masse auf Null müssen die Parameter der Binominal-Verteilung „n“ und „p“ wie folgt verändert werden:

$$n = 1$$

p = 1 - Null-Masse

In einem zweiten Schritt werden die Verteilungsparameter für die entsprechende Verteilung in @RISK angegeben. Die nötigen Verteilungsparameter werden aus der Datenbank RefXP entnommen.

In einem dritten Schritt werden beiden Verteilungen multipliziert.

In @RISK-Notation für eine Lognormal-Verteilung mit einem Mittelwert von 0,12 und einer Standardabweichung von 1,07 und einer Null-Masse von 0,27 sieht das wie folgt aus (s. auch Beispiel im nachfolgenden Excel-Spreadsheet):

RiskBinomial(1;(1-0.27))*RiskLognorm2(0.12;1.07)

Microsoft Excel - Kopie von 050512time outdoor.xls

DATEI Bearbeiten Ansicht Einfügen Format Extras Daten Fenster ? @RISK Adgbe PDF

SUMME \times \checkmark fx =RiskBinomial(1;(1-U15))*RiskLognorm2(S15;T15)

	A	C	P	S	T	U	V
1	daten aus datenbank rexp (winter)						
2	time outdoors	männer					
3							
4	altersgruppe für modell	h/d	verteilung				
5	0,5	1.00					
6	0 - 1	1.00					
7	1 - 3	2.00					
8							
9				par1	par2	punktmasse auf 0	
10	4 - 6	2.38	Weibull	2.43	2.69	0.00	
11	7 - 9	2.68	Weibull	2.43	2.69	0.00	
12			Weibull	2.44	3.02	0.00	
13	10 - 14	2.68					
14	15 - 19	2.33		mu	sigma	punktmasse auf 0	
15	20 - 75	=RiskBinomial(1;(1-U15))*RiskLognorm2(S15;T15)		0.12	1.07	0.27	
16		1.84	Lognormal	0.11	1.00	0.30	
17		2.19	Lognormal	0.32	0.96	0.27	
18		2.17	Lognormal	0.33	0.95	0.19	
19							

1\ t_outdoor 2\ t_outdoors_male 3\ t_outdoors_female /

Bearbeiten NF

1.6.4.2 Selbstangebautes Obst und Gemüse

Um die Verzehrsanteile an selbstangebauten Vegetabilen und Obst für das Unterszenario „Garten“ zu bestimmen, wurde eine Verzehrsstudie unter Kleingärtnern im Rhein-Ruhrgebiet (LUA NRW 2001) mit der im Projekt entwickelten Methodik zu Verteilungsanpassung standardisiert ausgewertet. Wir gehen bei der Anwendung dieser Daten im vorliegenden Szenario dabei von der Annahme aus, dass Personen mit einem Nutzgarten am Haus sich bzgl. Anbau und Verzehr selbstangebauter Produkte aus dem Garten ähnlich wie Kleingärtnern verhalten.

Die Daten der „Kleingärtnerstudie“ wurden durch siebentägige Verzehrsprotokollierungen von 264 Kleingärtnern in vier Erhebungsphasen (eine je Jahreszeit) erhoben. Die Verzehrsdaten wurden für folgende Obst- und Gemüsegruppen zusammengefasst ausgewertet: Obst, Kohl- und Blattgemüse, Hülsenfrüchte, Wurzelgemüse, Fruchtgemüse und Kartoffeln.

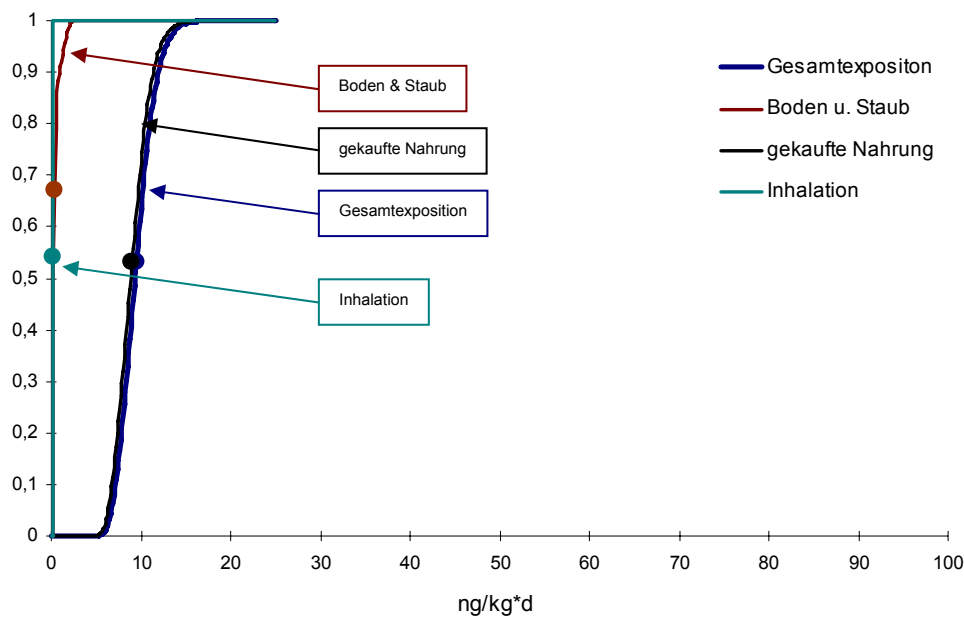
Für Personen unter 16 Jahren konnten aufgrund der Unterrepräsentation in der Stichprobe keine Aussagen zu Verzehrsmengen an selbstangebauten Gemüse und Obst getroffen werden. Zur Überbrückung dieser Datenlücke wurden Hilfsannahmen basierend auf den Daten der NVS abgeleitet und angewandt. Die Auswertung der NVS zeigte erwartungsgemäß unterschiedliche Verzehrsmengen an Obst und Gemüse von Kindern und Jugendliche im Vergleich zu denen von Erwachsenen. Dieser Unterschied im Verzehrverhalten wurde berechnet und als Anpassungsfaktor verwandt um die Informationen zum Erwachsenenverzehr aus der „Kleingärtnerstudie“ auf Kinder und Jugendliche zu beziehen. Dem Modell wurde also die Annahme zu Grunde gelegt, dass sich Kinder und Jugendliche, die selbstangebautes Obst und Gemüse verzehren, in ihrem Verzehrverhalten von Obst und Gemüse relativ zur Stichprobe der NVS verhalten.

Für Kinder unter vier Jahren konnte dieser Faktor, aufgrund fehlender Daten, nicht berechnet werden. Deshalb wurde angenommen, dass Kinder unter vier Jahren kein selbstangebautes Obst und Gemüse verzehren. Um den Obst und Gemüseverzehr im Unterszenario „Garten“ nicht zu überschätzen, wurden die Verzehrsanteile „aus eigenem Anbau“ bei der Berechnung der Verzehrsanteile „üblich verzehrter Nahrung“ berücksichtigt.

1.7 Ergebnisse

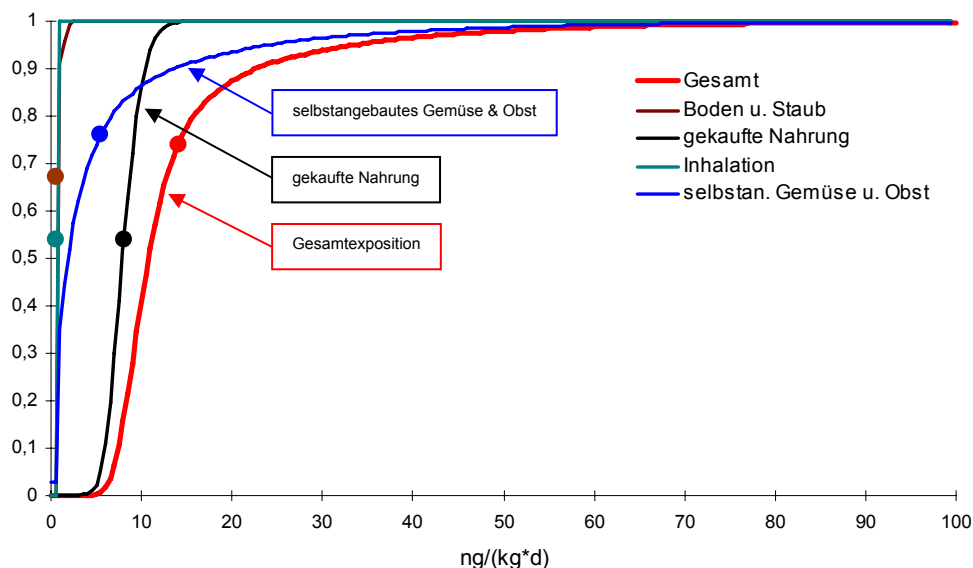
Der Vergleich der Ergebnisse der Modellierung der Unterszenarien zeigt, dass die Cadmiumbelastung der Bevölkerung maßgeblich durch die Nahrungsaufnahme bestimmt wird. Durchschnittlich über die Lebenszeit betrachtet nimmt die Bevölkerung unter den beschriebenen Bedingungen im Szenario „Wohnen“ durch gekaufte Nahrung durchschnittlich ca. 95 % der Gesamtbelastung an Cadmium auf. Die verbleibenden 5 % verteilen sich über die Aufnahme von Boden und Staub sowie über Inhalation (vgl. Abbildung 1.4).

Abbildung 1.4 Kumulative Verteilungen der resorbierten Cadmiumdosen für das Unterszenario „Wohnen“ pro Expositionspfad und für die Gesamtexposition



In den Abbildungen ist der Mittelwert der Verteilung durch einen Punkt markiert.

Abbildung 1.5 Verteilung der resorbierten Cadmiumdosis für das Unterszenario „Garten“ je Expositionspfad und Gesamtexposition



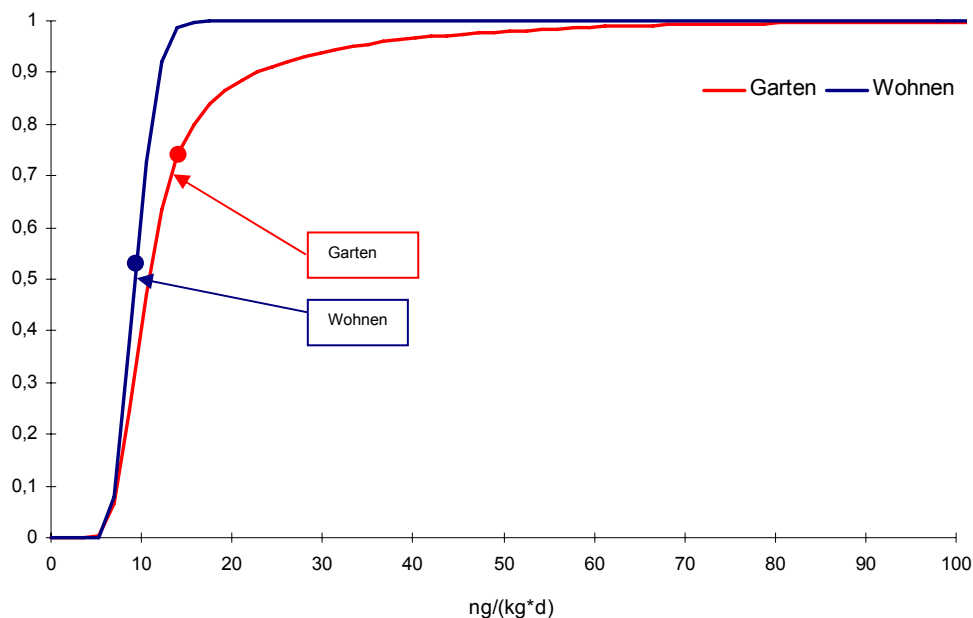
Auch im Szenario „Garten“ wird die Cadmiumbelastung im Mittel zu ca. 57 % durch den Verzehr gekaufter Nahrung bestimmt. Ein weiterer relevanter Ein-

tragspfad im Modell „Garten“ ist der Verzehr selbstangebauter Vegetabilien und Obst. Dadurch kommt ca. 38 % der resorbierten Cadmiumdosis zustande (vgl. Abbildung 1.5).

Der Betrag durch Inhalation und Boden- und Staubaufnahme zur Gesamtcadmiumbelastung ist in beiden Untermodellen sehr gering.

Die über die Lebenszeit durchschnittliche resorbierte Cadmiumdosis ist für Personen im Unterszenario „Garten“ durchschnittlich ca. 30 % höher als für Personen, die kein selbstangebautes Gemüse und Obst verzehren: 14,1 ng/kg am Tag (Garten) und 9,5 ng/kg am Tag (Wohnen) (vgl. Abbildung 1.6). Für das 95 %-Quantil wurde im Untermodell „Garten“ eine resorbierte Cadmiumdosis von 33,5 ng/kg am Tag und für „Wohnen“ 12,8 ng/kg am Tag berechnet.

Abbildung 1.6 Verteilung der resorbierten Cadmiumdosis für die Unterszenarien „Garten“ und „Wohnen“



1.8 Risikocharakterisierung

Als human-toxikologische Kenngröße kann nach Kalberlah (1999) ein TRD-Wert von 25 ng/kg am Tag herangezogen werden (vgl. Abschnitt 1.3). Dieser Wert bezieht sich ausschließlich auf den oralen Aufnahmepfad. Da die Modellierungsergebnisse zeigen, dass nur eine sehr geringe Cadmiummenge durch den inhalativen Pfad aufgenommen, erscheint die Verwendung dieses Kennwertes als adäquat (vgl. Tabelle 1.3).

Tabelle 1.3 Mittlere tägliche resorbierte Cadmiumdosis aus beiden Unterszenarien nach Expositionspfaden und für die Gesamtexposition und oberer Bereich der Gesamtexposition

<i>mittlere resorbierte Cadmiumdosis (ng/(kg·d))</i>		
	Unterszenario	
	Garten	Wohnen
Boden- und Hausstaubaufnahme	0,38	0,38
gekaufte Nahrung	8,04	8,99
selbstangebautes Gemüse und Obst	5,53	-
Totale orale Exposition	13,95	9,37
Inhalation	0,10	0,10
Gesamtexposition	14,06	9,47

<i>Obere Bereiche der resorbierten Cadmiumdosis (ng/(kg·d))</i>			
Gesamtexposition	95%	33,52	12,77
Gesamtexposition	99%	64,00	14,30

Die Modellierungsergebnisse des Unterszenarios „Wohnen“ bewegen sich deutlich unter diesem Kennwert (vgl. Tabelle 1.3).

Im Untermodell „Garten“ übersteigen die Simulationsergebnisse bzgl. des 95 %- und 99 %-Quantils den TRD-Wert (vgl. Tabelle 1.3). Ab dem 92 %-Quantil übersteigen die Ergebnisse für die resorbierte Gesamtcadmiumexposition den Wert von ≥ 25 ng/(kg·Tag). Für ca. 8 % der betrachteten Bevölkerung kann also über die Lebenszeit ein gesundheitliches Risiko nicht ausgeschlossen werden, wenn sie zusätzlich zu gekaufter Nahrung auch auf der Altlast gezogenes Gemüse und Obst verzehren.

1.9 Unsicherheitsanalyse „Boden- und Hausstaubaufnahme“

Bei Modellbildungen werden aufgrund fehlender Informationen häufig Annahmen über Verteilungsformen oder -werte getroffen. Der Einfluss der unterschiedlichen Annahmen auf das Endergebnis kann mit einfachen Analysen überprüft werden. Um das Vorgehen beispielhaft zu erläutern, wurden die Boden- und Hausstaubaufnahmeraten (vgl. 1.6.3) näher betrachtet. Bei der Modellierung wurde auf Basis der Daten einer Studie (Bothe 2004) eine Dreiecksverteilungsform (Triangular-Verteilung) angenommen. Die kleine Stichprobe lässt keine zuverlässige Verteilungsanpassung zu. Bei wenig Datenpunkte kann eine Dreiecksverteilung bzw. Gleichverteilung als grobe Annäherung der wahren Verteilung verwendet werden. Um den Einfluss der Verteilungswahl auf das Modellierungsergebnis zu bestimmen, werden verschiedene Annahmen zur Verteilungsform bzw. zum Wertebereich zugrunde gelegt. Folgende Zahlen gelten für die Altersgruppe der 1-3-Jährigen:

1. Dreiecksverteilung (*Variante Triangular*):

Diese Verteilung wurde mit einer minimalen Ingestionsrate von 56 mg Boden/Tag, einem Maximum von 142 mg/Tag und einem Mode von 100 mg/Tag gebildet.

2. Dreiecksverteilung Obergrenze (*Variante Triang. Oberg.*)

Von Bothe (2004) wurden weitere Schätzwerte, die mit größeren Unsicherheiten behaftet sind und als „Obergrenze“ der Schätzwerte bezeichnet wird, bereitgestellt. Für diese Verteilung wurde ein Wertebereich für die Bodenaufnahme von 71 - 149 mg/Tag eingesetzt.

3. Dreiecksverteilung unter Berücksichtigung einer mittleren Gesamtunsicherheit von 50 % (*Variante Trapez*)

Für diese Variante wurde von einer Gesamtunsicherheit in den abgeleiteten Werten von 50% ausgegangen (Bothe 2004). Der Wertebereich erstreckt sich hier von 28 - 213 mg/Tag. Die Unsicherheit wurde auch auf den Mittelwertschätzer bezogen, so dass auch für diesen Wert ein Wertebereich (50 - 150 mg/Tag) entstand.

4. geschnittene Dreiecksverteilung (*Variante Triag. trunc.*)

Für diese Verteilung wurde ebenfalls die Dreiecksverteilung angenommen, jedoch mit der Annahme dass das empirische Minimum das 5 %-Quantil und das empirische Maximum das 95 %-Quantil der wahren Verteilung entspricht.

5. Gleichverteilung (*Variante Uniform*)

Eine Gleichverteilung wird durch die Angabe des Minimums und des Maximums charakterisiert. Sie findet häufig Verwendung, wenn außer einem Wertebereich keine weiteren Informationen, beispielsweise zum Mittelwert, verfügbar sind. Die Annahme einer Gleichverteilung führt in der Regel in probabilistischen Simulationen zur Annahme höherer Werte.

6. Punktschätzer (*Variante RME*)

Als Punktschätzer für den ungünstigen Fall wurde das Maximum der von Bothe (2004) abgeleiteten Werte (142 mg/Tag) genutzt.

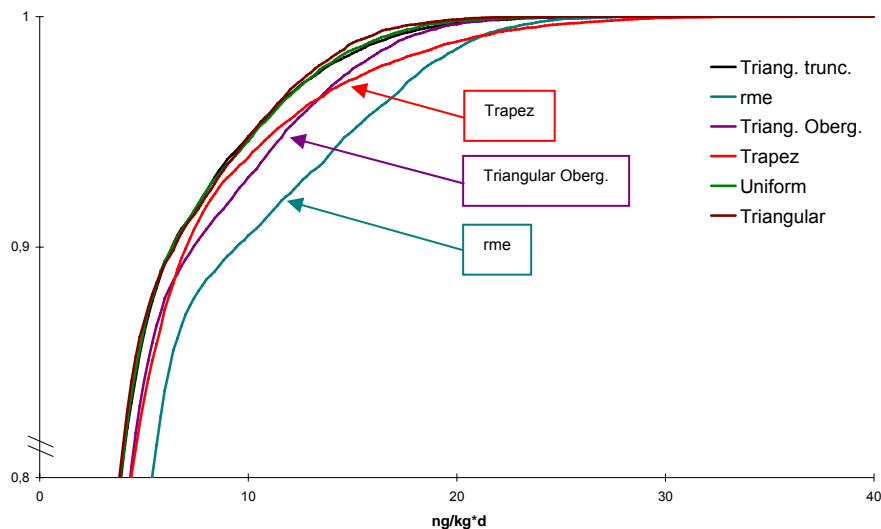
Jeder dieser Verteilungen wurde in das Modell integriert und die resorbierte Cadmiumdosis für das Unterszenario „Wohnen“ für Kinder im Alter von 1 - 3 Jahren und über die Lebenszeit berechnet. Die Altersgruppe 1 - 3 Jahre wurde ausgewählt, weil in dieser Altersgruppe die höchsten Bodeningestionsraten im Modell angenommen wurden.

Ein Vergleich der sechs so erzielten Ergebnisse für die resorbierte Cadmiumdosis, die ausschließlich über den Pfad Boden- und Staubingestion aufgenommen wurde, zeigt im unteren und mittleren Quantilbereich keine nennenswerten Unterschiede. Ab dem 80 %-Quantil sind Abweichungen festzustellen. Die Variante mit der Annahme eines ungünstigen Falles (RME) zur Boden- und Haus-

staubaufnahme führt insbesondere ab dem 90 %-Quantil zu einer höheren resorbierten Cadmiumdosis. Die Variante „Trapez“ führt zu den höchsten resorbierten Cadmiumdosen (ca. ab dem 99 %-Quantil) (vgl. Abbildung 1.7).

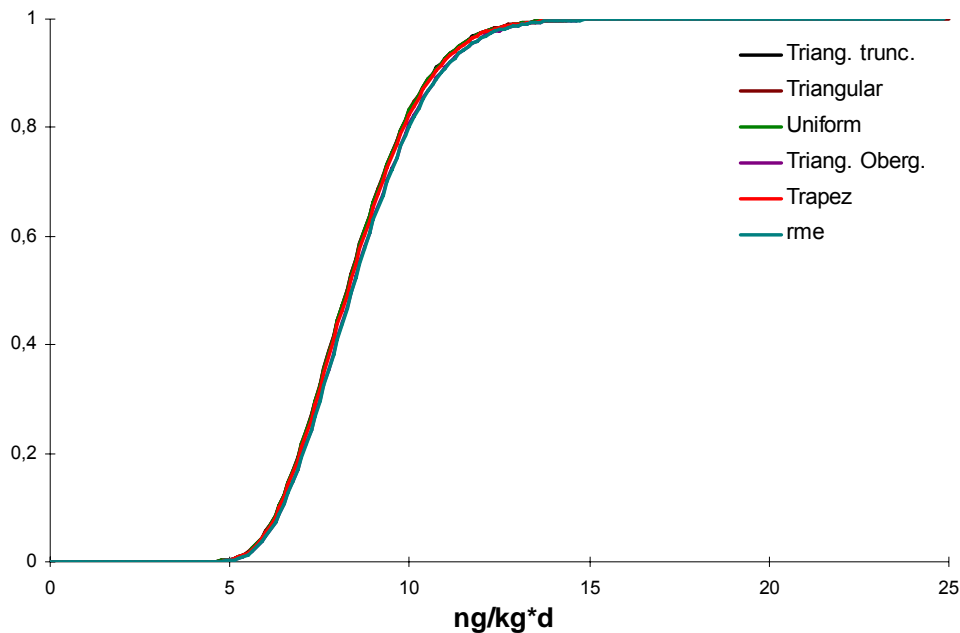
Die Unsicherheit, die mit der Wahl der geeigneten Verteilungsform einhergeht zeigt sich demnach im dem oberen Bereich der Verteilung. Nehmen wir das 95 %-Quantil als Beispiel, so sind diese Ergebnisse so zu interpretieren, dass 5 % der betroffenen Kinder im Alter von 1 - 3 Jahren unter der im Szenario Wohnen beschriebenen Bedingungen einer Cadmiumaufnahme ausgesetzt werden, die zwischen 10 und 17 (ng Cd/(kg·d)) liegt.

Abbildung 1.7 Einfluss verschiedener Verteilungsannahmen zur Boden- und Hausstaubaufnahme auf die resorbierte Cadmiumdosis durch Boden- und Hausstaubaufnahme für Kinder von 1-3 Jahren (Darstellung ab 80 %-Quantil)



Die Beiträge zur Gesamtdosis sind allerdings bei Betrachtung der Altersgruppe 1 - 3 Jahre bei allen Verteilungsannahmen sehr gering, weil der Expositionspfad „Boden und Staubaufnahme“ durch den Aufnahmepfad „Nahrungsverzehr“ überlagert wird. Der Einfluss einer möglichen Fehlspezifikation zu den Verteilungsannahmen und der eingesetzten Parameter für die Boden- und Hausstaubaufnahme kann sich insgesamt also nur deutlich niedriger auf das Gesamtergebnis auswirken, als eine Fehlspezifikation des Haupteintragspfades (Nahrungsaufnahme) sich auswirken würde. Dieser Effekt verstärkt sich bei der Betrachtung der Beiträge über die Lebenszeit (vgl. Abbildung 1.8).

Abbildung 1.8 Verteilung der resorbierten Gesamt-Cadmiumdosis im Unterszenario „Wohnen“ über die Lebenszeit



1.10 Fazit

Dieses Szenario hatte zum Ziel die im Projekt abgeleiteten Empfehlungen auf ihre Anwendbarkeit hin zu erproben sowie die Methodik der verteilungsbasierten Modellierung exemplarisch darzustellen. Wie die Empfehlungen in einer konkreten Anwendung genutzt werden können und wie evtl. vorhandene Datenlücken oder unvollständige Informationen zu stoff- oder personenbezogenen Datengrundlagen überwunden werden können, sollte ebenfalls durch die konkreten Anwendungen beispielhaft erläutert werden.

Nicht alle Empfehlungen zu den Expositionsfaktoren standen zu der Zeit der Modellierung zur Verfügung. Deshalb wurden hierfür Alternativen eingesetzt, damit trotzdem die Vorgehensweise erläutert werden konnte. Dies traf auf die Empfehlung zur oralen Aufnahme von Boden und Staub und zum Atemvolumen zu.

Datenbank

Die Nutzung der im Projekt entwickelten Datenbanksoftware und -inhalt (RefXP) für die konkrete Anwendung hat zu Verbesserungsvorschlägen bzgl. Darstellung der Datenbankoberfläche insbesondere im Bezug auf die Nutzerfreundlichkeit geführt.

Insbesondere wurde deutlich, dass die Informationen zu den Verteilungen nicht ohne weitere Anpassung aus dem Ausgabeformat der Datenbank RefXP für

Simulationen in Softwarepaketen z. B. @RISK übertragbar sind. Daraufhin wurde eine zusätzliche Schnittstelle entwickelt und in die Datenbank implementiert.

Vom Projekt werden Verteilungen für eine möglichst fein gegliederte Altersstratifizierung und nach Geschlechtern differenziert in der Datenbank RefXP bereitgestellt. Damit ist es möglich auf detaillierter Ebene Expositionen abzuschätzen. Jedoch müssen diese für bestimmte Modellierungen zu nach einheitlichen Kriterien zu breiteren Altersklassen zusammengeführt werden.

Datenlücken

Außerdem wurde bei der konkreten Anwendung sichtbar, für welche Altersgruppen Informationen nicht durch das Projekt bereitgestellt wurden bzw. wegen fehlender Datengrundlagen nicht bereitgestellt werden konnten.

Beispielsweise ist für in Deutschland lebende Erwachsene die Schlafzeit aus dem Bundes-Gesundheitssurvey 1998 bekannt. Für Kinder und Jugendlichen fehlen solche Angaben. Zur Quantifizierung der Schlafzeit musste für die Modellierung auf internationale Studien bzw. Kompendien zu Expositionsparametern zurückgegriffen werden.

Weitere Datenlücken:

Das Ernährungs- und Verzehrverhalten von Kindern jünger als 4 Jahre ist derzeit nicht ausreichend bekannt. Mit Bereitstellung neuerer Studien (z. B. DONALD/VELS) werden hier mittelfristig Daten zur Verfügung stehen können, die für standardisierte Auswertung und Bereitstellung in der Datenbank herangezogen werden können.

Des Weiteren liegen nur regional durchgeführten Studien zum Verzehr selbst-angebautem Gemüse und Obst von Kleingärtnern vor. Derzeit ist nichts bekannt über eine mögliche Über- oder Unterschätzung bei Übertragung dieser Daten auf Hausgartenbesitzer.

Für die orale Aufnahme von Boden und Staub bleibt weiterhin noch immer Forschungsbedarf. Die relativ neue Studie aus Deutschland liefert zwar Erkenntnisse über die Größenordnung der Bodenaufnahme, stellt jedoch aufgrund der kleinen Stichprobe keine belastbare Datengrundlagen dar.

Die exemplarischen Anwendung der vorgeschlagenen Expositionsfaktoren auf dieses Szenarios demonstriert das Vorgehen bei der verteilungsbasierten Expositionsmodellierung und zeigt ebenfalls Möglichkeiten der Überwindung von Datenlücken und die Ableitung von damit verbundenen Annahmen auf. Dies führt in der Konsequenz allerdings zu Unsicherheit, die in der Größenordnung nur schwer eingeschätzt werden kann.

Für einige Expositionsfaktoren stehen Daten zur Verfügung, die vermutlich stark korreliert sind, aber nicht gepaart ausgewertet werden konnte, da die einzelnen Informationen nicht aus einer Datenerhebung verfügbar waren. Bei Aufenthalts-

zeiten wäre beispielsweise wünschenswert, Daten pro Person für die Aufenthaltszeiten im Freien und in Innenräumen bzw. der Aktivzeit und der Schlafzeit aus einer Datenquelle auswerten zu können. Aus einem solchen Datensatz könnte ein Tagesablauf unkompliziert modelliert werden. Außerdem wären diese Schätzungen zu Aufenthaltszeiten bzw. Aktivitätsmustern realitätsnäher, da keine unsinnigen Kombinationen (Tageszeiten > 24 Std.) zu Stande kommen könnten. In der Anwendung „Altlasten“ mussten zur Vermeidung solcher Kombinationen Rückrechnung (z. B. Adjustierung auf 24 Stunden) durchgeführt werden.

Handlungsanweisungen

Außerdem liefert die Anwendung konkrete Hinweise zum allgemeinen Vorgehen einer Expositionsabschätzung für die Praxis. Insbesondere konnten Handlungsanweisungen aufgestellt werden für:

- Umgang mit Punktmassen auf Null
- Umgang mit der Zusammenführung von Verteilungen in größere Altersgruppen.

Beispielhaft wurde eine Unsicherheitsanalyse zur Wirkung unterschiedlicher Verteilungsannahmen, die aus Literaturangaben abgeleitet wurden, durchgeführt. Die Wahl der Verteilungsform zeigt einen vergleichsweise geringen Einfluss. Sensitivitätsanalysen hätten einzelne wichtige Faktoren ausweisen können. Diese Analysen konnten leider aufgrund von Kapazitätsproblemen nicht durchgeführt werden.

Die Anforderungen an die Modellierungsdokumentation in den Software-Umgebungen Excel und @RISK sind nicht leicht einzuhalten (Henrion 2004). Die Realisierung in einem @RISK-Modell sind in Berichtsform nicht unmittelbar umzusetzen. Nachvollziehbare und prüfbare Dokumentation erfordert verstärkte Planung der Datenblattgestaltung am Anfang der Modellierung.

Anhang Expositions-Gleichungen für das Altlastenszenario

ORALE EXPOSITION

Bodeningestion

$$E_s = \frac{IR_s * C_s * ConvS * EF * \frac{t_o}{t_{aw}}}{BW} \quad [Gl. 1]$$

Staubingestion

$$E_d = \frac{IR_s * C_d * ConvD * \frac{t_{iaw}}{t_{aw}}}{BW} \quad [Gl. 2]$$

Üblich gekaufte Nahrung

$$E_f = \frac{IR_f * C_f}{BW} \quad [Gl. 3]$$

Selbstangebautes Obst und Gemüse als Nahrung

$$E_{ffv} = \sum_{j=1}^6 \frac{(IR_{ffv})_j * (C_{ffv})_j}{BW} \quad [Gl. 4]$$

Üblich gekaufte Nahrung bei Selbstversorgung mit Obst und Gemüse

$$E_{f,b} = \frac{(IR_f - IR_{ffv,b}) * C_f}{BW} \quad [Gl. 5]$$

Gesamtexposition über Nahrung bei Selbstversorgung mit Vegetabilien

$$E_{ftot,ffv} = E_{f,b} + E_{ffv} \quad [Gl. 6]$$

Gesamte orale Exposition

ohne Selbstversorgung mit Vegetabilien (Unterszenario "Wohnen")

$$E_o = E_s + E_d + E_f \quad [Gl. 7]$$

bei Selbstversorgung mit Vegetabilien (Unterszenario "Garten")

$$E_o = E_s + E_d + E_{ftot,ffv} \quad [Gl. 8]$$

Lebenslange durchschnittliche orale Exposition

$$E_{ladd,o} = \sum_{k=1}^7 \left(\frac{ED_k}{LT} * E_{o,k} \right) \quad [\text{Gl. 9}]$$

INHALATIVE EXPOSITION**Außenluft**

$$E_{oa} = \frac{IR_a * C_{oa} * \frac{t_o}{24}}{BW} \quad [\text{Gl. 10}]$$

Innenraumluf

$$E_{ia} = \frac{IR_a * C_{ia} * \frac{t_i}{24}}{BW} \quad [\text{Gl. 11}]$$

Gesamte inhalative Exposition

$$E_i = E_{oa} + E_{ia} \quad [\text{Gl. 12}]$$

Lebenslang durchschnittliche inhalative Exposition

$$E_{ladd,i} = \sum_{k=1}^7 \left(\frac{ED_k}{LT} * E_{i,k} \right) \quad [\text{Gl. 13}]$$

GESAMTE LEBENSLANG DURCHSCHNITTliche INNERE EXPOSITION

$$E_{ladd,total} = (E_{ladd,o} * r_o) + (E_{ladd,i} * r_i) \quad [\text{Gl. 14}]$$

Erläuterungen:

BW	Körpergewicht	[kg]
C _d	Konzentration im Hausstaub	[µg/kg]
C _f	Konzentration in üblich gekaufter Nahrung	[ng/kg]
C _{ffvj}	Konzentration in der Vegetabliengruppe j	[ng/kg]
C _{ia}	Konzentration in der Innenraumluf	[ng/m ³]
C _{oa}	Konzentration in der Außenluft	[ng/m ³]
ConvD	Umrechnungsfaktor für die Gewichtseinheiten Staub	0.001 [-]
ConvS	Umrechnungsfaktor für die Gewichtseinheiten Boden	0.001 [-]
C _s	Konzentration im Boden	[µg/kg]

E_d	Exposition durch Ingestion von Hausstaubpartikeln	[ng/(kg·d)]
ED_k	Expositionsdauer; Anzahl Jahre in der Altersgruppe k	[a]
EF	Anteil des Jahres, in dem Bodeningestion vornehmlich stattfindet	[-]
E_f	Exposition durch die üblich gekaufte Nahrung	[ng/(kg·d)]
$E_{f,b}$	Exposition durch den Verzehr von üblich gekaufter Nahrung für Selbstversorger	[ng/(kg·d)]
E_{ffv}	Exposition durch den Verzehr von selbstangebauten Vegetabilien	[ng/(kg·d)]
$E_{ftot,ffv}$	Exposition durch den Verzehr von üblich gekaufter Nahrung und selbstangebauten Vegetabilien	[ng/(kg·d)]
E_i	gesamte tägliche inhalative Exposition	[ng/(kg·d)]
$E_{i,k}$	gesamte tägliche inhalative Exposition für Altersgruppe k	[ng/(kg·d)]
E_{ia}	tägliche Exposition durch Inhalation der Innenraumluft	[ng/(kg·d)]
$E_{ladd,i}$	lebenslang durchschnittliche tägliche inhalative Exposition	[ng/(kg·d)]
$E_{ladd,o}$	lebenslang durchschnittliche tägliche orale Exposition	[ng/(kg·d)]
$E_{ladd,total}$	gesamte lebenslang durchschnittliche tägliche innere Exposition	[ng/(kg·d)]
E_o	gesamte tägliche orale Exposition	[ng/(kg·d)]
$E_{o,k}$	gesamte tägliche orale Exposition für Altersgruppe k	[ng/(kg·d)]
E_{oa}	tägliche Exposition durch Inhalation der Außenluft	[ng/(kg·d)]
E_s	Exposition durch Ingestion von Bodenpartikeln	[ng/(kg·d)]
IR_a	Atemrate	[m ³ /d]
IR_f	tägliche Nahrungsaufnahme	[kg/d]
$IR_{ffv,b}$	täglicher Verzehr üblich gekaufter Vegetabilien	[kg/d]
$IR_{ffv,j}$	täglicher Verzehr Vegetabiliengruppe j	[kg/d]
IR_s	Aufnahmerate Boden- und Staub	[mg/(t _{aw} ·d)]
j	Vegetabiliengruppe: Blatt- und Kohlgemüse; Hülsenfrüchte, Fruchtgemüse; Obst; Kartoffeln; Wurzelgemüse	
k	Altersgruppe: 0-<1 J.; 1-3 J.; 4-6 J.; 7-9 J.; 10-14 J.; 15-19 J.; 20-75 J.	
LT	Lebenszeit	[75 a]
r_i	inhalativer Resorptionsfaktor	[-]
r_o	oraler Resorptionsfaktor	[-]
t_{aw}	tägliche Aktivzeit (24 h – Schlafdauer (t_s))	[h/d]
t_i	Aufenthaltszeit in Innenräumen	[h/d]
t_{iaw}	Zeit, die in Innenräumen aktiv zugebracht wird	[h/d]
t_o	Aufenthaltszeit im Freien	[h/d]
t_s	Schlafdauer	[h/d]

Literatur Kapitel 1

1. Anders HJ, Matiaske B, Stübner S, Kemeter D (1990): Repräsentative Verzehrsstudie in der Bundesrepublik Deutschland inklusive West-Berlin – Messung ernährungsphysiologischer Verhaltensweisen, Schlussbericht. Nürnberg: GfK-Marktforschung 1990.
2. Anonym (2001): Verordnung (EG) Nr. 466/2001 der Kommission vom 8. März 2001 zur Festsetzung der Höchstgehalte für bestimmte Kontaminanten in Lebensmitteln. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 77 vom 16.03.2001, S. 1-13
3. Becker K, Brause C, Nöllke P, et al. (1993): Blei, Cadmium, Quecksilber, Arsen, Nitrit, und Nitrat in Nahrungsduplikaten. In.: Anke M et al. (ed.): Mengen- und Spurenelemente. 13. Arbeitstagung, 9. und 10. November 1993. Verlag MTV Hammer-schmidt, Gersdorf: 125-133.
4. Bothe M (2004): Quantifizierung der Ingestion von Boden durch Kinder. Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, BMU-2004-647, BMU, Bonn.
5. Calabrese EJ, Stanek EJ, Gilbert CE, Barnes RM (1990): Preliminary adult soil ingestion estimates: Results of a pilot study. *Regulatory Toxicology and Pharmacology* 12: 88-95.
6. Crößmann G (1985): Bodenuntersuchungen Siedlung Hagenkamp. Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt (LUFA), Münster.
7. Crößmann G (1987): Cadmiumgehalte in Gemüsepflanzen aus Hausgärten in Bielefeld-Hagenkamp – Bewertung und Folgerungen - Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt (LUFA), Münster.
8. Crößmann G, Seifert D (1986): Zur Belastung der Böden und Nahrungspflanzen im Bereich der Siedlung Bielefeld-Hagenkamp. Gutachterliche Stellungnahme im Auftrag der Stadt Bielefeld. Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt (LUFA), Münster.
9. Henrion M (2004): What's wrong with spreadsheets and how to fix them with Analytica. Zugriff 28.11.2005, www.lumina.com.
10. Ihme W (1994): Allgemeines Modell zur Quantifizierung der Exposition des Menschen durch kontaminierte Böden. Dissertation. Verlag Shaker, Aachen.
11. Kalberlah F (1999): Cadmium und Verbindungen. In: Eikmann T, Heinrich U, Heinzow B, Konietzka R (1999): Gefährdungsabschätzung von Umweltschadstoffen. Ergänzbare Handbuch toxikologischer Basisdaten und ihre Bewertung. Grundwerk 2/1999, Erich-Schmidt Verlag: Berlin.
12. Kalberlah F, Hassauer M, Schneider K, Konietzka R (1999): Methodische Beschreibung des F+E-Vorhabens Basisdaten Toxikologie für umweltrelevante Stoffe zur Gefahrenbeurteilung bei Altlasten. In: Eikmann T, Heinrich U, Heinzow B, Konietzka R (1999): Gefährdungsabschätzung von Umweltschadstoffen. Ergänzbare Handbuch toxikologischer Basisdaten und ihre Bewertung. Grundwerk 2/1999, Erich-Schmidt Verlag: Berlin.

13. Lin Y (1994): Simulationsmodell zur Cadmium-Exposition durch Altlasten vor und nach der Sanierung. Fortschritt-Berichte, VDI-Reihe Nr. 130, VDI-Verlag, Düsseldorf.
14. Liroy PL, Waldman JM, Greenberg A (1988): The Total Human Environmental Exposure Study (THEES) to Benzo(a)pyrene: Comparison of the inhalation and food Pathways. Arch. Environ. Health 43: 304-313.
15. LIS / Landesanstalt für Immissionsschutz Nordrhein-Westfalen (LIS) (1994): LIMES-Jahresbericht 1992. Diskontinuierliche Luftqualitätsmessungen. Reihe B – Schwebstaub und Inhaltsstoffe, Kohlenwasserstoffe. Landesanstalt für Immissionsschutz Nordrhein-Westfalen, Essen.
16. LUA NRW / Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen (Hrsg.) (2001): Verzehrstudie in Kleingärten im Rhein-Ruhr-Gebiet. Materialien zur Altlastensanierung und zum Bodenschutz. LUA NRW Essen.
17. Mekel O, Nolte E, Fehr R (2004/1997): Quantitative Risikoabschätzung, Möglichkeiten und Grenzen ihres Einsatzes für umweltbezogenen Gesundheitsschutz in Nordrhein-Westfalen, Bericht 2, Exemplarische QRA: Wohnen auf einer Altlast. Materialien Umwelt und Gesundheit 52, lögd, Bielefeld
18. Ministerie WVC & LVN / Ministerie van Welzijn, Volksgezondheid en Cultuur en Ministerie van Landbouw, Visserij en Natuurbeheer (1992): Zo eet Nederland. Resultaten van de Voedselconsumptiepeiling 1992. Voorlichtingsbureau voor de Voeding, Den Haag (1993) ISBN 90-5177-027-8
19. Moschandreas DJ, Zabransky J, Pelton DJ (1981): Comparison of indoor and outdoor air quality. Electric Power Research Institute, Palo Alto, CA. EPR EA 1733. Research Project 1309 (zitiert nach Lin 1994)
20. Müller M, Anke M, Thiel C, Hartmann E (1993): Zur Cadmiumaufnahme Erwachsener in den neuen Bundesländern. Ernährungs-Umschau 40: 240-243.
21. Murphy BL, Yacom JF (1986): Migration factors for particulates entering the indoor environment. 79th Annual meeting of the Air Pollution Control Association June 22 – 27, 1986 Minneapolis, Minnesota (zitiert nach Ihme 1994).
22. Schneider K, Schuhmacher-Wolz U, Oltmanns J, Clauberg M. (2004): Verfahren zur Standardsetzung für Höchstgehalte für Umweltkontaminanten in Lebensmitteln. Förderkennzeichen (UFOPLAN) 703 61 218/03, Bundesinstitut für Risikobewertung Berlin.
23. Scholz RW, Schmitt HJ, Vollmer W et al. (1990): Zur Abschätzung des gesundheitlichen Risikos kadmiumbelasteter Hausgärten. Öffentliches Gesundheitswesen 52: 161-167.
24. Stanek EJ, Calabrese EJ, Barnes R et al. (1997): Soil ingestion in adults -Results of a second pilot study. Ecotoxicology and Environmental Safety 36: 249-257.
25. Steffens T (1996): Quantifizierung der oralen Schadstoffbelastung des Menschen durch Emissionen aus Abfallverbrennungsanlagen. Cuvillier: Göttingen.
26. US EPA / US Environmental Protection Agency (2002): Child specific exposure factors handbook. Interim Report. EPA-600-P-00-002B. National Center for Environ-

mental Assessment Washington Office, US Environmental Protection Agency, Washington DC.

2 Szenario „Innenraum“: Berechnung und Evaluation einer bevölkerungsbezogenen Expositionsprognose am Beispiel Tetrachlorethylen

Michael Schümann

2.1 Ziele des Anwendungstests

Menschen halten sich im nordeuropäischen Raum zu einem hohen Anteil ihrer Lebenszeit in Innenräumen auf. Die Qualität der Innenraumluft ist daher für die Allgemeinbevölkerung (Seifert 1990), insbesondere aber für Kleinkinder, Kinder, ältere Menschen, Kranke sowie andere Personengruppen mit hoher Aufenthaltszeit im Innenraum, wesentlich. Für Schadstoffe, die nicht in Innenräumen emittiert werden, kann die Belastung in einer ähnlichen Größenordnung wie im Außenbereich liegen. Sind jedoch Schadstoffquellen in Innenräumen vorhanden, kann die Belastung jene in der Außenluft um ein Vielfaches überschreiten. Wichtige Quellen in Innenräumen sind Baustoffe, Einrichtungsgegenstände, Anwendungsprodukte sowie durch menschliche Aktivitäten verursachte Beiträge aus dem Zigarettenrauch, Verbrennungs- und Kochvorgängen, Reinigungstätigkeiten usw.

Der Anwendungstest **Exposition der Bevölkerung gegenüber Tetrachlorethylen** verfolgt das Ziel, exemplarisch die Möglichkeiten einer szenarienbasierten Modellbildung für eine noch in den 90er Jahren umwelt- und expositionsrelevante Substanz zu prüfen. Hierbei soll der Wissensstand über die in der Bevölkerung vorliegenden Expositionsbedingungen in der Modellbildung und in der Auswahl der relevanten Parameter berücksichtigt werden. Die Anwendbarkeit von vorliegenden bzw. neu abgeleiteten Expositionsfaktoren ist zudem schrittweise zu prüfen. Anwendungsmodelle werden dabei ausgehend von einer idealisierten Form soweit zu reduzieren sein, dass im Ergebnis Modellalternativen vorgestellt werden, deren Parameter mit empirisch belegbaren Datengrundlagen oder begründeten Referenzwertannahmen auszufüllen sind. Die verbleibenden Unsicherheiten über die Güte der Eingangsdaten (Teil 1, Kapitel 4), das Expositionsmodell (Teil 1, Kapitel 3 und 7) und die abgeleiteten Ergebnisse werden dabei dokumentiert. Andererseits wird gezeigt, welche Daten- und Kenntnislücken bestehen und welche Datengrundlagen zukünftig geschaffen werden müssten, um ein vollständiges Expositionsmodell für eine im Innenraum und in der Außenluft relevante flüchtige Substanz modellbasiert berechnen zu können.

Obwohl die Bedeutung des flüchtigen chlorierten Kohlenwasserstoffs Tetrachlorethylen durch die weitgehende Regulierung der Emissionsquellen deutlich

zurückgegangen sein dürfte, wurde die Substanz *Tetrachlorethylen* (PER¹) im Einvernehmen mit dem Auftraggeber ausgewählt, da zu dieser Substanz nationale Untersuchungen zur Immissionssituation (Umgebungsluft und Innenraum) und zur inneren Exposition (PER im Blut) vorliegen. Aus den Umwelt-Surveys 1985/86 und 1990/92 (Krause et al. 1991, Hoffmann et al. 1996) sind darüber hinaus Schätzungen für einige relevante Einflussfaktoren (wie z. B. die Prävalenz einer Nachbarschaft zu Gewerbe- und Industriebetrieben, zur Nutzung von Chemischreinigungen usw.) abzuleiten.

Die hier vorgestellte Umsetzung von empirischem Wissen über Umwelt- und Expositionsfaktoren in ein Prognosemodell für die Humanexposition kann als Machbarkeitsstudie für die modellbasierte Einschätzung der Bedeutung von anderen flüchtigen Substanzen in der Umwelt stehen. Hierbei wird weiterhin geprüft, in wie weit die Zielgröße der äußeren Exposition auf die Zielgröße der inneren Exposition bezogen werden kann.

Das beispielhaft formulierte Modell zur PER-Exposition der Bevölkerung wird als Anwendungsstudie Prognosewerte ergeben, die wegen der nicht mehr aktuellen Höhe der eingehenden Immissionswerte mit hoher Sicherheit für die Bevölkerung heute nicht mehr zutreffen werden. Wegen der deutlich gesunkenen Emission aus industriellen und gewerblichen Quellen kann die berechnete Expositionshöhe nur auf historische Körperlastdaten bezogen werden. Durch die vergleichsweise gute Datenlage kann das Modell jedoch als beispielhafter Anwendungstest für eine Reihe aktuell im Innenraumbereich noch relevanter flüchtiger Schadstoffe stehen.

2.1.1 Definition des zu betrachtenden Szenarios

In diesem Anwendungstest soll geprüft werden, ob auf der bestehenden bzw. der neu abgeleiteten Datengrundlage die Exposition der Bevölkerung für einen Werktag gegenüber Tetrachlorethylen als luftgetragenen Schadstoff prognostisch näherungsweise berechnet werden kann. In Stufe 1 des Tests soll die durchschnittliche äußere Exposition (Aufnahmemenge pro Tag) modelliert werden. In Stufe 2 soll dann, soweit dies datengestützt möglich ist, die zu erwartende Körperlast (PER im Blut) prognostiziert werden. In dieser Studie soll geprüft werden, ob historisch vorliegende Körperlastdaten in der Größenordnung und zudem in der Verteilung angemessen durch ein Expositionsmodell vorausgesagt werden können.

In der Analyse der Expositionsprognose sollen insbesondere die Beiträge der Außen- und Innenraumlufbelastung, der Aufenthaltszeit im Innenraum, und soweit möglich, die Expositionen aus der Inhalation, geschichtet nach wesentlichen Einflussgrößen wie Alter, Geschlecht und Aktivität, beurteilt werden. Eine

¹ Als abkürzende Bezeichnung für Tetrachlorethylen wird durchgehend PER genutzt, um eine Verwechslung mit der Substanz Trichlorethylen, die in der englischsprachigen Literatur mit TCE in der Kurzform bezeichnet wird, zu vermeiden.

Grobabschätzung der möglichen Beiträge aus einer oralen und dermalen Aufnahme soll aufgenommen werden. Die Sensitivität der Expositionsprognose gegenüber den in den Eingangsdaten vorliegenden Variationsquellen und Unsicherheiten soll dabei geprüft werden.

Aus den Umwelt-Surveys 1985/86 und 1990/92 sind darüber hinaus auch Schätzungen für einige relevante Einflussfaktoren (wie z. B. die Prävalenz einer Nachbarschaft zu Gewerbe- und Industriebetrieben, zur Nutzung von Chemischreinigungen usw.) abzuleiten. Der mögliche Anteil aus einer direkten oder indirekten Arbeitsplatzexposition gegenüber Tetrachlorethylen wird nicht berücksichtigt.

2.2 Kurzinformation zur Substanz Tetrachlorethylen

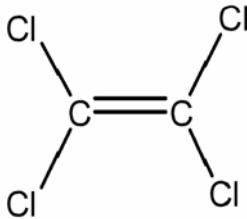
Tetrachlorethylen gehört zur Gruppe der organischen chlorierten Kohlenwasserstoffe. PER wurde 1821 von Michael Faraday erstmals synthetisch hergestellt, seit 1910 wird es zu kommerziellen Zwecken produziert (EB 2002). Als starkes Lösemittel wird es wegen seiner guten technischen Eigenschaften (hohe chemische Stabilität, Nichtentflammbarkeit bei einer niedrigen Toxizität) seit der Mitte des letzten Jahrhunderts in Chemischreinigungen und für die Entfettung von Metallen eingesetzt. Es wird als Ausgangssubstanz für die Produktion anderer Stoffe genutzt. In der Vergangenheit wurde PER in der Humanmedizin als Betäubungsmittel und bereits seit 1925 zur Therapie bei Hakenwurm-Befall des menschlichen Darms angewandt.

2.2.1 Physikalisch-chemische Eigenschaften

Entsprechend der bei BUA (1994), ATSDR (1997) und US EPA (1999) zusammengestellten Angaben zu den chemischen und physikalischen Eigenschaften ist Tetrachlorethylen bei Raumtemperatur eine flüssige, farblose und nicht-entflammbare Substanz mit einer Dichte (Temperatur: 20 °C) von 1,6227 g/mL.

PER ist sehr gering wasserlöslich und gut mischbar mit Alkohol, Äther, Chloroform, Benzin und allen festen, flüssigen und flüchtigen Ölen. Die Geruchsschwelle für die leicht flüchtige Substanz PER scheint über die Personen stark zu variieren, im Wasser liegt sie bei ca. 0,3 ppm und in der Luft ab ca. 1 ppm entsprechend 6,78 mg/m³ (ATSDR 1997); BUA (1994) nennt mit Bezug auf eine Reihe unterschiedlicher Quellen einen Bereich von 8,3 bis 186 mg/m³; der spezifische Geruch von PER wird als etherisch, süßlich-scharf (von einigen Personen als angenehm) wahrgenommen. Für eine detaillierte Charakterisierung und Beurteilung der Substanz sei auf BUA (1994) hingewiesen.

PER wird als nicht brennbare Flüssigkeit, wenig/gering unlöslich in Wasser und flüchtig mit resultierenden PER-Dämpfen, die schwerer als Luft sind, charakterisiert. Über 150°C erfolgt eine Zersetzung (u. a. Bildung von Phosgen). Der Stoff ist als umweltgefährlich einzustufen. Von ihm gehen sowohl akute und als auch chronische Gesundheitsgefahren aus (US EPA 1987, 1988; GESTIS 2002).

	TETRACHLORETHYLEN		
CAS ²	No.127-18-4		
Formel:	C ₂ Cl ₄		
Synonyme ³	Perchloroethylene tetrachloroethylene Tetrachlorethen PER, PERC, Perc, Perk, PCE, ethylene tetrachloride Perchlor, 1,1,2,2-tetrachlorethylen tetrachloroethene		
Umrechnungsfaktoren	1 mg/L	= 147,4 ppm	
	1 ppm	= 6,78 mg/m ³	
Schmelzpunkt	-19 °C		
Siedepunkt	121 °C		
Zündtemperatur	> 650 °C		
Dampfdruck	18,47 mmHg bei 25 °C		
	32 mmHg bei 30 °C		
Dampfsättigungspunkt	128 g/m ³ bei 20 °C		
Partitionskoeffizient ⁴	Log K _{OW}	= 3,3	
Henry's law constant at 25 °C	1,8x10 ⁻² atm·m ³ /mol		

2.2.2 Verteilung und Transformation in der Umwelt

Die Verteilungs- und Transformationskette von Tetrachlorethylen in der Umwelt ist ausführlich durch die Agency for Toxic Substances and Diseases Registry (ATSDR 1995/1997, CEPA 1993, BUA 1994, BUA 2007, EU 2005) beschrieben: Monitoringdaten zum Vorkommen in der Umwelt zeigen demnach, dass PER in der Atmosphäre weltweit und auch fernab von anthropogenen Emissionsquellen nachweisbar ist. Abrahamsson et al. (1995) weisen darauf hin, dass Tetrachlorethylen unter natürlichen Bedingungen von einer Vielzahl von Algen in umweltrelevanten Mengen produziert wird. Franklin (2005) schätzt die PER-Emission aus Ozeanen und anderen natürlichen Quellen in der Größenordnung von 10-190 kt/a ein. Die Chemikalie ist hoch flüchtig, eine Bindung an Wasser (nasse Deposition) ist durch eine hohe Verdampfungsrate hoch rever-

² CAS: Chemical Abstracts Service.

³ HSDB (1996): Hazardous Substances Data Bank

⁴ Octanol-Water Partition Coefficient (K_{ow}): Gleichgewichtsverhältnis der Konzentration von Chemikalien zwischen n-Octanol und Wasser (in Lösung)

sibel (Halbwertszeit der Evaporation aus Oberflächenwasser 7 [h]). Wegen des gegenüber Wasser höheren spezifischen Gewichtes kann bei größeren Umwelteinträgen eine Kontamination des Sedimentes und des Grundwassers erfolgen. Die Ausgasung aus trockenen Böden und der Erdoberfläche ist hoch (Halbwertszeit der Evaporation aus Oberböden eine bis mehrere Wochen). Aus der hohen Stabilität der Substanz resultiert eine lange Halbwertszeit bis zur chemischen Zersetzung in der Luft; die Halbwertszeit in der Atmosphäre liegt in der Größenordnung von 119-251 [d] (Cupitt 1987).

Tetrachlorethylen muss weiterhin als umweltrelevante Noxe eingestuft werden, da von Altlasten, insbesondere von kontaminierten Böden, noch Gefährdungen für die Umgebung, für das Grundwasser und für betroffene Anwohner ausgehen können (siehe z. B. FHH 2003).

2.2.3 Produktion und Verwendung

Tetrachlorethylen wird in großen Mengen industriell als Lösemittel, als Reinigungsmittel in der Textil- und Metallverarbeitung und in chemischen Textilreinigungen (LAI 2000) verwendet, es bildet den Ausgangsstoff (intermediate) für die Herstellung anderer Chemikalien und ist in einer Reihe von Produkten enthalten. Die Produktionsmenge in Europa wird für das Jahr 1994 mit etwa 164 000 Tonnen angegeben, wobei 20 000 Tonnen exportiert wurden. Die Produktions- und Anwendungsmengen sind von 340 000 Tonnen im Jahr 1986 auf den zuvor genannten Wert zurückgegangen (Chlorine Online 2001). Die Produktionsmenge für die Bundesrepublik von *Tetrachlorethylen* wurde am Beginn der 90er Jahre mit ca. 160 000 t/a geschätzt (Bauer 1991). Als Lösemittel wurde 1991 Tetrachlorethylen nach Angaben des UBA (2002a) noch in einer Menge von ca. 27 000 t/a verbraucht; bis zur Mitte der 90er Jahre sank dieser Einsatz auf etwa 7 000 t/a. Die Emission ging von 1990 mit ca. 11 700 t/a durch die Reduktion der Anwendung und durch die Einführung von Kreislaufsystemen in den Betrieben auf etwa 400 t/a zurück. Da die Anzahl kleiner Reinigungsbetriebe und insbesondere der Münzreinigungen deutlich gesunken ist und gleichzeitig die Rückgewinnungstechnologien vernehmlich verbessert wurden, ist von einer sehr deutlich gesunkenen Abgabe an die Umwelt durch Chemischreinigungen und Industriebetriebe um etwa einen Faktor von 30 auszugehen. PER dient in der Herstellung von Trichlorethen sowie Fluorkohlenwasserstoffen (FCKW) als Ausgangsstoff. Bedingt durch die FCKW-Halon-Verbotsverordnung von 1991 ist die Produktion z. T. eingestellt bzw. deutlich rückläufig.

Als Verwendungszweck wird für die USA folgende Aufteilung (HSIA 1999) von der Industrie angegeben: Chemische Zwischenprodukte 50 %, Chemischreinigungen/Textilverarbeitung 25 %, Aerosole im Fahrzeugsektor (automotive aerosols) 10 %, Metallreinigung bzw. -entfettung 10 % und eine Restklasse verschiedener Anwendungen von ca. 5 %.

Tabelle 2.1 Produktion, Verwendung und Emission von Tetrachlorethylen

Jahr	Prod. Europa ¹ (t/a)	Jahr	als Lösemittel ² (t/a)	Jahr	Anwendungsbezogene Emission ² (t/a)
1986	340 000	1991	27 000	1990	11 700
1994	164 000	1996	7 000	2001	400

¹ Chlorine Online (2001); ² UBA (2002a)

Als Produkte, in denen Tetrachlorethylen enthalten sein kann, nennt ADTSR (1997) wasserabstoßende Anwendungsgemische, silikonbasierte Schmiermittel, Textilreinigungs- und Behandlungsmittel, Flecken-, Farb- und Rostentferner, Druckfarben, Klebstoffe, und Produkte zur Reinigung von Hölzern, Teppichreiniger, Lösemittel im Labor, Aerosole. Wegen des vergleichsweise hohen Dampfdruckes und wegen der offenen Anwendung schätzte die US EPA (1982), dass etwa 80 - 90 % der jährlich genutzten Produktionsmenge in die Umwelt, speziell die Atmosphäre, abgegeben würde. Bauer (1991) schätzte den in die Umwelt abgegeben Anteil für die BRD etwa auf ein Drittel der Produktionsmenge.

Besondere Expositionsbedingungen ergeben sich im Arbeitsplatzsektor bei längeren Aufenthalten in Werkstätten, bei der Verarbeitung von Farben und Lacken, dem Arbeiten in Chemischreinigungen, bei der Metallentfettung und bei der Herstellung von fluorierten Kohlenwasserstoffen (Krause et al. 1991, NTP 1986). Für die Allgemeinbevölkerung können sich erhöhte Expositionen beim Besuch von Chemischreinigungen, dem Tragen von PER-gereinigten Kleidungsstücken, im Umfeld von Gewerbe, Industrie und Betrieben zur Tierkörperverwertung, der Nutzung von chlorierten Schwimmbecken und durch Kontamination von Lebensmitteln ergeben (Cal EPA 1991, IARC 1995, Krause et al. 1991, US EPA 1985).

2.2.4 Expositionspfade und Toxikokinetik

Die Literatur zur Toxikokinetik von Tetrachlorethylen liegt zusammengefasst und bewertet als Review vor (ATSDR 1995; Cal EPA 1991; CEPA 1993; IARC 1995). Danach ist die primäre Expositionsquelle die Atemluft. Die Absorption in den Blutkreislauf erfolgt nach Inhalation, abhängig einerseits von der Konzentration in der Atemluft und andererseits von der Atemfrequenz, der Inhalationstiefe und der Expositionsdauer wie nach oraler Aufnahme (z. B. über Trinkwasser oder kontaminierte Lebensmittel) schnell und unter Umweltbedingungen nahezu vollständig.

Die dermale Aufnahme scheint ebenfalls vollständig, jedoch deutlich langsamer, zu erfolgen. PER ist plazentagängig. Aus dem Blutkreislauf verteilt sich PER unmittelbar in das Fettgewebe bei Akkumulation im Körperfett. Menschen atmen aufgenommenes PER unabhängig vom Aufnahmepfad weitgehend untransformiert aus; etwa 1 - 3 % der adsorbierten PER-Menge (Monster et al.

1979: 78 - 95 %) wird vorwiegend in der Leber zu Trichloressigsäure⁵ metabolisiert und über die Nieren ausgeschieden. Tetrachlorethylen kann über die Muttermilch ausgeschieden werden. In der österreichischen VOC-Richtlinie (Baumann et al. 2003, WHO 1984) wird für die Elimination über die Atemluft eine Halbwertszeit von etwa 65 Stunden (BUA 1994) angegeben, bei Guberan und Fernadez (1974) wird 71.5 h genannt. Für die Metabolisierung und Ausscheidung des Metaboliten Trichloressigsäure über den Harn wird eine Halbwertszeit von 144 Stunden angegeben.

Unter hoher Exposition (Expositionskammerversuche mit Freiwilligen) wird ein deutlicher Kumulationseffekt beobachtet und von einer mehrstufigen Kinetik zur Modellierung des Transportes und der Verteilung in den beteiligten Kompartimenten ausgegangen.

2.2.5 Toxikologie

Eine detaillierte Dokumentation der toxikologischen Wirkungsstudien zu PER liegt bei ATSDR (1995) vor. ATSDR unterscheidet bei der Wirkungsbetrachtung die Expositionswege einer inhalativen, oralen und dermalen Exposition geschichtet nach der Art der zu erwartenden Gesundheitseffekte (Tod, systemische, immunologische, neurologische, reproduktive, entwicklungsbezogene, genotoxische und karzinogene Effekte). Diese Daten werden auf die Dauer der Exposition bezogen, wobei zwischen akuter (14 Tage und weniger), mittlerer (15 - 365 Tage) und chronischer (1 Jahr und länger) Exposition unterschieden wird. Aus tierexperimentellen Studien bzw. Humanuntersuchungen wird über die abgeleiteten NOAEL⁶- bzw. LOAEL⁷- Schätzungen unter Einbeziehung der entsprechenden Unsicherheitsfaktoren (BUA 2003) ein *minimal risk level* (MRL) abgeleitet, von dem angenommen wird, dass eine täglich aufgenommene körpergewichtsbezogene Dosis (als geschätzte äußere Exposition) einen nicht-karzinogenen Effekt unwahrscheinlich erscheinen lässt. Für PER wurden die Effekte einer Verminderung der Überlebenszeit und systemische Effekte auf die Leber und die Nieren (Lash und Parker 2001) – neben der karzinogenen Wirkung auf die Leber – für die Beurteilung der oralen Aufnahme in den Vordergrund gestellt. Für eine detaillierte Diskussion sei auf ATSDR (1995, 1997) und BUA (1994) verwiesen.

2.2.6 Toxikologische und regulatorische Bewertung

Die Beurteilung von PER als Karzinogen ist in der wissenschaftlichen Literatur und über die regulatorischen Organisationen uneinheitlich. Die IARC (1995) hat, basierend auf Hinweisen aus arbeitsepidemiologischen Literaturquellen und

⁵ Trichloroacetic acid / TCA: GESTIS (2002) weist auf die Begrenzung dieses Abbaupfades (Sättigung) und die bei hoher Konzentration zunehmende Bedeutung eines Glutathion-abhängigen Abbaupfades hin.

⁶ NOAEL = No observed adverse effect level: Expositions-niveau ohne Effektbeobachtung

⁷ LOAEL = Lowest observed adverse effect level: Niedrigstes Expositions-niveau mit Effektbeobachtung

starker Evidenz aus der tierexperimentellen Literatur, PER als „2A carcinogen“⁸ eingestuft. Die ATSDR (1995) beschreibt die amerikanische Position zu PER auf einem Kontinuum zwischen Gruppe B2⁹ und Gruppe C¹⁰. Die Europäische Union klassifiziert PER als nicht karzinogen, sondern als „concern to humans owing to possible carcinogenic effects“ (Beck 2000). Basierend auf Daten des National Toxicology Program (NTP, 1986) hat die Cal EPA (1991) für die Betrachtung des Lebenszeitkrebsrisikos einen Schätzer für das Unit risk von $8 \cdot 10^{-6} (\text{mg}/\text{m}^3)^{-1}$ abgeleitet.

Die US EPA (1992) leitet einen RfD¹¹ für PER von 0,01 mg/kg/d ab. Der kanadische Wert (Health Canada 1996) liegt mit 0,014 mg/kg/d für den TDI¹² in einer vergleichbaren Größenordnung. Die WHO (1996, 2000) beschränkt sich wegen der unsicheren Datenlage auf eine Beurteilung der nichtkanzerogenen Wirkungen und hat für die Luftqualität einen Wert von 0,25 mg/m³ publiziert.

Der deutsche MAK-Wert wurde im Jahre 1982 von der MAK-Kommission von 100 ppm (689 mg/m³) auf 50 ppm (345 mg/m³) herabgesetzt. Im Jahr 1997 legte die deutsche MAK-Kommission eine neue Einstufung vor (MAK-Werte-Liste BRD 1997). Entsprechend der neuen Richtlinien der MAK-Kommission, für krebserverdächtige Stoffe (Kapitel III B) keinen MAK-Wert mehr anzugeben, wurde der bisherige MAK-Wert ausgesetzt (MAK 2005).

Für die Bundesrepublik wurde in der 2. Ausführungsverordnung zur Durchführung des Bundesimmissionsschutzgesetz von flüchtigen Kohlenwasserstoffen (2. BImSchV 1991) ein Innenraumwert von 0,1 mg/m³ (7-Tage Mittelwert) festgelegt. Vom Unterausschuss „Wirkungsfragen“ des Länderausschusses für Immissionsschutz wurde versucht, den gesetzlichen Luft-Grenzwert auch toxikologisch zu begründen: Es wurde ein Richtwert von 0,1 mg/m³ abgeleitet. Wegen der ungeklärten Fragen zur Kanzerogenität sowie der ökotoxischen Effekte sei neben diesem toxikologischen Richtwert ein weiterer Zielwert von 10 µg/m³ (Jahresmittelwert als Beurteilungsmaßstab für andauernde Belastungen) angemessen.

2.3 Ansätze der Zusammenhangsanalyse und Modellbildung

Ein Ziel dieser Anwendungsstudie ist es, gleichzeitig methodische Ansätze der Epidemiologie (Human-Biomonitoring) und der Expositionsabschätzung auf einen Beispielfall anzuwenden, um die Vor- und Nachteile der Verfahren bezüglich der Modellansätze und bezüglich der erreichbaren Prognosequalität zu

⁸ probably carcinogenic to humans

⁹ probable human carcinogen, sufficient evidence from animals studies but inadequate evidence or no data from epidemiological studies

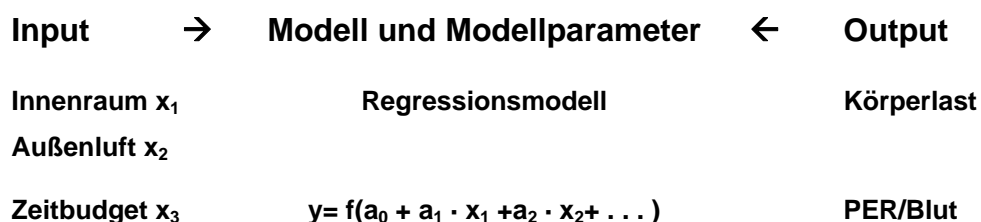
¹⁰ possible human carcinogen, limited evidence for carcinogenicity in animals, inadequate human carcinogenicity data

¹¹ Die Festlegung einer Reference Dose (RfD) ist nicht als Risikoschätzer, sondern als Referenzwert für die Begrenzung von möglichen Risiken anzusehen.

¹² TDI-Werte (tolerable daily intake) sind in ihrer Begründung ähnlich den RfD-Werten einzuordnen.

analysieren und zu bewerten. Im ersten Teil des Berichtes (Kapitel 3) werden Ansätze der Modellidentifikation bei gegebenen Eingangs- und Ausgangsgrößen beschrieben, die auf die Bestimmung der Richtung und Stärke von berücksichtigten Einflussfaktoren durch statistische Regressionsanalysen abzielen. Eingangsgrößen sind z. B. die Höhe der PER-Innenraumbelastung, das Zeitbudget im Innenraum und weitere durch Erhebung oder Messung bekannte Größen. Mögliche Ausgangsgrößen könnten die Konzentration in der ausgeatmeten Luft (als unmetabolisierter Anteil der inneren Exposition), die PER-Konzentration im Blut (als Indikator der inneren Exposition unter Annahme eines Gleichgewichtes zur Anreicherung im Fettgewebe) oder die Konzentration von Metaboliten im Urin (Ausscheidungsbilanz) sein. Durch die statistische Analyse der Zusammenhangsstruktur kann mit Hilfe von Regressionsmodellen die Hypothese eines systematischen, über Zufallsvariation hinausreichenden, Effektes geprüft werden.

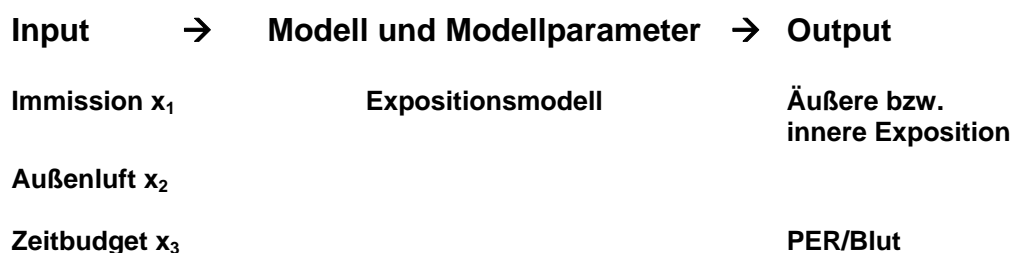
Abbildung 2.1 Regressionsmodelle zur Beschreibung von Zusammenhängen



Als Ergebnis der Regressionsanalyse liegt, sofern geeignete (und ggf. transformierte) Ein- und Ausgangsdaten gewählt wurden, ein (lineares) Modell zur Prädiktion der Zielgröße bei gegebenen Eingangsgrößen vor (Abbildung 2.1). Ob und wie weit der im Modell beschriebene Zusammenhang auf einen erweiterten, je nach Situation höheren oder niedrigeren Wertebereich als dem beobachteten Wertebereich übertragen werden kann, bleibt in der Regel schwer abzuschätzen.

In der „klassischen“ Expositionsmodellierung wird dagegen angestrebt, den gesamten Prozess der Expositionskette, ausgehend von den Eingangsdaten unter Annahme eines Expositionsmodells zu berechnen, um eine Prognose der Exposition zu erreichen (Abbildung 2.2).

Abbildung 2.2 Variablen eines einfachen Expositionsmodells zur Prädiktion der PER-Körperlast



Wegen der hohen Komplexität der für die Substanzen unterschiedlichen und über die Personen variierenden Verteilungsprozesse im Körper und der selten hinreichend bekannten Parameter der zugrunde liegenden Abbau-Kinetik, beschränken sich Entwickler von Expositionsmodellen meist auf die Prognose der äußeren Exposition. Im Folgenden wird der Rahmen der Modellbildung für den Anwendungstest PER beschrieben und Möglichkeiten der Prognose betrachtet. Abbildung 2.3 gibt einen Überblick über die Eingangs-, die Modell- und die Zielgrößen.

Abbildung 2.3 Vereinfachtes Expositionsmodell für die Aufnahme von PER aus verschiedenen Quellen

$$\begin{aligned}
 PER_{Exposure} = & \\
 & PER_{indoor} \cdot Zeit_{indoor} \cdot Inhalation_{indoor} \cdot Resorption_{PER,inhalativ} \\
 + & PER_{outdoor} \cdot Zeit_{outdoor} \cdot Inhalation_{outdoor} \cdot Resorption_{PER,inhalativ} \\
 + & PER_{nutrition} \cdot Menge_{nutrition} \cdot Resorption_{PER,oral} \\
 + & PER_{dermal} \cdot Menge_{dermal} \cdot Resorption_{PER,dermal}
 \end{aligned}$$

Die Eingangsgrößen sind hier die PER-Konzentrationen in den Quellen und die Aufnahmemengen, als Modellgröße bestimmt die Resorptionsrate für jeden Pfad, in welchem Maß die äußere Exposition in den Körper aufgenommen wird. In der dargestellten Struktur hat das Expositionsmodell die Struktur einer linearen Gleichung, die eine gewichtete Summe der Beträge aus den berücksichtigten Quellen über die inhalative Aufnahme (Innenraum, Außenluft), die orale und die dermale Aufnahme beschreibt.

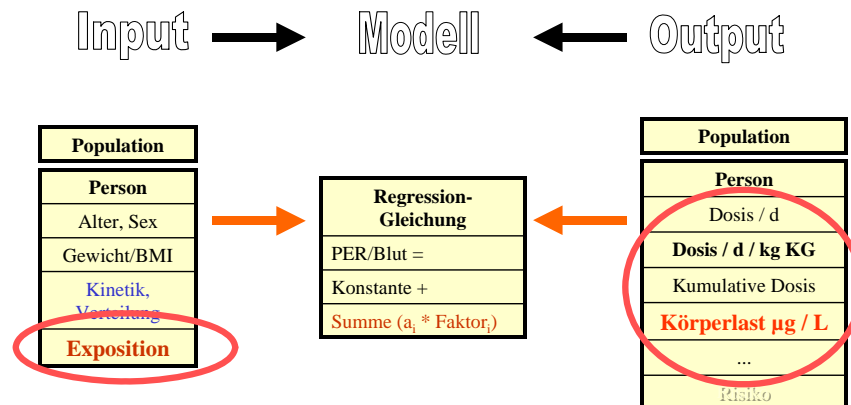
2.3.1 Epidemiologische Ansätze: Datenbasierte Regressionsanalyse des Expositionsprozesses

In epidemiologischen Studien wird ausgehend von der gemessenen Konzentration von PER im Blut bzw. von der PER-Konzentration in der ausgeatmeten Luft auf die Körperlast und die Exposition in den vergangenen Tagen geschlossen. Um die relevanten Einflussgrößen und deren Einflussstärke beurteilen zu können, müssen hinreichende Angaben zu den Eingangsgrößen (Indikatoren der Außenluft-/ Innenraum-Kontamination, Expositionszeit) vorliegen (Abbildung 2.4).

Anfang der 90er Jahre zeigten Untersuchungen des Bundesgesundheitsamtes, dass in der Umgebung von Chemischreinigungen nicht durchgehend ein ausreichender Schutz gegenüber Emissionen gegeben war. Insbesondere bei verdichteter Bebauung mit unmittelbar aneinandergrenzenden Chemischreinigungen, Wohnräumen oder Lebensmittelbetrieben, wie sie insbesondere in großstädtischem Umfeld zu finden waren, wurde ein erhebliches gesundheitliches Gefährdungspotenzial vermutet.

Abbildung 2.4 Illustration der angenommenen Zusammenhangsstruktur in einem Regressionsmodell

**Modellidentifikation durch Regressionsanalyse:
PER-Blutbelastung als Zielgröße**

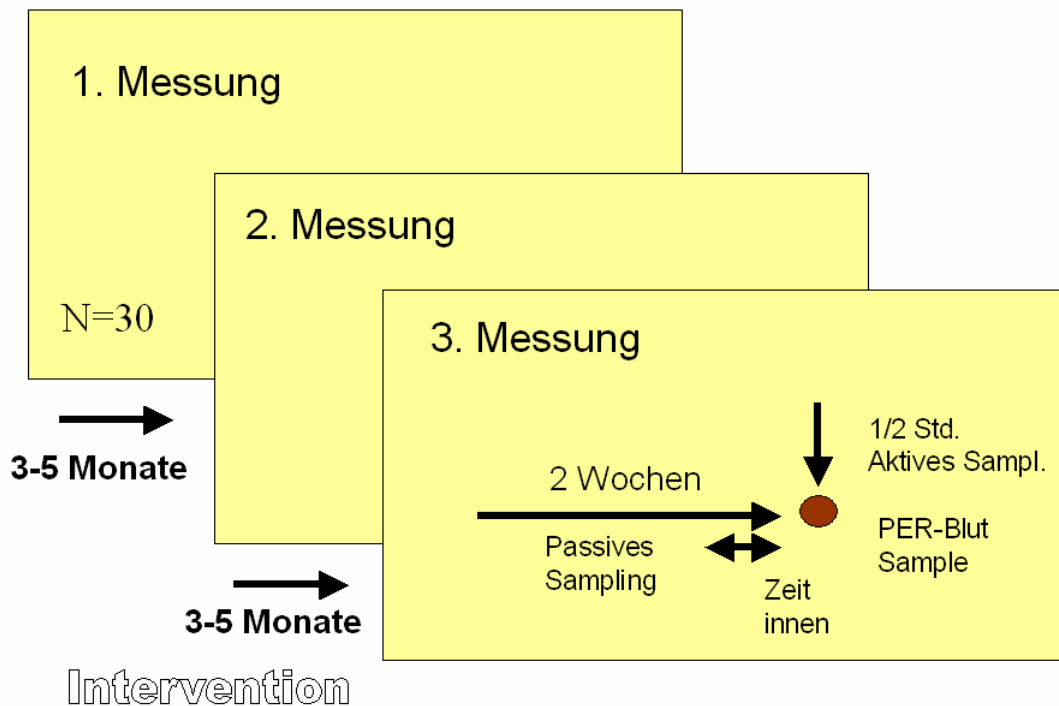


In einer anlassbezogenen Erhebung der Innenraumbelastungen von Wohnungen im Umfeld von Hamburger Chemisch-Reinigungen zeigten sich z. T. erhebliche PER-Innenraum-Konzentrationen. Die Gesundheits- und Umweltämter als Vollzugsbehörde des Bundesimmissionsschutzgesetzes haben daraufhin den Betreibern von bemängelten Betrieben technische Auflagen erteilt, die Emission so zu verringern, dass in Nachbarschaftswohnungen und Lebensmittelbetrieben die gültigen Innenraumrichtwerte auf Dauer unterschritten würden.

Da viele betroffene Bürger sich an die Landesbehörde wandten und um begleitende Kontrolle bzw. Evaluation der Sanierungsmaßnahmen baten, wurde ein sanierungsbegleitendes Untersuchungsprogramm initiiert. Die Wirksamkeit von Sanierungsmaßnahmen wurde in konstanten Abständen wiederholt im zeitlichen Abstand von ca. vier Monaten kontrolliert. Hierzu wurde die PER-Innenraum-Kontamination aktiv und passiv (14-Tage-Messung) ermittelt und begleitend die Blut-PER-Konzentration der Studienteilnehmer/innen gemessen. Im Zusammenhang mit der Entnahme einer Blutprobe wurde die Aufenthaltszeit in der Wohnung in den vergangenen 48 bzw. 24 Stunden vor der Blutmessung in der Wohnung erfragt. Abbildung 2.5 illustriert das Längsschnitt-Erhebungsprogramm: Zu jedem Messzeitpunkt wurde durch Passivsammler die mittlere Immission über die vergangenen 14 Tage ermittelt, jeweils eine Kurzzeitmessung (Aktivmessung) durchgeführt, eine Blutprobe der Teilnehmer/innen entnommen

und eine Kurzbefragung zum Zeitbudget der vergangenen 48 Stunden durchgeführt. Für alle drei Messzeitpunkte war das Vorgehen gleich.

Abbildung 2.5 Studiendesign der Hamburger Evaluationsstudie zur PER-Immission und zur Blutbelastung in der Nachbarschaft von Chemisch-Reinigungen



Die Laborproben wurden durch das Institut für Toxikologie der Universität Kiel erhoben und analysiert. Als mögliche Einflussgröße wurde die Innenraum- und Außenlufttemperatur gemessen. Die dreißig freiwilligen Teilnehmer/innen haben sich vor Studienbeginn in den jeweiligen Gesundheits- und Umweltämter begleitend ärztlich untersuchen (unter Aufnahme von anthropometrischen Maßen) und beraten lassen. Das Projekt wurde von der Planung bis zur Berichterstattung von einem Beirat begleitet, an dem sich die Betroffenenvertretungen, Umweltbehörde, die Gesundheits- und Umweltämter, Umweltinitiativen und später der Verband der Chemischreiniger beteiligte. Die statistisch-epidemiologischen Auswertungen erfolgten anonymisiert durch die Landesbehörde (Schümann et al. 1991,1995).

Die Einflussstärke der Innenraumbelastung und weiterer möglicher Einflussfaktoren auf die PER-Blutbelastung wurden pro Sanierungsstufe und in einer Gesamtauswertung über Regressionsanalysen ausgewertet. Verzerrungen durch Carry-over-Effekte (Einflüsse die hier über Zeitdifferenzen von 3-5 Monaten pro Messung hinauswirken) sind ebenso wie Latenzeffekte (Wirkungen die erst nach einer Verzögerung von mehr als drei Monaten auftreten) wegen der kurzen biologischen Halbwertszeit von PER im Körper nicht zu erwarten. Die Daten können daher in einer Gesamtanalyse betrachtet werden. Ausfälle von

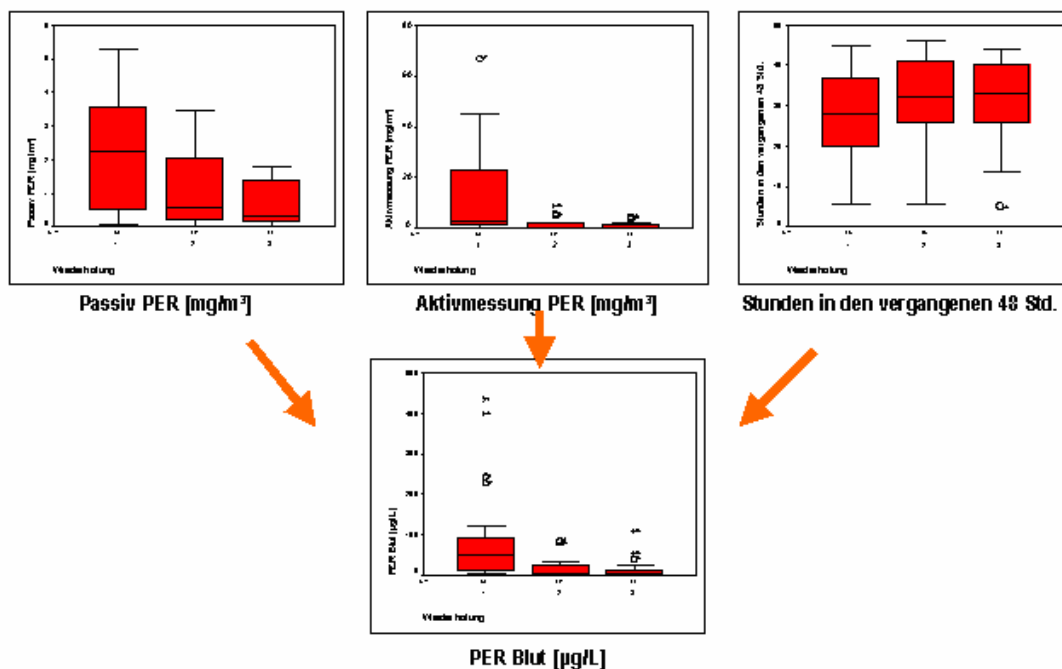
Probanden in der Zeitreihe ergaben sich durch Krankheit zum Untersuchungszeitpunkt und Wegzüge aus den Wohnungen (Fallzahlen Erhebung 1: n = 30, 2: n = 29, 3: n = 27).

Tabelle 2.2 Beobachtete PER-Blutbelastung [$\mu\text{g/L}$] bei Messwiederholung 1-3

Wiederholung	N	Min	Max	Aritm. Mittelw.	SD	Median	Geom. Mittelw.
1	30	2,2	437,0	85,4	109,2	52,1	39,0
2	29	0,4	85,5	16,2	21,7	6,4	7,2
3	27	0,9	111,3	14,7	23,1	7,6	6,9
Insgesamt	86	0,4	437,0	39,9	74,2	12,2	12,8

Die PER-Innenraumbelastung und gemessenen PER-Blutkonzentrationen sinken über die drei Untersuchungszeitpunkte deutlich. Die Kurzzeit-/Aktiv-Messungen der PER-Innenraum-Konzentration weisen eine wesentlich höhere Variationsbreite auf als die Passiv-/Langzeit-14-Tage-Messungen (Abbildung 2.6).

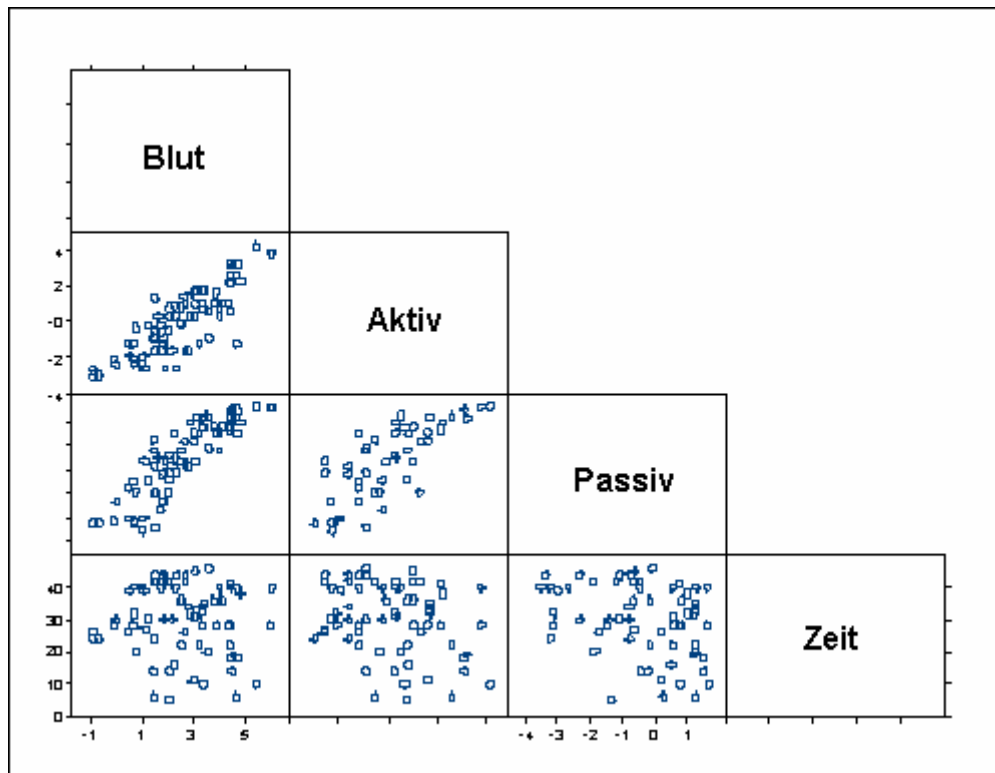
Abbildung 2.6 Illustration der zeitlichen Veränderung in der PER-Immission (Aktiv- und Passivmessungen), im Zeitbudget und in der PER-Blutbelastung bei Bewohner aus der Nachbarschaft von Chemischreinigungen



Die Korrelation zwischen Kurzzeit- und Langzeitmessungen (Erhebung 1: $r=0,84$; 2: $r=0,81$ und 3: $r=0,61$; log. Werte und Pearson's Korrelations-Koeffizient) weist

auf eine hohe Assoziation, die als zeitlich stabiler, über kurzzeitige Schwankungen (Wochentag, Produktionsbedingungen, etc.) hinausreichender Zusammenhang zu interpretieren ist (Abbildung 2.7).

Abbildung 2.7 Streudiagramm der Zusammenhangsstruktur zwischen der PER-Aktiv- und Passivmessung, dem Zeitbudget und der Konzentration von PER im Blut (Gesamtauswertung, Konzentrationen in log. Einheiten)



Eine gleichzeitige Aufnahme der Variable (Aktiv- und Passivmessung) in ein Regressionsmodell würde wegen hoher Interkorrelation der Eingangsgrößen (Kollinearität) zu Verzerrungen führen können. Vor einer Regressionsanalyse der Gesamtdaten wurde daher der auf Langzeitbelastungen zurückgehende Anteil in den Kurzzeitmessungen adjustiert (Bestimmung des jeweiligen Regressionsresiduums), um für die Kurzzeitbelastung, als Indikator für die Exposition im unmittelbaren Zeitraum vor der Blutentnahme, einen unabhängigen Prädiktor in das Modell aufnehmen zu können. Hiervon wurden den Messwerten der Kurzzeitmessungen die durch die Langzeitmessungen vorherzusagenden Anteile (lineare Regression der logarithmierten Werte) abgezogen. Die Ergebnisse der Regressionsanalyse unter Berücksichtigung der Innenraumbelastung und des 48-Stunden-Zeitbudgets sind in Tabelle 2.3 für den Gesamtdatensatz zusammengefasst.

Eine Logarithmierung der Einzelwerte (PER-Immission und -Blutkonzentration) ist angezeigt, da erst nach dieser Transformation die Voraussetzungen für die Berechnung von linearen Regressionsmodellen erfüllt sind. Für die drei Ein-

flussgrößen, die langzeitige und die kurzzeitige Immission in der Wohnung einerseits und für die Aufenthaltszeit in der Wohnung in den 48 Stunden vor der Blutmessung andererseits zeigt das Regressionsmodell eine hohe prädiktive Stärke; der Determinationskoeffizient $R^2 = 0,86$ belegt dies.

Tabelle 2.3 Regressionsmodell für die Prädiktion der PER-Blut-Konzentration (Gesamtdatensatz)

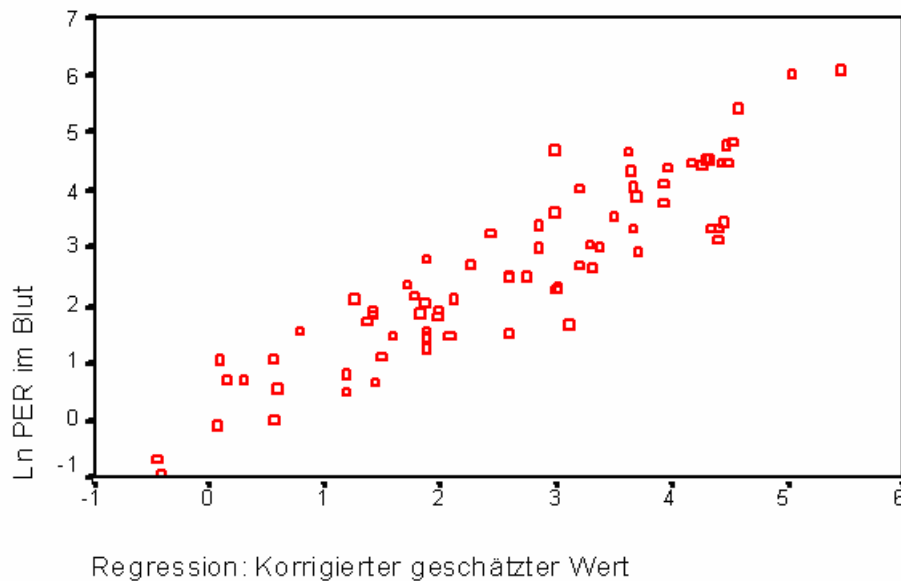
Regression model : $\text{Ln}(\text{PERBlood}) \sim$				
Const				
+ a1*Ln(PERPassiv)				
+ a2*Ln(PERActive-Residuum)				
+ a3*Time				
Results and coefficients:				
	Value	SE	t_{value}	Pr(> t)
Konstante	2,00	0,21	9,5	0,000
Innen-Zeit	0,04	0,01	5,1	0,000
Ln(PERPassiv)	0,96	0,05	19,9	0,000
Ln(PERAktivRsd)	0,34	0,06	5,4	0,000
Multiple R-Squared:	0,86			
F-statistic:	141,40 on 3 and 71 df			
the p-value	0,0000			

Die Variation in der Blutbelastung über die Personen und Messzeitpunkte lässt sich bei Kenntnis der Variation der Einflussgrößen zu einem sehr hohen Anteil erklären. Die in Tabelle 2.3 dargestellte Modellanpassung belegt, dass insbesondere die 14-Tage-Passivmessung zur Prädiktion der Körperlast beiträgt. Der zusätzliche Einfluss der Immission zum Zeitpunkt der Blutentnahme und die Dauer des Aufenthalts in der Wohnung in den der Blutmessung vorausgehenden 48 Stunden sind als statistisch signifikante Beiträge zu erkennen.

Auf die Einzelanalysen pro Sanierungsschritt wird hier nicht eingegangen, da sich die Ergebnisse in der Struktur kaum von den Ergebnissen aus der Gesamtanalyse unterscheiden; abweichend von Stufe 1 und 2 der Wiederholungsmessungen wird in Stufe 3 der Beitrag der adjustierten Aktivmessung nicht statistisch signifikant, zeigt jedoch eine vergleichbare Größenordnung.

Die Aufnahme der Außenluft- und Innenraumtemperatur weist in den Analysen auf möglichen positiven Beitrag der Umgebungstemperatur hin. Da dieser Einfluss jedoch wegen seiner zeitlichen und saisonalen Reihung nicht von den Sanierungseffekten zu trennen ist, kann eine getrennte Bewertung nicht erfolgen. Konsistente Hinweise auf eine Assoziation zum Körpergewicht oder zum Body-Mass-Index (als Indikatoren des Gesamt- bzw. Fett-Verteilungsvolumens) ergeben sich nicht.

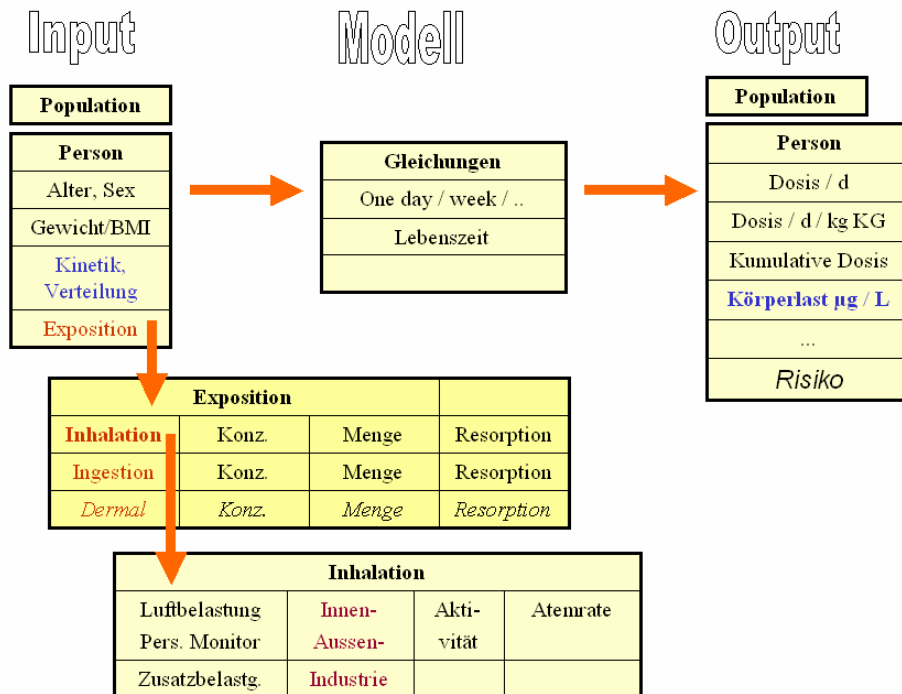
Abbildung 2.8 Streudiagramm der durch das Regressionsmodell vorhergesagten (Ordinate) und der gemessenen PER-Blutkonzentrationen (Abszisse) in logarithmierter Darstellung (Gesamtdatensatz)



Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass die PER-Blut-Belastung durch die erfassten Einflussgrößen, Immission im Innenraum und Aufenthaltszeit, sehr gut vorgesagt werden kann. Abbildung 2.8 zeigt die prädiktiven Werte der Regressionsberechnung zusammen mit den gemessenen PER-Blutkonzentrationen. Vergleichbare Studien (Schäfer und Hohmann 1989, 1991) haben, sofern eine Berechnung (Reanalyse) auf einer logarithmierten bzw. rangskalierten) Datengrundlage erfolgte, ähnlich hohe Zusammenhänge gezeigt. Ob das abgeleitete Regressionsmodell auf Bereiche niedriger PER-Konzentration im Innenraum extrapoliert werden kann, ist unklar. Der mit der Verminderung der Innenraumbelastung im Sanierungsprozess abfallende Anteil des Varianzbeitrags der Kurzzeitexposition deutet hier auf mögliche Einschränkungen hin.

2.4 Modellierung des Expositionsprozesses

Als Ausgangsmodell einer Expositionsabschätzung gegenüber PER soll eine vollständige Betrachtung der inhalativen, der oralen und der dermalen Aufnahme erfolgen. Ohne auf die summativen Beiträge innerhalb jedes einzelnen Pfades einzugehen, kann ein entsprechendes Modell wie folgt illustriert werden:

Abbildung 2.9 Relationale Struktur eines Expositionsmodells für die Exposition gegenüber Tetrachlorethylen

So einfach das Modell auch auf den ersten Blick erscheint, so komplex wird es, wenn die Variablen (Tabelle 2.4) für eine ausgewählte Personengruppe mit angemessenen Parametern ausgefüllt werden sollen:

Tabelle 2.4 Detaillierung des PER-Expositionsmodell

$$\text{Exposition} = \text{Summe Pfad } i \left(\text{Summe Medium } j \left(M_{i,j} \cdot C_{i,j} \cdot B_i \right) \right)$$

Pfad = Inhalative Aufnahme von Luft,
Orale Aufnahme (Nahrung, Trinkwasser),
Dermale Aufnahme (Hautkontakt)

Medium = Luft : Innenraum, Außenluft, Arbeitsplatz, ...
= Nahrung : relevante (fetthaltige) Lebensmittel
= Haut/dermal : Kosmetika, Reinigungs- / Lösemittel, ..

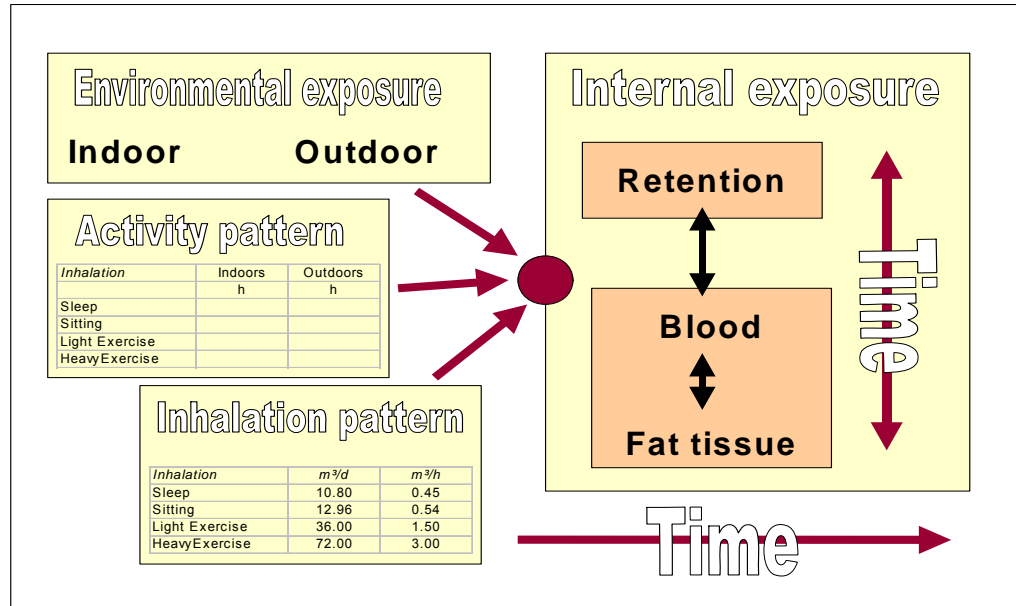
$M_{i,j}$ über einen Pfad i aufgenommene Menge aus einem Medium j
 $C_{i,j}$ PER-Konzentration im Medium j
 B_i Resorptionsrate von PER über Pfad i

Die aufgenommenen Mengen $M_{i,j}$ sind (a) alters-, und geschlechtsabhängig, (b) hoch variabel über die Personen (interindividuelle Varianz), (c) variabel über die

Zeit (intraindividuelle Varianz) und (d) in der Regel empirisch nur annähernd (wenn überhaupt) bestimmt. Für den Luftpfad ist die aufgenommene Menge von den zeitlichen Anteilen, der Dauer und der Intensität der jeweiligen Aktivitäten abhängig. Hierbei ist die Atemrate selbst wieder eine Abhängige von weiteren Einflussgrößen wie dem Körpergewicht (bzw. der metabolischen Basisrate) und dem kalorischen Umsatz (dem Sauerstoffverbrauch). Da die Eingangsdaten in Teilen untereinander korreliert sind und entsprechende Daten für die Eingangsparameter nur als grobe Näherungen bekannt bzw. dokumentiert sind, werden auch die entsprechend aufgebauten Expositionsmodelle nur Näherungen sein können.

Da hier alleine die aktuelle Exposition an einem Wochentag modelliert wird, werden die sonst für eine chronische (oder lebenslange) Expositionsbetrachtung üblichen zeitlichen Normierungen (Anzahl der Expositionstage / Bezugszeitraum) nicht in die Modellgleichungen aufgenommen. Eine Mittelung über die wöchentlich durchschnittliche Exposition ist nicht angezeigt, da die PER/Blut-Messungen bei einer vergleichsweise kurzen Halbwertszeit hauptsächlich die Variation in der Exposition der vergangenen Tage anzeigen.

Abbildung 2.10 Angenommene Einflussfaktoren auf die äußere PER-Exposition und die PER-Blutbelastung



Entsprechend der durch die in Tabelle 2.4 dargestellte Formel sind für die Modellanwendung geeignete Daten zur PER-Konzentration in der Innenraum- und in der Außenluft, Aufenthaltszeiten und Inhalationsraten zu identifizieren, auf ihre Güte hin zu untersuchen und auszuwählen, um das Szenario datengestützt berechnen zu können. Da für die Variablen PER-Konzentration in der Innen-

raum- und in der Außenluft eine deutliche Veränderung über die Zeit anzunehmen ist, müssen die Eingangsdatensätze zeitabhängig betrachtet werden. Ihre Gültigkeit ist für die heutige Situation nicht anzunehmen. Für die Variablen der Aufenthaltszeiten und Inhalationsraten wird von einer saisonalen Abhängigkeit, weniger dagegen von einer systematischen Veränderung über die Zeit von 1990 bis heute auszugehen sein.

2.4.1 Modellierung der Außenluftbelastung

In der Stoffmonographie des BUA (1994) und UBA (2002b) sind die wesentlichen Daten zur PER-Immissionslage in Deutschland zusammengestellt. In der Bundesrepublik Deutschland lagen die Jahresmittelwerte in der Außenluft an nicht durch spezielle Emittenten beeinflussten Messorten weitgehend unterhalb von $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, lokal traten mittlere PER-Konzentrationen bis zu $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf. 98 % der Werte lagen unter $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (LAI 2000, Tabelle 2.5). Jahreszeitliche Schwankungen sind nur aus wenigen Untersuchungen erkennbar. Zusammenfassend ergaben sich in ländlichen Gebieten Konzentrationen zwischen $0,1 - 0,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$, in urbanen Gebieten $0,2 - 2,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und bei emittentennahen Messstellen bis zu $12 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Tabelle 2.5 PER-Immission nach LAI (2000)

Nicht durch Emittenten beeinflusste Messorte:	$< 1 \mu\text{g}/\text{m}^3$
98 % der Werte	$< 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$
Ländliche Gebiete	$0,1 - 0,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$
Urbane Gebiete	$0,2 - 2,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$
Emittentennahe Messstellen	bis zu $12 \mu\text{g}/\text{m}^3$

Nach Begerow (1996, siehe Tabelle 2.6) ergeben sich 1995 mittlere Außenluft-Konzentrationen für die industriell geprägte Region Essen jahreszeitenabhängig zwischen $1,07$ und $2,30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (geom. Mittel, $N = 70$ Messstationen), für das eher kleinstädtisch-ländlich geprägte Umfeld der Kontrollregion Borken geben die Autoren geometrische Mittelwerte von $0,38 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Frühjahr) bis $1,59 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Herbst) an. Das industrielle Umfeld zeigte dabei etwa um den Faktor zwei höher liegende PER-Konzentrationen in der Außenluft.

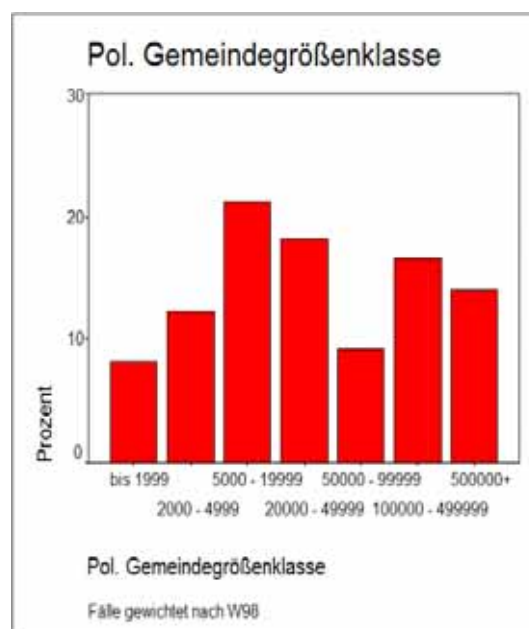
Der Wert für die globale Hintergrundkonzentration wird mit $0,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ angegeben (WHO 2000). Die Tagesmittel in den deutschen Reinluftgebieten (Schauinsland und Zugspitze 2004) variierten zwischen $0,02$ und $0,14 \mu\text{g}/\text{m}^3$, die Messstation Deuselbach zeigte dagegen bei vergleichbaren Basiswerten ganz deutlich höhere Spitzenwerte bis $4,50 \text{ mg}/\text{m}^3$, die offensichtlich durch besondere Windlagen und benachbarte Emittenten in der Größenordnung einer deutlichen industriellen Belastung liegen können (UBA 2005).

Tabelle 2.6 Ausgangsdaten von Begerow et al. (1996) zur PER-Außenluftbelastung

Quelle:		Begerow et al. (1996, p. 402) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$			
	Region	Saison	Empirisch		
			GM	GSD	P95
Außen N = 70	Borken	Winter	1,08	1,60	2,70
		Frühling	0,38	3,39	2,86
		Sommer	0,59	2,64	3,71
		Herbst	1,59	1,85	6,49
Außen N~70	Essen	Winter	1,33	1,30	2,73
		Frühling	1,04	1,40	2,40
		Sommer	1,07	1,51	3,20
		Herbst	2,30	1,32	4,73

Insgesamt hätte sich die PER-Luftbelastungssituation (Außenluft) deutlich gegenüber den Anfang der 90er Jahre gemessenen Werten verbessert, was bei deutlich gesunkenem Verbrauch und Änderung der Anwendungstechnologien als realistisch angesehen werden kann. Sofern in der Lebensumwelt von Bewohnern noch PER-Altlasten oder -Emittenten vorliegen, werden auch die Immissionen deutlich höher liegen.

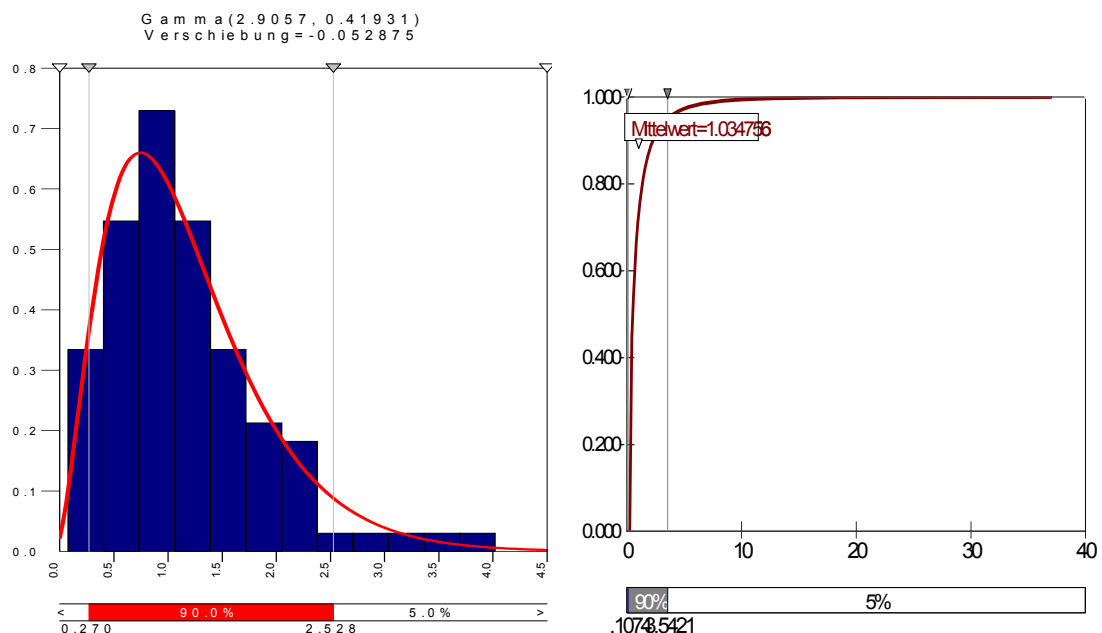
Abbildung 2.11 Verteilung der Wohnorte nach der Anzahl der Einwohner (Datengrundlage: BGS 1998) gewichtet nach Korrektur für Repräsentativität (Variable W98)



Für das Szenario der 90er Jahre werden die Abstufungen des LAI (2000) gewählt; in Tabelle 2.5 sind die LAI-Schätzungen zusammengestellt. Zusammen mit entsprechenden Prävalenzen aus dem Umwelt- und Gesundheitssurvey kann die Gesamtverteilung geschätzt werden. Hierzu wird entsprechend der

empirischen Verteilung der Gemeindegröße (Abbildung 2.11) eine zusammengesetzte Verteilung der Immission simuliert, wobei in den jeweiligen Gemeindegrößenintervallen eine Gleichverteilung der Immission entsprechend Tabelle 2.5 angenommen wird. Abbildung 2.11 gibt die Zuordnung zu politischen Gemeindegrößen (ländlich/kleinstädtisch) unter 50.000 Einwohner wieder, für die Nähe zu potentiellen industriellen Emittenten wird basierend auf dem Umwelt-Survey 1985/86 ein Wert von 12,3 % (Nähe zu Industrie/ Gewerbebetrieben mit weniger als 1 km Distanz) gewählt (Krause et al. 1991). Die Schätzung des LAI (2000) hat eine über die Jahreszeiten vereinheitlichte Form, sie lässt sich gut durch eine Gamma-Verteilung approximieren ($\chi^2=2.960$; AD-Statistik= 0,2131; K-S-Anpassung = 0,05176; $p=0,9823$) (Abbildung 2.12).

Abbildung 2.12 Dichteverteilung (links) und kumulierte Verteilungsfunktion (rechts) der simulierten Außenluftbelastung



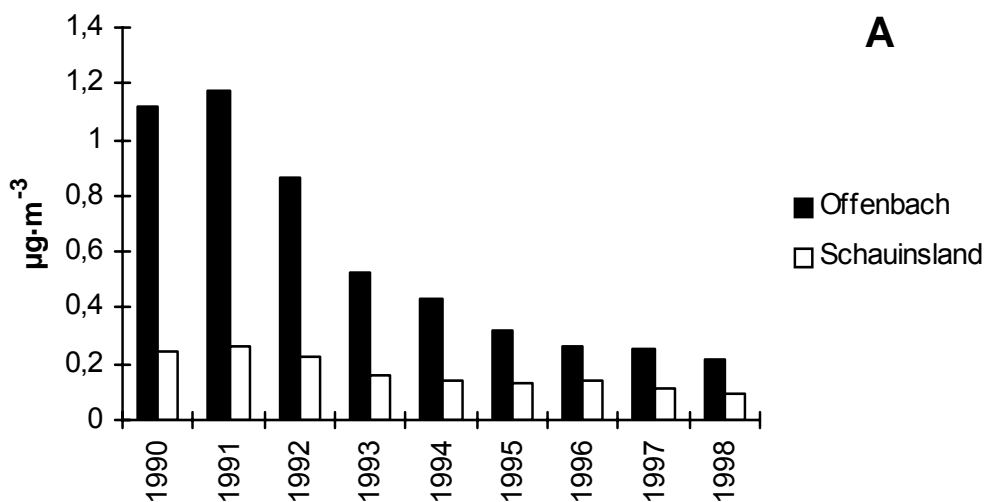
In der Simulation (50.000 Iterationen) ergeben sich die Abbildung 2.12 dargestellte Dichteverteilung und die korrespondierende Verteilungsfunktion. Für die resultierende Gesamtverteilung ergeben sich damit als Schätzungen der statistischen Kennwerte folgende Werte (Tabelle 2.7):

Tabelle 2.7 Deskriptive Kennwerte der Simulation einer Gammaverteilung für die PER-Außenluft-Belastung entsprechend der Annahmen des LAI unter Berücksichtigung der Bevölkerungsverteilung nach Gemeindegröße und Prävalenz der Nähe zu Industrie und Gewerbestandorten

	PER $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Mittelwert	1,0
Median	0,5
95%-Quantil	3,5
99%-Quantil	12,3

Für die Beurteilung der jüngeren Vergangenheit könnten auch die bei Begerow et al. (1996) dokumentierten Daten (Tabelle 2.6) als Ausgangsdaten für eine Gesamtverteilungsschätzung gewählt werden; für eine Betrachtung von Jahreszeiträumen unter Berücksichtigung (a) der Anteile und Variation über die Jahreszeiten und (b) der Variation im Zusammenhang mit Emittenten wäre eine vereinfachte Modellierung als Gammaverteilung ($a=2,91$; $b=0,42$; $\text{Shift}=-0,05$) ein mögliches Modell.

Abbildung 2.13 Zeitliche Entwicklung der gemessenen PER-Immission in einem industriellen und in einem Reinluftgebiet



(UBA 2002a)

Dass dieses Modell für die aktuelle Lage deutlich zu hohe Konzentrationen für die Außenluft schätzen wird, zeigt die Abbildung 2.13 die zeitliche Entwicklung deutlich.

2.4.2 Modellierung der Innenraumluftbelastung

Für die Daten zur Innenraumluft liegen in verschiedenen Quellen gute Übersichten zur Immissionssituation in der BRD vor (BUA 1994). Die nachfolgende Aufschlüsselung in Tabelle 2.8 gibt eine Übersicht zur Ergänzung der Datenlage.

Auf die Datenquellen aus Hamburg wird im Zusammenhang mit der PER-Körperlast eingegangen, hier liegen die Originaldaten zur Reanalyse vor. Die Daten der ISAAC-Studie (Ullrich et al. 1999) liegen in einem deutlich niedrigeren Bereich von 0,11- 63,0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Median = 0,53; 75%-Quantil = 1,22; 95 %-Quantil = 5,2). Die Daten aus Bitterfeld/Zerbst (Ullrich et al. 1996) zeigen eine moderat hohe Korrelation (0,46-0,64) zwischen der Außenluft-, der Innenraumluft- und Personal-Sampler-PER-Konzentrationen; die Korrelation zwischen der PER-Innenraum-Konzentration und den personengebundenen Messwerten (personal sampler) zeigen eine sehr hohe Korrelation ($r=0,84$). Die Daten des Umweltbundesamtes und die Daten aus Nordrhein-Westfalen werden detaillierter betrachtet.

Tabelle 2.8 Übersicht über Datenquellen zur PER-Innenraumluft-Konzentration

Quelle	Region	Untersuchte Personen
Umwelt-Survey 85/86	BRD/West	N = 479
Umwelt-Survey 90/91	BRD/West	N = 113
Hamburg 1990	Hamburg	N = 3 · 29 Zeitreihe
Bremen 1991	Bremen	N = 48
Bitterfeld/Zerbst	Bitterfeld/Zerbst	N = 56
Begerow et al. 1996	Essen/Borken	N = 232 Borken N = 172 Essen
ISAAC (1996-97)	München	N = 128

Der Umwelt-Survey des Bundesgesundheitsamtes der Jahre 1985/1986 hat in den Wohnungen von 479 untersuchten Personen die PER-Konzentrationen gemessen. Die Analyse ergab Raumluftkonzentrationen an PER in Wohnungen von 4,5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Median), ein 90. Quantil von 14 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, ein 95. Quantil von 27,7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und einen Maximalwert von 807 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Krause et al. 1991). In den Wintermonaten (Temperatur < 11 °C) wurden bedeutsam höhere Innenraumkonzentrationen gemessen, mit der Einwohnerzahl der Gemeinden stieg die PER-Innenraumkonzentration, für ländliche Gebiete werden niedrigere Werte festgestellt. Der relative Anteil von Industriebeschäftigten in der Gemeinde ist mit der Innenraumkonzentration assoziiert. In verdichteter Bebauung werden höhere Werte ermittelt. Als neue zusammengefasste Schätzung berichten Baumann et al. (2003) mit Hinweis auf die zusammenfassenden Studien von Schleibinger et

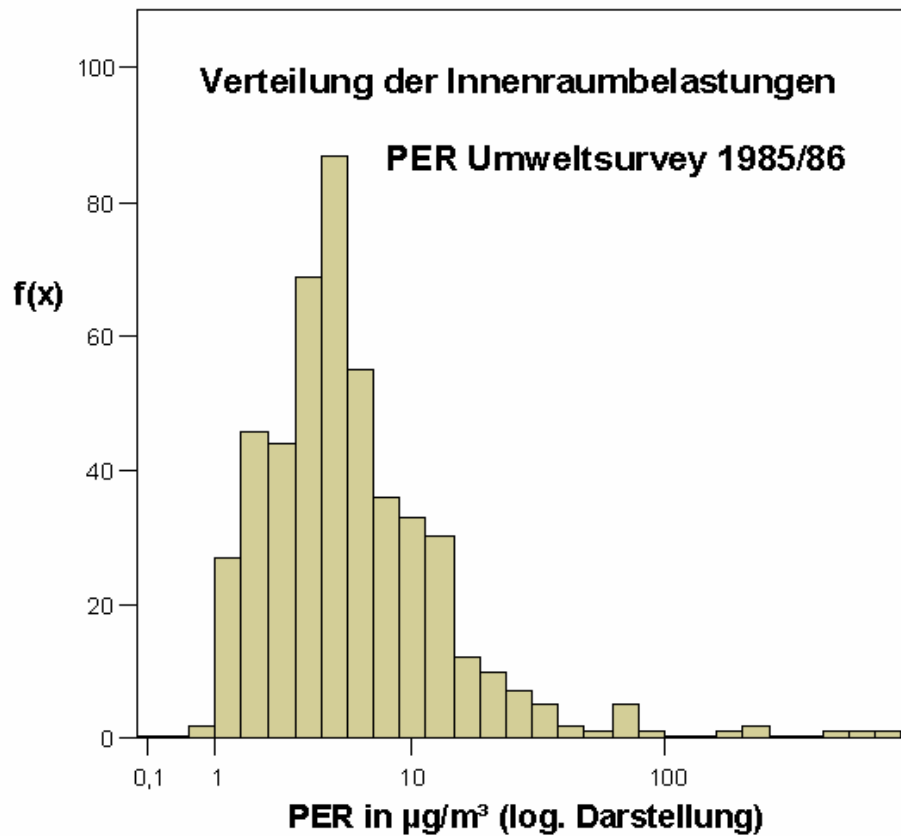
al. (2001) und Lux et al. (2001) von einem geschätzten Mittelwert ($N = 1935$) von $10,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, einem Median von $0,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und einem 95%-Quantil von $34,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Danach wäre zwar die mediane Belastung um den Faktor 5 zurückgegangen, die hohen Innenraum-Konzentrationen bleiben nahezu unverändert.

Die hier analysierten Daten des UBA aus dem Umwelt-Survey 1985/86 sind fein stratifiziert in den UBA-Berichten (Krause et al. 1991) dargestellt. Durch die Überlassung der Daten für Sekundäranalysen im Xprob-Projekt konnte eine ergänzende Analyse zu möglichen Einflussfaktoren erfolgen. Nach dem ersten Anschein könnte aus der Dichteverteilung der UBA-Daten (Abbildung 2.14) auf das Vorliegen einer logarithmischen Normalverteilung geschlossen werden.

Im ersten Schritt wurde eine direkte Anpassung einer theoretisch begründeten Verteilung an die PER-Immissionsdaten versucht: Es konnte keine zwei- oder drei-parametrische Verteilungsfunktion identifiziert werden, die eine hinreichende Anpassungsgüte gezeigt hätten. Nach Logarithmierung der Ausgangsdaten stellt sich die Situation günstiger dar: Die 479 Daten wurden logarithmiert unter @Risk (Version 4.5.2; Palisade 2002) auf Verteilungsanpassung unter der Option einer minimalen Chi^2 -Abweichung (22 äquidistante Klassen) analysiert.

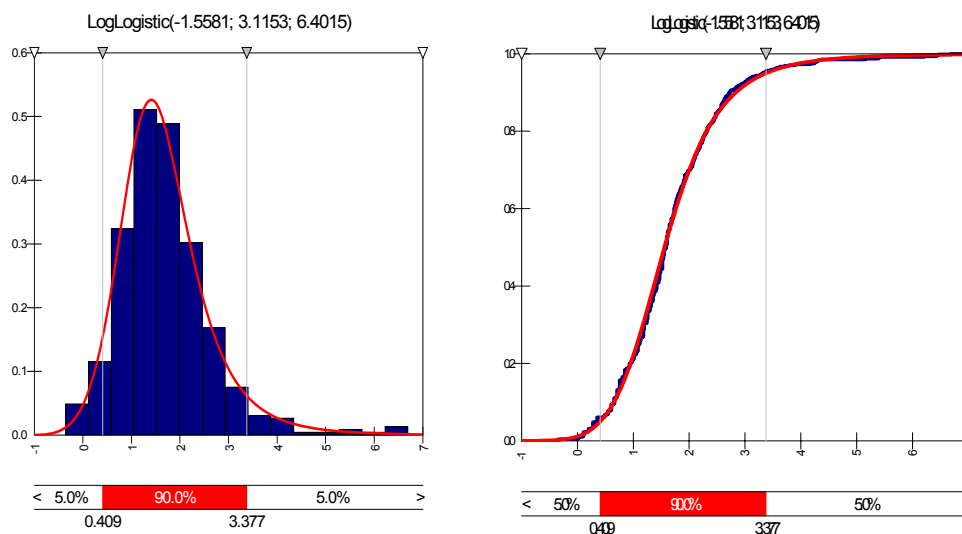
Alleine die loglogistische Verteilung (LLV) erfüllt das Anpassungskriterium mit den drei Parametern (Shift $-1,558$; $b = 3,115$; $a = 6,401$). In den nachstehend dargestellten Grafiken ist die Güte der erreichten Anpassung erkennbar. Im Vergleich der Dichte- und der kumulierten Verteilungsfunktion liegen scheinbar keine systematischen Abweichungen im Zentralbereich oder in den Rändern der Verteilung vor. Die Anpassung der loglogistischen Verteilung an die empirischen Daten der logarithmierten Ausgangsdaten wäre als vergleichsweise gut einzustufen.

Abbildung 2.14 Dichteverteilung der PER-Innenraum-Konzentration (479 Messungen) in logarithmischer Darstellung



(Krause et al. 1991)

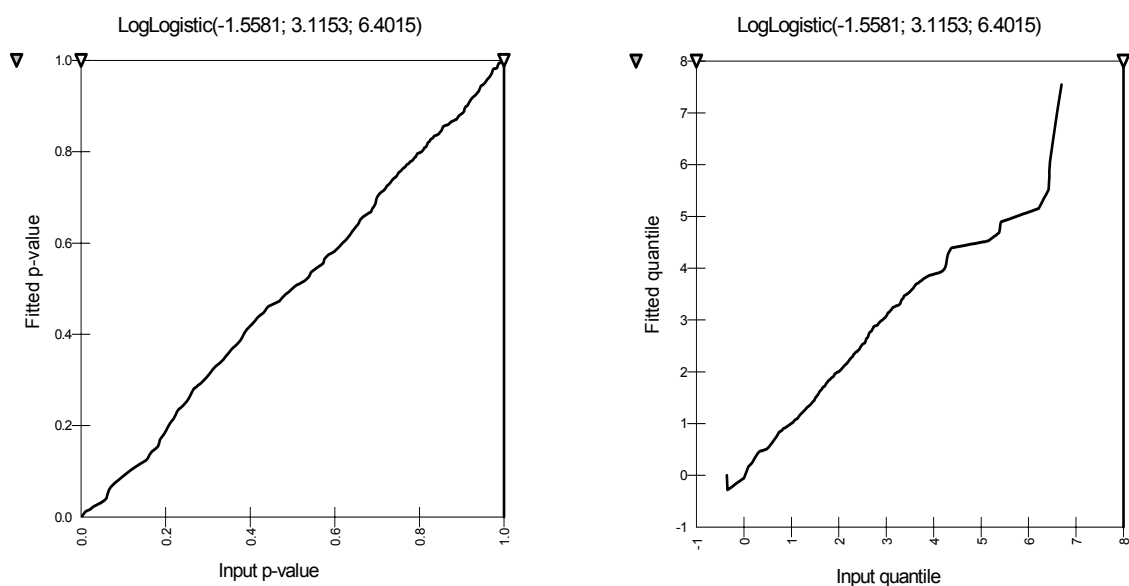
Abbildung 2.15 PER-Innenraumluft-Konzentration: Verteilungsanpassung in @Risk



Die Anwendung eines loglogistischen Verteilungsmodells ist zumindest für den zentralen Bereich der Immissionsdaten zu rechtfertigen. Am rechten Rand kann die LLV jedoch bei Anwendung in der Simulation Extrema generieren, die weder als wahrscheinlich und noch als plausibel einzustufen sind; in einer Simulation mit 50.000 generierten Werten für die PER-Innenraumluftbelastung liegen die 95 %-Quantile der beobachteten und der simulierten Werte noch dicht beieinander. Das 99 %-Quantil der beobachteten Werte weicht bereits deutlich von der Simulation ab (simuliert 121 ~ beobachtet 224 $\mu\text{g}/\text{m}^3$). In den Maximalwerten der Simulation unter Annahme einer loglogistischen Verteilung (beobachtet 807 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) finden sich Werte von über 500 g/m^3 .

Es wird deutlich, dass (1) nur der zentrale Bereich der empirischen Daten eine sehr gute Übereinstimmung zeigt, aber auch, dass (2) der rechte Rand der Verteilung nicht in seinen Anteilen, jedoch in der Höhe der aus der Simulation zu erwartenden Realisierungen völlig überschätzt wird. Die Betrachtung eines P-P-Plots hätte nicht auf diese Schwäche hingewiesen (Abbildung 2.16a), alleine ein Q-Q-Plot (Abbildung 2.16b) weist auf den hohen Grad der Abweichung im oberen Bereich der Verteilung. Nach den vorliegenden Erfahrungen sollte bei einer „besten“ Anpassung an eine loglogistische Verteilung immer geprüft werden, ob die in den Daten abgebildete Grundgesamtheit überhaupt als homogen anzusehen ist. Liegt eine Mischung von Subgruppen mit unterschiedlichen Umweltbedingungen (und Expositionsparametern) vor, so erscheint die nach rechts stärker variierende loglogistische Verteilung als geeignet, ohne es tatsächlich zu sein.

Abbildung 2.16 P-P-Plot (a, links) und Q-Q-Plot (b, rechts): Anpassung der loglogistischen Verteilung an die PER-Innenraum-Konzentrationen



Sofern sich durch die Verteilungsanpassung Probleme dieser Art ergeben (Fehleinschätzung der Spannweite (Range) der simulierten Werte), ist zu prüfen, ob dies Auswirkungen auf das Ergebnis der Simulation hat. Sind alleine die Extremwerte der Simulation (also Werte höher als das 99,99 %-Quantil) betroffen, mag die Nutzung einer solchen Verteilung gleichwohl vertretbar bleiben, da die Maxima, wegen ihrer hohen Abhängigkeit von Anzahl der Simulationsschritte, in der Regel nicht die Aussage der Simulationsrechnung verändern und daher in den Ergebnisberichten meist auch nicht dargestellt werden. Da hier aber gleichzeitig die sachlogische Ebene der Modellbegründung z. B. durch die Begrenzung der möglichen Immissionswerte durch die maximale Sättigung in Medium Luft verlassen wird, kann eine statistische Argumentation nicht stärker sein als eine fachliche Begründung. Dieses Problem ist nicht auf die Nutzung einer loglogistischen Verteilung begrenzt, auch bei der üblicheren Anwendung von logarithmischen Normalverteilungen sollte auf dieses mögliche Problem geachtet werden.

Neben den genannten Problemen der statistischen Anpassung einer Verteilung kann auch hinterfragt werden, ob die Wahl einer „unkonventionellen“ Verteilung (loglogistische Verteilung der logarithmierten Werte) für die Beschreibung der Immissionssituation, wie hier der loglogistischen Verteilung, als angemessen anzusehen ist. Die Antwort wird sicherlich u. a. von der wissenschaftlichen Herkunft der Datennutzer bestimmt. Ein Modell unter Annahme einer Lognormalverteilung ist in Teilen fachlich-inhaltlich begründbar, für die Anwendung eines loglogistischen Verteilungsmodell liegen dem Autor keine inhaltlichen Begründungen für den generativen Prozess vor, die eine Nutzung dieses Verteilungstyps in der Simulation rechtfertigen könnte.

Alternativ könnte eine Entscheidung getroffen werden, völlig auf eine statistische Modellbildung (Auswahl eines Verteilungstyps und seiner Parameter) zu verzichten. Dann könnte die empirische Verteilung als Grundlage für eine Simulation herangezogen werden.

Tabelle 2.9 Empirischen Quantile der Innenraumluftbelastung (Umwelt-Survey 1985/86)

Quantile	Min.	5	10	25	50	75	90	95	99	Max.
Perchlorethylen [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	0,7	1,4	1,9	3,0	4,8	8,6	15,2	27,7	224,3	807,0

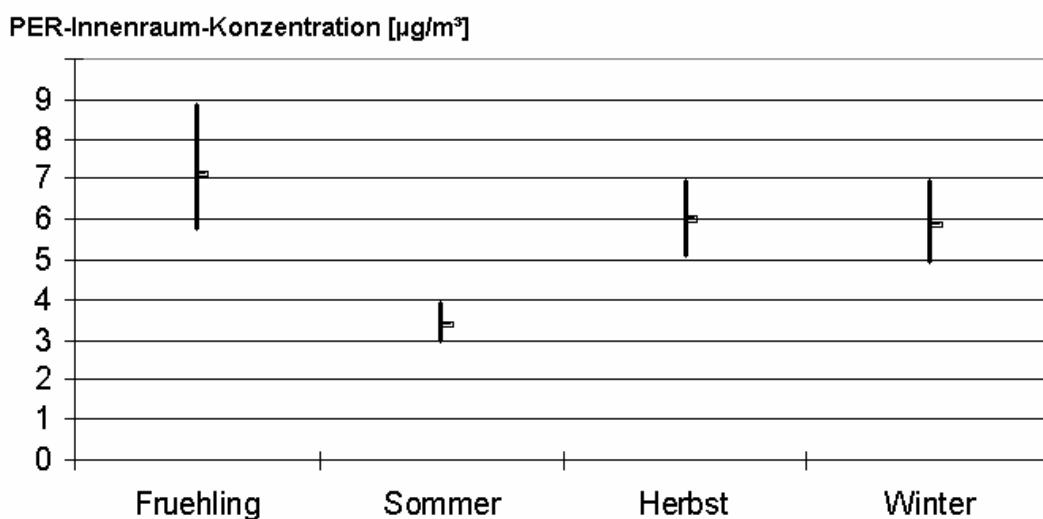
Diese Vorgehensweise hat den Vorteil, dass keine gesonderten Verteilungs- und Modellanalysen für die Eingangsgrößen durchzuführen wären und die empirische Datenlage gleichwohl hinreichend abgebildet würde. Gleichzeitig hat sie allerdings den Nachteil, dass „Was ..., wenn ...?“-Analysen ebenso wenig durchführbar wären wie Sensitivitätsbetrachtungen. U. a. aus diesem Grund wird eine vertiefte Analyse der Einflussfaktoren in dieser Anwendungsstudie versucht.

2.4.2.1 Analyse der Einflussfaktoren auf die Innenraumluft-Immission

Auch nach einer logarithmischen Transformation (Normalisierung) zeigte die Dichte der PER-Innenraumluftbelastung in den Daten des Umweltbundesamtes noch eine rechtsschiefe Verteilung mit einzelnen Datengruppen hoher Werte an. Wird in den Daten geprüft, welche Faktoren zu Messungen über $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($\text{Ln}(20) \sim 3$) beigetragen haben (logistische Regression), so ist zu erkennen, dass die Fragebogenangabe „Industrie in 1 km Umfeld“ (Prävalenz = 12,3 %) die Wahrscheinlichkeit für Werte $> 20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ um den Faktor 2,5 erhöht. Es ist also davon auszugehen, dass die Verteilung der Immissionswerte einer Mischverteilung darstellt, d. h. eine Zusammensetzung von ggf. auch unterschiedlichen Verteilungstypen mit abweichenden Parametern.

Eine der identifizierbaren Einflussgrößen auf die Heterogenität der Messungen ist die Jahreszeit der Messung (siehe auch Seifert et al. 1989). Abbildung 2.17 zeigt die Parameterschätzung für die vier Jahreszeiten. Danach liegt in den Daten des UBA eine Tendenz zu niedrigeren Belastungen im Innenraum in der Sommerperiode vor. Eine mögliche Erklärungshypothese wäre eine intensivere Lüftung (bzw. höhere Luftaustauschrate) im Sommer. In der Konsequenz wird in einem Modell für die Prädiktion der PER-Innenraumluft-Konzentration ein Jahreszeitenfaktor (Senkung für die Sommermonate) zu berücksichtigen sein.

Abbildung 2.17 PER-Innenraumluft-Konzentration in Abhängigkeit von der Jahreszeit der Messung (Mittelwert)



Für den im Rahmen des Umwelt-Surveys erfassten Einflussfaktors „Industrie/Gewerbe in einem bzw. drei Kilometer Nähe“ belegt die Regressionsanalyse einen eigenständigen, statistisch bedeutsamen Beitrag, der monoton mit der Nähe zu Industrie und Gewerbe ansteigt. Die statistische Signifikanz zeigt sich allein für den Nahbereich (Tabelle 2.10).

Tabelle 2.10 Regressionskoeffizienten für die Zielgröße „PER-Konzentration der Innenraumlufte“: Prädiktorvariable „Nähe zur Industrie 1 km“ und Prävalenzschätzung „Nähe zu Industrie und Gewerbebeeinträchtigungen“

	Häufigkeit	%	Cum %		B	Sign.	95%-KI -	95%-KI +
KEINE INDUSTRIE	130	27,1	27,1	(Konstante)	1,50	0,00	1,34	1,67
3 KM - UMKREIS	170	35,5	62,6	Industrie 3 km	0,11	0,34	-0,11	0,33
1 KM - UMKREIS	179	37,4	100,0	Industrie 1 km	0,38	0,00	0,16	0,60
Summe	479							

Da auch die Variable „Wohnumfeld“ bedeutsame Beiträge zeigte, wurde ein gemeinsames Vorhersagemodell für die PER-Innenraumluftekonzentration unter Berücksichtigung der drei genannten Variablen entwickelt. Die Ausgangsdaten wurden vor der Analyse logarithmisch transformiert.

Tabelle 2.11 Regressionskoeffizienten für die Zielgröße „PER-Konzentration in der Innenraumlufte“: Prädiktorvariable „Nähe zur Industrie“, „Sommer“ und „Kategorie ländliche, vor- bzw. vorstädtische und städtische Umgebung“ und Prävalenzschätzung

	Häufigkeit	%	Cum %		B	Sign.	95%-KI -	95%-KI +
STAEDTISCH	115	24,8	24,8	(Konstante)	1,64	0,00	1,49	1,79
VORSTAEDTISCH	158	34,1	59,0	Industrie 1km	0,20	0,02	0,03	0,38
LAENDLICH	190	41,0	100,0	Sommer	-0,61	0,00	-0,80	-0,43
Summe	463			Vorstadt	0,20	0,04	0,01	0,39
				Stadt	0,29	0,01	0,08	0,51

Das Ergebnis der Regressionsanalyse zeigt, dass die genannten Einflussfaktoren zur Höhe der PER-Konzentration in der Innenraumlufte statistisch bedeutsam beitragen. Der Determinationskoeffizient R^2 liegt mit 0,13 jedoch vergleichsweise niedrig. Das Ergebnis in Kurzform lautet: Je industrieller ein Umfeld ist, desto höher die Innenraumluftebelastung; je städtischer ein Wohnumfeld ist, desto höhere Innenraumluftekonzentrationen sind zu erwarten; in den Sommermonaten kann unabhängig von den genannten Größen, von einer niedrigeren PER-Innenraumluftekonzentration ausgegangen werden. Ein angemessenes Modell zur Prädiktion der PER-Innenraumluftekonzentration könnte unter Nutzung der jeweiligen Expositionsprävalenzen und Regressionskoeffizienten folgende Struktur aufweisen:

$$\text{Innenraumlufte-Konzentration} = f(\text{Baseline} \\ + \text{Industrienähe} \\ + \text{Wohnregion} \\ + \text{Saison} \\ + \text{Residualvarianz} \sim \text{Zufallsvariation}).$$

Abgeleitet hieraus kann in der Simulation eine Verteilung generiert werden, in der entsprechend der Prävalenz der Zusatzbeiträge die additiven Beiträge im logarithmierten Modell entsprechend addiert werden können (z. B. Zufallsziehung aus der Regionenzuordnung Tabelle 2.11 und Addition von 0,2 beim aktuellen Merkmal „Vorstadt“ bzw. 0,29 beim Merkmal „Stadt“ oder Null beim ländlichem Umfeld). Im Prinzip wird hierdurch versucht, eine Mischverteilung nachzubilden. In einer Simulation mit 10.000 Iterationen kommt man mit diesem Ansatz zu folgenden Ergebnissen (s. Tabelle 2.12):

Tabelle 2.12 PER-Immission: Simulationsrechnung für eine inhomogene Verteilung der PER-Innenraumluf-Konzentration [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

Quantile	5	25	50	75	95	99
Empirisch	1,4	3,0	4,8	8,6	27,7	224,3
Simulation	1,1	2,9	5,5	10,6	26,6	50,3

Im zentralen Bereich der Verteilung findet sich eine vergleichsweise gute Anpassung, in den höheren Quantilen ist die Variation eingeschränkt. Dies wäre auch aus theoretischen Überlegungen zu erwarten gewesen, da durch einen vereinfachten Modellierungsansatz die tatsächliche Variation (inklusive aller Sonderbedingungen an den gemessenen Standorten) nicht durch ein Prädiktionsmodell ausgeschöpft werden kann. Die allen Messungen gemeinsame Grundbelastung wird durch den „Baseline“-Parameter erfasst. Die nicht aufgeklärte Varianz wird als „Residualvarianz“ in das Modell aufgenommen. Im Vergleich zeigt sich, dass die Simulation die empirische Varianz unterschätzt. Dieser Effekt beruht auf dem Umstand, dass die Variation in den Bedingungen, die zu einer höheren Innenraumkonzentration beitragen (also z. B. die Variation im Umfeld verschiedener Industrieanlagen), nicht durch ein additives Modell abgebildet werden können, die bekannten Einflussfaktoren nur durch einen „mittleren Zu- oder Abschlag“ in der Berechnung berücksichtigt werden.

2.4.2.2 Einflussfaktor Chemischreinigungen

Die wesentliche Einflussgröße „Nachbarschaft zu einer Chemischreinigung“ ist aus diesem Datensatz in ihrer Wirkung auf die Innenraumlufkonzentration nicht zu beurteilen. In einer repräsentativen Erhebung von Personen und untersuchten Wohnungen ist die Anzahl von Datensätzen mit einer Chemischreinigung in der Nachbarschaft so gering, dass nur Sonderuntersuchungen diesen Beitrag angemessen quantifizieren können.

Zu dieser Frage stellten zusammenfassend Baumann et al. (2003) fest, dass zahlreiche Untersuchungen zeigen, dass mengenmäßig betrachtet der Übertritt aus Chemisch-Reinigungsbetrieben in unmittelbar benachbarte Räume als die bedeutendste Ursache erhöhter Konzentrationen an PER in nicht gewerblich genutzten Innenräumen anzusehen ist. Ein Übertritt von PER ist hierbei von zahlreichen Faktoren wie z. B. der Stärke von Luftströmungen im Gebäude, der

Diffusions- und Speicherfähigkeit des verwendeten Baumaterials gegenüber PER und dem Wartungs- und Betriebszustand einer angrenzenden Anlage (Chemischreinigung bzw. PER-nutzender Reinigungsbetrieb) abhängig. Das Lüftungsverhalten der Benutzer benachbarter Räume oder die vorherrschende Windrichtung sind weitere Faktoren, die das Konzentrationsniveau beeinflussen. Garento und Gochfeld (2000) zeigen in ihrer Übersicht von Messreihen in der Nachbarschaft von Chemischreinigungen, dass PER-Innenraumluft-Konzentrationen aus Wohnungen in der direkten Nachbarschaft von Chemischreinigungen im Median zwischen 0,5 und 3,8 mg/m³ (Mittelwerte zwischen 0,77 und 11,6 mg/m³) liegen, also mindestens den Faktor 100 über dem Wert von 4,5 µg/m³ (Median), wie er im Umwelt-Survey 1985/86 ermittelt wurde.

Die Studie von Begerow et al. (1996) weist für den geometrischen Mittelwert von PER im Blut von Frauen, die in der Nachbarschaft von Chemischreinigungen leben, auf um den Faktor 7 (Essen) bzw. 9 (Borken) erhöhte Werte. Die Abweichungen in der Innenraumluft werden in der Publikation nicht berichtet.

Durch Änderung der Technik (und der eingesetzten Chemikalien) und durch die Verlagerung der technischen Reinigungsanlagen weg von den Annahmestellen wird sich die Expositionslage der Bevölkerung im Zeitraum seit Beginn der 90er Jahre vermutlich vermindert haben. Unsicherheit verbleibt in der Modellsimulation bezüglich der Größenordnung der Prävalenz des Wohnens in der unmittelbaren Nachbarschaft von Chemischreinigungen. Sie wird sich zwischen städtischen und ländlichen Regionen voraussichtlich unterscheiden.

2.4.2.3 Personal-Sampler-Messungen des Umweltbundesamtes

Um den möglichen Beitrag der Nachbarschaft zu oder der Nutzung von Chemischreinigungen beurteilen und quantifizieren zu können, wurde ergänzend ein vom UBA bereit gestellter Datensatz zu Personal-Sampler-Messungen (UBA 2003) analysiert. Bei 113 Personen wurden im Umwelt-Survey 1990/92 PER-Messungen mittels Personal Sampler durchgeführt (UBA 2002c). Die Daten wurden erneut explorativ unter folgenden Fragestellungen ausgewertet:

- In welcher Größenordnung liegen die über sieben Tage summativ gesehenen Expositionen aus der Umgebungsluft?
- Lassen sich Assoziationen zur Nachbarschaft von Industriebetrieben bzw. von wahrgenommenen Umweltbelastungen zeigen?
- Gibt es Hinweise auf Assoziationen zwischen Messungen und Nutzung von Chemischreinigungen?
- Gibt es Hinweise auf Assoziationen zur Aufenthaltszeit in verschiedenen Umweltmedien?

Da die durch Personal Sampler gemessenen PER-Konzentrationen das gemittelte Integral über sieben Tage Expositionszeit abbilden, kann die Analyse dieses Datensatzes Hinweise auf die durchschnittlich zu erwartende Expositionshöhe im gesamten Lebensumfeld der untersuchten Personen geben (Ta-

belle 2.13). Da die Personal-Sampler-Messung nicht auf die Innenraumkonzentrationen und das Wohnumfeld beschränkt sind, beschreiben sie näherungsweise die mittlere Immission.

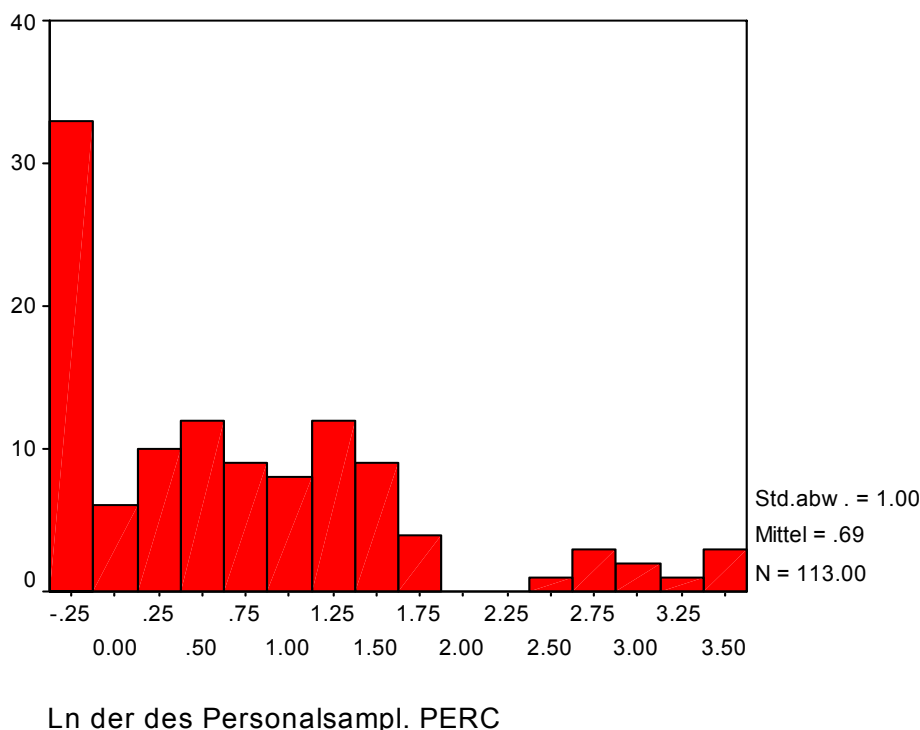
Tabelle 2.13 Deskriptive Kennwerte der gemessenen PER-Konzentration im Personal Sampler (N = 113), als Indikator der 7-Tage-Exposition, Daten: US 1990/92

Einheit	Min	Max	aMean	aStd	gMean	gStd	25 %	50 %	75 %	90 %	95 %
µg/m³	0,00	31,20	3,81	6,30	2,00	2,72	0,70*	1,77	3,77	5,74	21,54

* Nachweisgrenze: 0,7

Die logarithmisch transformierten Werte des Personal Sampling sind in Abbildung 2.18 dargestellt. Aus dieser Ansicht wird deutlich, dass die Dichteverteilung der summativen PER-Konzentration aus (mindestens) drei Verteilungen als Mischverteilung zusammengesetzt ist. Ca. 30 Prozent der Personen zeigen Konzentrationen kleiner/gleich der Nachweisgrenze; neun Prozent der Werte (N = 10) liegen deutlich über dem Mittelbereich der Verteilung und weisen PER-Konzentration von über 8 mg/m³ auf.

Abbildung 2.18 Gemessene PER-Konzentration in Personal Samplern

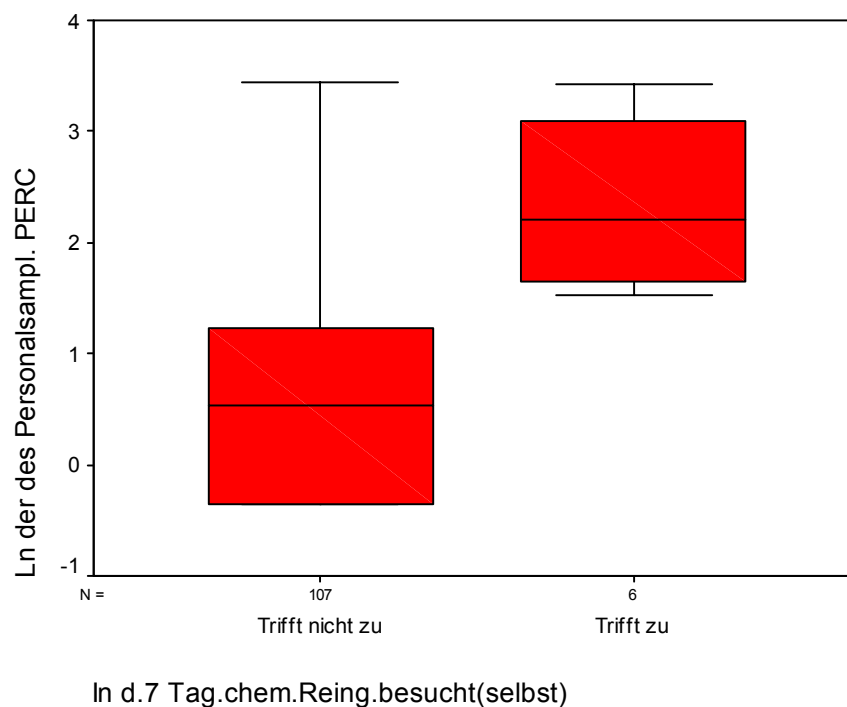


Ordinate: Logarithmische Darstellung der Messungen
Abszisse: Anzahl der Messungen von insgesamt 113 Messungen

Zu den Einflüssen, die zu Werten mit hoher PER-Konzentration im Personal Sampler geführt haben, gehört der Besuch einer Chemischreinigung in den vorausgehenden sieben Tagen (Abbildung 2.19) oder das Tragen von chemisch gereinigter Kleidung (N = 4). Die gemessenen PER-Passivsammler-Konzentrationen bei Besuch einer Chemischreinigung liegen statistisch bedeutsam ($p < 0,001$) um ca. den Faktor 8 höher (unter Ausschluss aller Werte unter der Nachweisgrenze um den Faktor 3,7). Dieses Ergebnis ist konsistent mit der aus Begerow et al. (1996) abzuleitenden Erhöhung der Exposition und Körperlast. Dieses sachlich plausible Ergebnis beruht jedoch auf einer sehr schmalen Datenbasis; eine Differenzierung zwischen dem Besuch der Chemischreinigung und dem Tragen von chemisch gereinigter Kleidung kann nicht getroffen werden, da diese Daten voraussehbar personenbezogenen korreliert sind.

Ein Zusammenhang zwischen den Personal-Sampler-Konzentrationen und der Angabe von Industrie/Gewerbe im Umkreis von 3 km oder der Wahrnehmung von Gerüchen und Dämpfen/Gasen/Rauch als Umweltbelastung ist aus den Daten nicht abzuleiten. Personen, die in großen Wohnungen (Item: „m² der Wohnung“) leben, zeigen bedeutsam häufiger Werte von PER-Konzentrationen unter der Nachweisgrenze (Kendall's Tau = 0,23, $p < 0,01$); die Höhe der Wohnräume zeigt keine Assoziation.

Abbildung 2.19 PER-Innenraumluftkonzentration im Personal Sampler in Abhängigkeit zum Besuch einer Chemischreinigung in den vergangenen 7 Tagen



Von den differenziert erfragten Aufenthaltszeiten in verschiedenen Umgebungen (Wohnzimmer, Küche, Bad, Büro, Pkw, Werkstätten etc.) zeigt die Aufenthaltszeit im Wohnzimmer eine schwach positive Assoziation (Rangkorrelation: Spearman's Rho = 0,29; $p < 0,01$), die Aufenthaltszeit im Schlafzimmer eine schwach negative Assoziation (Spearman's Rho = -0,26; $p < 0,01$). Diese Aussage erscheint wegen des anzunehmenden höheren Lüftungsverhaltens im Schlafbereich plausibel. Die Aussage ist jedoch mit einem Vorbehalt zu treffen, da das Ergebnis eines systematischen Zusammenhanges unter Ausschluss aller Personal-Sampler-Konzentrationen unter der Nachweisgrenze nicht stabil ist.

Als Ergebnis der Zusammenfassung von Daten und Auswertungen kann das im Abschnitt 2.4.2 vorgestellte Modell der Prädiktion der Innenraumluftbelastung auf der Basis eines Regressionsmodells um den Einfluss des Tragens/Nutzens von chemisch gereinigter Kleidung bzw. der Nachbarschaft zu Chemischreinigungen erweitert werden. Als vorläufiger, nicht ausreichend durch Daten abzusichernder (und damit unsicherer) Schätzer wird für die Prävalenz der Nachbarschaft ein Wert von 0,1 Prozent und für das Tragen von PER-gereinigter Kleidung bzw. Einbringen von chemisch gereinigten Produkten in die Wohnung ein Wert von 0,5 Prozent (4 Nennungen über sieben Tage Befragung bei 113 Personen) angenommen. Die herangezogenen Studien sind bezüglich der Häufigkeit der Nachbarschaft zu Emittenten sicherlich nicht als repräsentativ anzusehen. Die Güte dieses Prävalenzschätzers sowie der angenommene Steigungsfaktor von 8 gegenüber der Grundbelastung sind allerdings nur schwach belegt.

Ohne die Berücksichtigung der Residualvarianz, also die Einbeziehung der nicht durch das Regressionsmodell erfassten Variation, wäre das Modell deutlich in der Spannweite (Range) der Prädiktion eingeschränkt. Wird eine Modellierung über eine Lognormalverteilung für die Gesamtverteilung vorgesehen, dann kann die Residualvarianz aus der Regressionsgleichung grob geschätzt und im Modell als additiver Beitrag einer simulierten Normalverteilung (Mittelwert=0, Streuung=0,92) vor der Transformation

$$\text{Innenraumluft-Konzentration} = e^{\text{Summe der Einflussfaktoren} + \text{Residualvarianz}}$$

berücksichtigt werden. Hierdurch wird die Varianz in der Grundbelastung nachgebildet und die Spannweite der Prognosen verteilungsangemessen erhöht. Unsicherheit bezüglich der aufgenommenen Variablen könnte schrittweise über die Standardfehler der Regressionsschätzer in das Modell aufgenommen werden.

In der nachfolgend dargestellten Tabelle 2.14 werden die empirischen Quantile mit den Ergebnissen aus zwei Simulationen verglichen. Die Simulation A beschreibt die Ergebnisse, wie sie sich unter den oben genannten Prävalenzannahmen ergeben; unter diesen Bedingungen wird die Variation im oberen Bereich zu niedrig eingeschätzt. Nimmt man an, dass die Prävalenz für das Tra-

gen von PER-belasteter Kleidung ebenso wie für die Nachbarschaft zu Chemischreinigungen jeweils 1 Prozent beträgt, ergeben sich die unter der Simulation B dargestellten Quantile.

Tabelle 2.14 Ergebnisse der Simulation der Personal-Sampler-Verteilung durch ein Regressionsmodell und gemessene Daten (N = 10000)

Quantile	5 %	25 %	50 %	75 %	95 %	99 %
Empirisch	1,4	3,0	4,8	8,6	27,7	224,3
Simulation A	1,1	2,9	5,5	10,5	27,0	57,7
Simulation B	1,1	2,8	5,3	10,4	31,4	222,6

Unter den aufgeführten Annahmen der Simulation A wird die Variation zu niedrig eingeschätzt, unter den Annahmen des Modells B können die im Umwelt-Survey 1985/86 gesehenen PER-Innenraumbelastungen durch eine Simulation unter Berücksichtigung der Prävalenz und Stärke der Einflussfaktoren näherungsweise angepasst werden. Unter diesen Bedingungen ergeben sich aus einer einfachen Sensitivitätsanalyse die nachfolgend in Tabelle 2.15 dargestellten Ergebnisse. Die Rangkorrelationen zwischen der Zielgröße „mittlere äußere PER-Konzentration“ und den Einflussfaktoren zeigt, dass im Sommer mit einer niedrigeren Exposition zu rechnen ist, die Einflussfaktoren „Tragen von PER-gereinigter Kleidung“, „großstädtisches Umfeld“ und „Nachbarschaft zu Industrie und Gewerbe“ zeigen ein in der Größenordnung gleichen Einfluss auf die Variation der Zielgröße, die „Nachbarschaft zu Chemischreinigungen“ einen geringeren Beitrag.

Tabelle 2.15 Ergebnisse der Simulation der Personal-Sampler-Verteilung: Spearman's Rangkorrelationen Zielgröße ~ Einflussgrößen (N = 10000)

Sensitivität	Industrie	Sommer	Region	Chem. Reinigung	PER-Kleidung
Rangkor.	0,09	-0,25	0,11	0,05	0,12

Das Ergebnis der Sensitivitätsanalyse belegt aber auch, dass in der Prävalenz niedrig angesetzte, in der Erhöhung des Beitrages aber starke Einflussfaktoren (Chemischreinigung) das Gesamtergebnis nur geringer beeinflussen. Dies sollte bei der Interpretation von Ergebnissen immer berücksichtigt werden.

2.4.3 Personenbezogene Variation des individuellen Verhaltens

2.4.3.1 Modellierung der innenraum- und außenluftbezogenen Aktivitäten und Atemraten

Um die Aufnahmemenge von PER über die Atemluft für eine Zeiteinheit abzuschätzen, sind zwei Größen zu kombinieren: Die Konzentration im Medium Luft und die Atemrate. Modellansätze für eine variations- bzw. verteilungsbasierte Abschätzung der Konzentration im Innen- und Außenluft-Bereich wurden in den vorausgegangenen Abschnitten gezeigt. Die Atemrate [m^3/h] ist eine vom Alter, vom Geschlecht, von der Konstitution (Körpergewicht bzw. – oberfläche) und der jeweiligen Aktivität (dem kalorischen Energieumsatz) abhängige Variable. Die Einbeziehung von Zeit- und Aktivitätsbudgets in Expositionsabschätzungen ist insbesondere für die Analyse von Inhalationsszenarien wesentlich. Das Inhalationsverhalten von Menschen variiert innerhalb eines Tagesablaufs über die Aktivitäten und über die Wochentage erheblich. In den Ruhephasen sinkt die aktivitätsabhängige Atemrate nahezu auf das für den Grundumsatz erforderliche Niveau. Es steigt im Wachzustand an, bei leichten und insbesondere schweren Arbeiten und Aktivitäten kann es auf ein Vielfaches des Grundumsatzes ansteigen.

2.4.3.2 Integration: Exposition über einen Tag

Für die Betrachtung der PER-Aufnahmemenge eines simulierten Tages müssen die Aufnahmemengen über die Aktivitäten und korrespondierenden Atemraten integriert werden. Wählt man hierfür ein einfaches Matrixschema mit den Aktivitätsniveaus als Spalten und dem Aufenthalt (in Stunden) in den Medien Innen- und Außenluft als Zeile, so kann sich ein Tag aus einer variablen Zusammensetzung ergeben (Tabelle 2.16). Die Tabelle beinhaltet bereits eine Vereinfachung, indem sie Aufenthaltszeiten in PKWs, Verkehrsmitteln, usw. schon zwei Klassen zuordnet. Sowohl die Innenraum- wie die Außenluft kann dabei erhebliche Variation aufweisen; Expositionen am Arbeitsplatz werden nicht berücksichtigt. Sicher ist, dass ein Tag sich aus 24 Zeitstunden zusammensetzt, für den Winter kann ganz überwiegend von Schlaf im Innenraum ausgegangen werden. Die Festlegung der Zellinhalte bezüglich ihrer Verteilung stellt pro Individuum und stärker noch für eine zu beschreibende Bevölkerung ein Kernproblem dieser Analyse dar.

Tabelle 2.16 Aufteilung eines Tages nach Aktivitätsniveaus und Aufenthalt im Innenraum und in der Außenluft (markiert: einfach erfassbare Daten)

		Aktivitätsniveau				
Zeit [h]	Schlaf	Sitzen	Leicht	Mäßig	Intensiv	Summe
Innenraum						
Außenluft						
Summe						24

Die Ausgangslage für die erforderliche gemeinsame Betrachtung der Zeitbudgets im Innen- und Außenluftbereich (und in anderen Medien), die zuzuordnenden Aktivitätsstärken und hieraus abgeleitet die Atemraten gestaltet sich fachlich schwierig:

- (a) Die Summe der Zeitanteile ist für einen Tag auf 24 Stunden begrenzt. Dies ist trivial, hat aber für die Simulation und die erforderliche Datenlage eine gravierende Konsequenz: Eine unabhängige Simulation der Variablen für die Zeitanteile „Schlaf“, „leichte, mäßige... intensive Aktivität“ ist ebenso wenig möglich wie eine unabhängige Zuweisung von Zeitanteilen auf die Innenraum- und Außenbereichsaktivitäten. Eine unabhängige Simulation und anschließende Normierung auf 24-Stunden „unterdrückt“ die Variation insbesondere der „kleinen“ Zeitanteile; diese hätte gerade eine Unterschätzung der Anteile hoher Aktivitätsraten zur Folge.
- (b) Die eingehenden Variablen pro Zelle sind alters- und geschlechtsabhängig.
- (c) Die Daten zeigen auch über Personen einer Alters- und Geschlechtsgruppe eine hohe Variabilität (Ausbildungs-, Berufsstatus, Wegezeiten zur Arbeit, etc).

So kann z. B. isoliert für die Schlafzeit in der Gruppe der Männer, basierend auf den Analysen zum Bundes-Gesundheitssurvey 1998 (BGS 1998) zum Item „Wie viele Stunden/Ruhe schlafen Sie im allgemeinen an einem Wochentag?“ die entsprechende Tabelle in der Datenbank RefXP (zusammen mit einer differenzierten Betrachtung der zugrunde liegenden Verteilung und entsprechender Parameter pro Alters- und Geschlechtsgruppe) gefunden werden. Die isolierte Angabe sagt im besten Fall etwas über die Zelle „Zeit für Schlafen/Ruhe“. Wenn angenommen wird, dass dies (in der Regel) im Innenraum stattfindet, so wäre immer erst nur eine Zelle gefüllt, die anderen wären konditional zu dieser Angabe aufzufüllen. Auch wenn die Verteilung der Randsummen bekannt ist bzw. aus geeigneten Datenquellen geschätzt werden kann, ist die Verteilung der Zeiten innerhalb der Aktivitäts-Zeitanteil-Matrix nur unter Nutzung von Hilfsannahmen zu füllen.

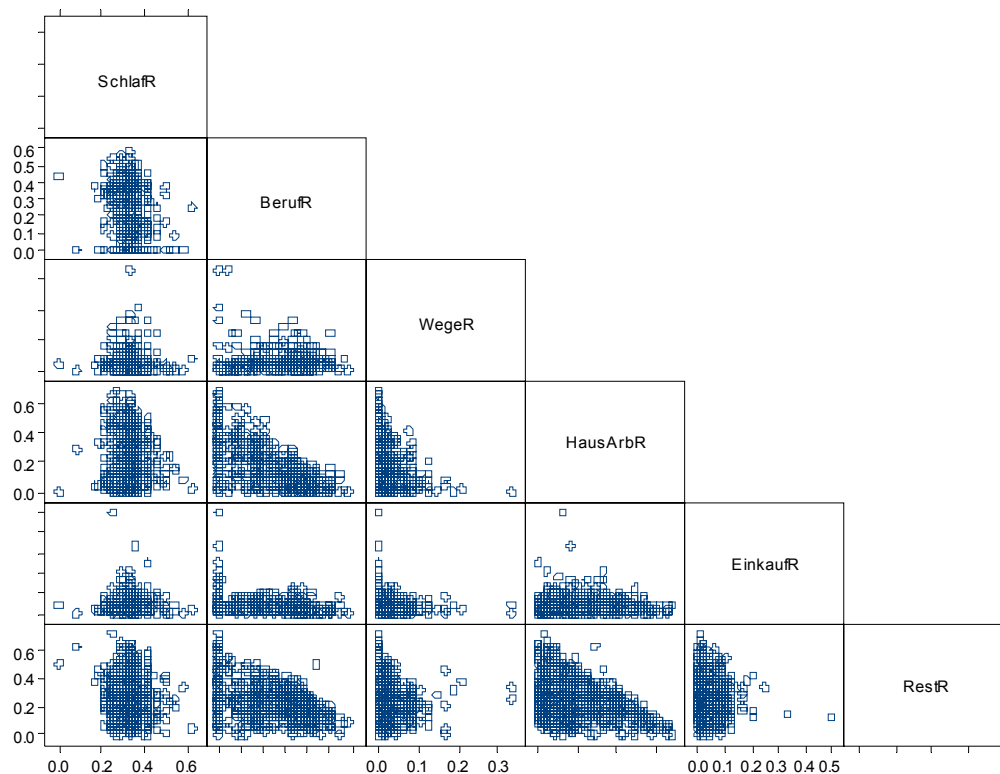
Der AUH (1995) hat eine nur wenig geschichtete Empfehlung für die Aufteilung der Aktivitäten (z. B. keine Geschlechtertrennung) gegeben; in den ICRP-Empfehlungen ist eine alters- und geschlechtsdifferenzierte Aufteilung zu finden (ICRP 2003). Beide Referenzangaben enthalten keine Angabe über den Grad der anzunehmenden Variation. Die Variabilität zwischen den Personen kann ausgehend von diesen Daten nicht geschätzt werden.

Die im Xprob-Projekt aus Surveydaten neu abgeleiteten Aufteilungen nach Aktivitätsgrad (anteilige Aktivitätsverteilung über den Wochentag) und Zeitbudget im Innen- und Außenluftbereich (nach Alter, Geschlecht und Jahreszeit) sind

gleichfalls nur eindimensional analysiert worden, sie können als Kontroll- und Korrekturfaktoren aufgenommen werden. Dass die beste statistische Verteilungsanpassung z. B. für die Schlafzeit, durch eine loglogistische Verteilung (mit einer Tendenz zu höhere Variation) erreichbar ist, steht im Widerspruch zu der inhärenten Begrenzung der Gesamtzeit.

Diese Probleme sind im Projekt frühzeitig diskutiert worden: Es sind unterschiedliche Lösungsansätze konzeptionell und als Simulation realisiert worden, als Problem ergab sich aber immer wieder der Mangel an empirischen Daten für die Schätzung der Parameter. Von den reanalysierten Datensätzen enthält keiner eine Grundlage, die zur Schätzung des Kernbereichs der Zeit-Aktivitäts-Matrix geeignet wäre. Alleine eine Schätzung der Randverteilungen ist möglich, d. h. jeweils die Innen-/Außenzeit und die aktivitätsbezogenen Zeiten.

Abbildung 2.20 Streudiagramm der relativen Zeitanteile von Aktivitäten bei Frauen (Alter 20-34, Datengrundlage NVS 1991) mit den Variablen Schlafen, Beruf, Wegezeiten, Hausarbeit, Einkaufen und Restzeit als Beispiel der Restriktion der Zeitanteile



Die Abbildung 2.20 zeigt die gegenseitige Abhängigkeit und Beschränkung der Zeitanteile für die im Rahmen der NVS erhobenen Aktivitäten bei Frauen zwischen 20 und 34 Lebensjahren (umgerechnet in relative Anteile pro Tag). Fol-

gende Beschränkungen und Eigenschaften des Zusammenhanges sind deutlich aus dem Streudiagramm zu erkennen:

- (a) Alle Zeit-Aktivitätsanteile, mit Ausnahme des Zeitanteils für Schlafen, schließen sich gegenseitig aus, die Datenpunkte liegen weitgehend unter der Diagonalen.
- (b) Eine Nichtberufstätigkeit (erkennbar als Bündelung links in der Spalte Berufstätigkeit) zeigt z. B. für die Hausarbeitsanteile (Zeile) eine große Spreizung. Ein hoher Zeitanteil für Berufstätigkeit ist dagegen mit einem niedrigen Zeitanteil für Hausarbeit gekoppelt.
- (c) Die Datenpunkte sind nicht homogen über die Datenbereiche verteilt (Clusterbildung). Dies deutet auf das Vorliegen einer Mischverteilung (Zusammensetzung der untersuchten Stichprobe aus sich unterscheidenden Teilgruppen) hin. In der Konsequenz müsste eine geeignete Stratifizierung gesucht, entsprechend analysiert und in der Simulation angewandt werden.
- (d) Eine Modellierung der Zusammenhangsstruktur über korrelierte Größen ist für die Gesamtgruppe wegen der Nichtnormalität der Daten (auch nach Transformation) nicht angezeigt, da durch die gegenseitige Begrenzung (nur eine Aktivität und ein Umweltmedium zur Zeit) und die Limitierung der Zeitanteile auf eine Summe von 24 Stunden sich alleine begrenzte und gestauchte Verteilungen ergeben.
- (e) Die Daten selbst weisen nicht auf die Höhe der abzuleitenden Aktivitätsniveaus im Innenraum und im Freien hin, ebenso wenig auf die hieraus abzuleitenden Atemraten. Weiterhin ist kein Bezug zum jeweiligen Umgebungsmedium gegeben.

Mögliche Strategien des Umgangs mit den genannten Problemen könnten in der Entwicklung von Modellansätzen gesucht werden, die eine gestufte Schätzung der Anteile für den Innenraum: (Schlaf + Sitzen + leichte Aktivität usw.) und den Außenluftbereich (Sitzen + leichte, mittelschwere, schwere Aktivität) erlauben.

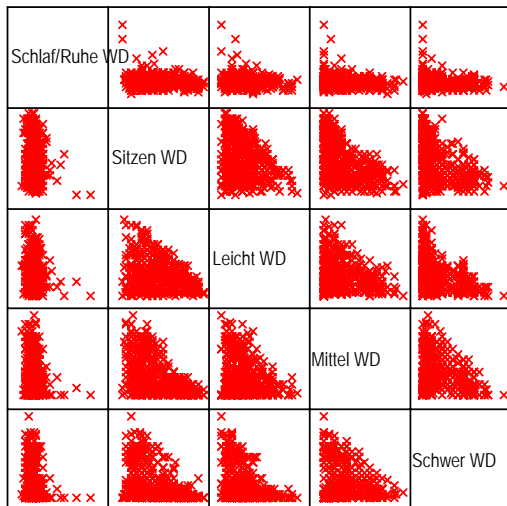
Die Daten des Bundes-Gesundheitssurveys 1998 (Stolzenberg 2000) geben hierfür eine geeignete Grundlage, hier wurde für Wochentage und das Wochenende differenziert nach dem Zeitanteil für den Grad der Aktivität gefragt. Nach Transformation in relative Anteile eines Tages kann eine Aufteilung eines Tages unter Nutzung der Verteilung der Teilaktivitäten erfolgen. Abbildung 2.21 zeigt die Abhängigkeit und gegenseitigen Restriktion der Zeitanteile für die Gruppe der 20-34 jährigen Frauen. Abbildung 2.22 zeigt die Alters- und Geschlechtsabhängigkeit der für verschiedene Aktivitätsgrade. Auch wenn durch das Xprob-Projekt die Datenlage verbessert wurde, ergibt sich auch hier das Problem, dass eine Einzelbetrachtung der relativen Anteile für definierte Aktivitätsniveaus ohne die gleichzeitige Berücksichtigung der anderen Anteile,

d. h. ohne die höhere Dimensionalität des Zusammenhanges und der gegenseitigen Restriktion, unzureichend ist.

Dieses Problem ist methodisch nach Kenntnis der Autoren noch nicht ausreichend analysiert, Lösungsvorschläge für die Realisierung entsprechender Simulationsansätze sind nicht formuliert. Ein praktikabler Ansatz könnte darin bestehen, aus den Originaldaten (hier dem Public Use File des RKI) Datensätze zu ziehen und die dann personenbezogen gebundenen Angaben als Datengrundlage für jeden Simulationsschritt zu nutzen. Dieser sog. Resamplingansatz wird in Standardsoftware wie @Risk nicht unterstützt. In der Umgebung von Analytica[®] (professional version) wäre dies im Prinzip lösbar. Der Ansatz würde es jedoch erforderlich machen, dass die relevanten Datensätze auch als wissenschaftlich zugängliche, vollständig anonymisierte Datenbestände verfügbar wären. Dies wird zurzeit noch von vielen Institutionen, auch solchen die durchgehend durch öffentliche Mittel getragen werden, nicht ausreichend unterstützt.

Abbildung 2.21 Zusammenhangsstruktur der relativen Zeitanteile von Aktivitätsniveaus bei Männern und Frauen abgeleitet aus den Daten des BGS 1998

Männlich, Alter 20-34



weiblich, Alter 20-34

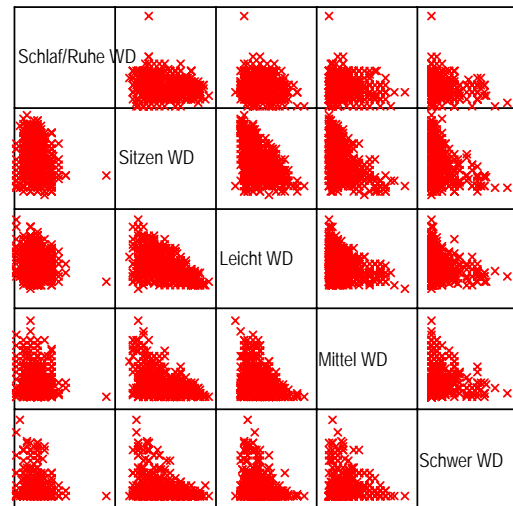
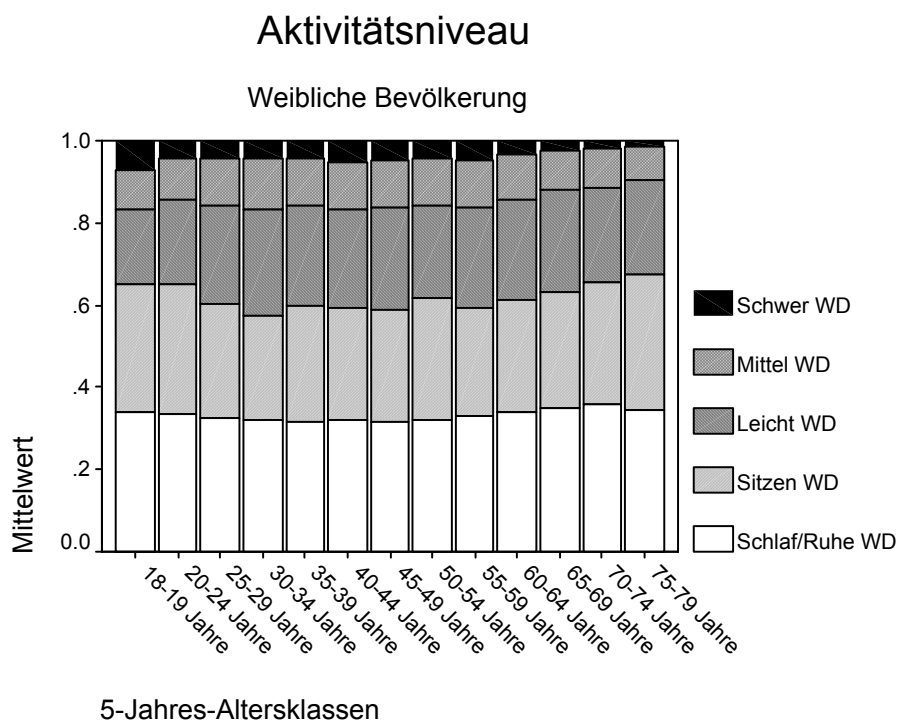
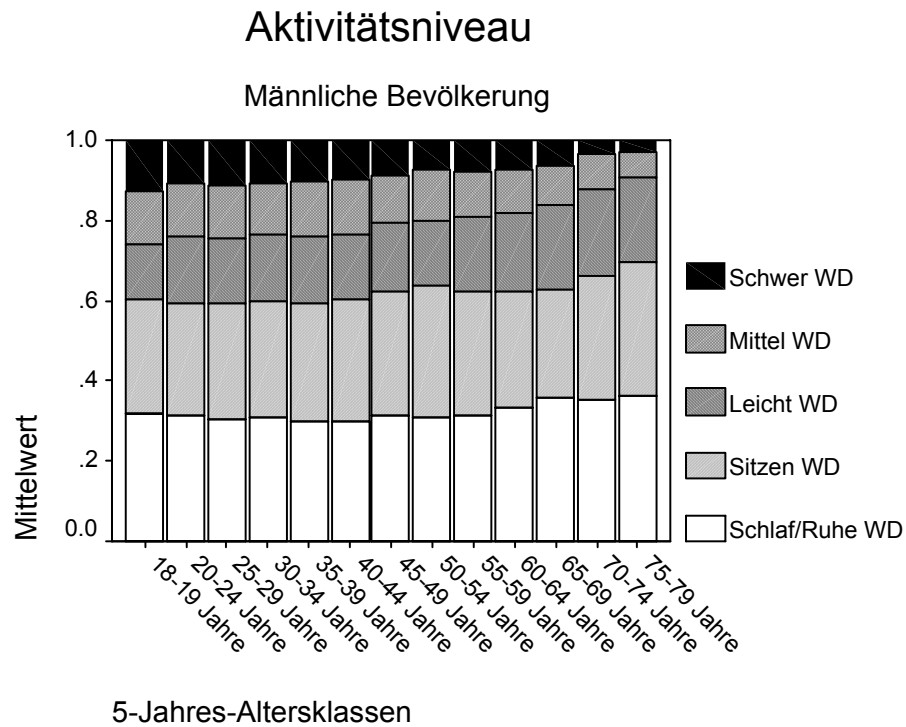


Abbildung 2.22 Alters- und Geschlechtsabhängigkeit der relativen Zeitanteile von Aktivitätsniveaus bei Männern und Frauen abgeleitet aus den Daten des BGS 1998



Im vorliegenden Fall wurde in unterschiedlichen Ansätzen zuerst der Schlafanteil (wegen der vergleichsweise niedrigsten Korrelation zu den anderen Variablen) simuliert, um dann unter Hilfsannahmen eine schrittweise Aufteilung für die erste Zeile vorzunehmen. Dann wurden die verbleibenden Restzeiten simuliert. Es sind unterschiedliche Varianten von entsprechenden Simulationsmodellen (summativ Betrachtung eines Tages, Simulation eines Kalendertages usw.) als Testmodelle realisiert worden. Allen diesen Vorgehensweisen gemeinsam ist das Problem, dass die Variation der „kleineren“ Anteile nicht ausreichend simuliert werden kann oder die Korrelation der Daten untereinander nicht berücksichtigt wird.

Als einzige praktikable Lösung der beschriebenen Probleme, die sich aus der Notwendigkeit einer gleichzeitigen Aufteilung eines Tages, der hohen Interaktion zwischen den Aktivitätsniveaus und der sichtbar großen Heterogenität der Muster in der Population ergeben, wurde ein Ansatz gesehen, der die Muster der individuellen relativen Aktivitätsanteile auf ähnliche Profile untersucht und für die vorgegebene Anzahl der Cluster die jeweiligen Mittelwerte und Streuungen beschreibt. Eine Clusteranalyse von Typ der K-means-analysis (MacQueen 1967) sucht für eine vorgegebene Anzahl von Clustern Schwerpunkte im multivariaten Datensatz, die eine Gruppe von Daten (hier Personen) in ihrem Verhalten charakterisieren können. Diese Cluster werden durch Mittelwertsprofile beschrieben. Problematisch ist die Wahl der Anzahl der Cluster, da hierzu keine allgemein akzeptierten Regeln vorliegen. Das Verfahren ist als explorativ zu bezeichnen, da keine optimale Anzahl von Gruppierungen angegeben werden kann.

Tabelle 2.17 zeigt dies am Beispiel der Aktivitätsaufteilung für junge Männer unter Annahme von fünf Teilgruppen (Cluster). Die deutlichsten Unterschiede zwischen den Profilen ergeben sich im relativen Tagesanteil der jeweiligen Aktivitätsstärken:

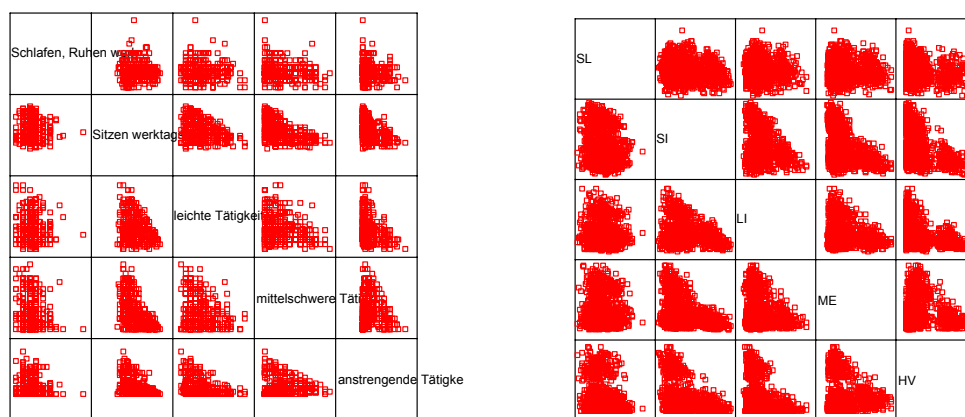
Tabelle 2.17 Aufteilung eines Werktages bei 20 – 29-jährigen Männern nach Aktivitätsgraden; Daten BGS 1998, N = 489 (15 Fälle fehlen)

	Cluster/Profil				
	1	2	3	4	5
Schlafen, Ruhen werktags (h/d)	7,3	7,3	6,9	7,2	8,0
Sitzen werktags (h/d)	11,7	5,0	3,9	3,8	6,9
leichte Tätigkeit werktags (h/d)	2,8	9,0	2,3	2,9	4,1
mittelschwere Tätigkeit werktags (h/d)	1,3	1,9	2,0	8,0	2,9
anstrengende Tätigkeit werktags (h/d)	0,9	0,8	8,9	2,3	1,9
Relativer Anteil der Cluster-Gruppe	0,278	0,147	0,155	0,204	0,215

In der Simulation muss dann (entsprechend der relativen Gruppengrößen) ein Tagesprofil pro simuliertem Objekt (unter Berücksichtigung des jeweiligen Mittelwertes und der Streuung innerhalb der Gruppe) generiert werden. Dies ent-

spricht einer Stratifikation des Datensatzes, wobei die Strata allerdings nicht hypothesengeleitet, sondern empirisch bestimmt werden. In der Simulation ist ein solcher Ansatz zwar aufwendig und setzt gegenüber der derzeitigen Situation der Referenzwertbestimmung eine deutlich verbesserte und differenzierte Datenlage voraus, erlaubt aber approximativ eine „Nachbildung“ der Assoziations- und Begrenzungsstrukturen (Abbildung 2.23).

Abbildung 2.23 Empirische (links) und simulierte (rechts) Aufteilung eines Werktages bei 20-29 Männern nach Schlaf/Ruhen, Sitzen, leichte, mittelschwerer und anstrengender Aktivität [h/d] unter Anwendung von Mittelwerten und Streuungen von fünf Profilclustern als Streudiagramm dargestellt



In der Alltagspraxis der Expositionsabschätzung ebenso wie in Grobabschätzungen wird zur Zeit allerdings eine Anwendung von Referenzwerten empfohlen, wie sie vom AUH (1995) gegeben wurde, die bezüglich der Aufteilung durch die im Xprob-Projekt erfolgten Auswertungen in der Datenlage deutlich verbessert wurden. Der Hauptgrund für diese Empfehlung liegt in dem erheblichen Aufwand der Realisierung entsprechender Ansätze in Standardsoftware zur Simulation. Die Verknüpfung von Angaben zum Aufenthaltsort bzw. zum Umweltmedium einerseits und den Aktivitäten andererseits fehlt noch völlig. Hierzu liegen für Reanalysen geeignete Datengrundlagen nicht vor.

Tabelle 2.18 Durchschnittliche Aufenthaltszeiten in Innenräumen/im Freien nach Aktivität in Stunden/Tag (AUH 1995)

Altersgruppe	1	2	3	4	5	6	7
Altersbereich (Jahr)	< 1	1-3	4-6	7-9	10-14	15-19	20-75
drinnen	23	22	21	21	21	21	21
" schlafend	14	12	11	10,5	10	8,5	7
" wach	9	10	10	10,5	11	12,5	14
draußen	1	2	3	3	3	3	3
aktiv	10	12	13	13,5	14	15,5	17

Die oben genannten Verfahrensansätze würden eine deutlich tiefer stratifizierte Auswertungen und die Entwicklung einer geeigneten Methodik zum Umgang mit inhomogenen Populationen (Mischung von Verteilungen) und andererseits die Analyse von Korrelation zwischen den Eingangs- und Modellvariablen erfordern.

2.4.4 Daten zur Atemrate

Neben der Modellierung der Dauer des Aufenthaltes in den verschiedenen Umweltmedien und deren Schadstoffbelastung ist die Atemrate für die Berechnung der PER-Aufnahmemengen wesentlich. In dem ICRP-Dokument 89 (ICRP 2003) sind z. B. Atemraten dokumentiert; das ICRP schätzt die durchschnittlich anzunehmenden Atemraten für Erwachsene pro Tag wie in Tabelle 2.19. dargestellt ein.

Tabelle 2.19 Atemraten nach ICRP (2003), ergänzt um den Steigerungsfaktor gegenüber der Ruheatmung / Daten für Erwachsene

Inhalation	m ³ /h	m ³ /d	Faktor
Schlaf	0,45	10,80	1,00
Sitzen	0,54	12,96	1,20
Leichte Tätigkeit	1,50	36,00	3,33
Schwere Tätigkeit	3,00	72,00	5,56

Der AUH (1995) unterscheidet differenzierter nach Altersgruppen und Aktivitätsstärke und gibt hierbei sowohl einen günstigen (vergleichbar CTE) und ungünstigen Fall (vergleichbar RME) an, um weiter nach zeitlich begrenzter und chronischer Exposition zu unterscheiden (AUH 1995, Tabelle 5.15 bis Tabelle 5.18, s. a. RefXP-Datenbank: Inhalation). In diesem Punkt zeigt sich allerdings deutlich, dass der AUH (1995) noch in der Betrachtung von RME- und CTE-Betrachtungen und entsprechender Szenarien verhaftet war. Die Empfehlungen und Tabellen geben keinen Ansatz, die Variation in der Population zu beschreiben. Nehmen wir den RME-Fall, wie im AUH (1995) sonst üblich, als Beschreibung des 95 %-Quantils, dann erschließt sich weder die Verteilung noch, unter Annahme z. B. einer Lognormalverteilung, die Parametrisierung für die Einzelvariablen. Ein verteilungsbasiertes Modell ist daher nicht abzuleiten.

Der AUH (1995) hat dabei offensichtlich ein Aufteilungsschema gewählt, welches sich über alle Altersgruppen in etwa durch das Zahlenverhältnis 1:2:4:7 zwischen den Aktivitätsniveaus „Ruhe-Atem“ zu „leichter Aktivität“ zu „mäßiger“ und „intensiver Aktivität“ charakterisieren lässt. Dieses Zahlenverhältnis gilt konstant innerhalb jeder der betrachteten Altersklassen für den durchschnittlichen ebenso wie für den ungünstigen Fall. Es ist daher kaum anzunehmen, dass es auf einer empirischen Grundlage begründet ist. In der Anwendung auf die erwachsene Bevölkerung ergibt sich jedoch ein gravierendes Problem: Werden das Körpergewicht und die Atemrate unabhängig modelliert, so können

in den simulierten Datensätzen völlig un plausible Kombinationen von Körpergewicht und Atemrate auftreten, die mit der körperlgeichtsbezogenen basalen metabolischen Rate (BMR) nicht in Übereinstimmung stehen können.

Die vom AUH (1995) verwendeten Steigungsfaktoren stehen allerdings für Erwachsene in guter Übereinstimmung mit den aus empirischen Messreihen abgeleiteten Faktoren bei OEHHA (Wiley et al. 1991a und b, Cal EPA 2000a). Die abgeleiteten Steigungsfaktoren für die berichteten Daten (Tabelle 2.20) stehen für Erwachsene grob im Einklang mit den AUH-Angaben; für Kinder sind die Steigungsfaktoren jedoch niedriger.

Tabelle 2.20 Aktivitätsniveau, Atemraten [L/(min · kg)] und abgeleitete Steigerungsfaktoren: Daten aus Cal EPA (2000a)

Aktivität	Berichtete Atemraten		Aktivitätssteigungsfaktor	
	Erwachsene	Kinder	Erwachsene	Kinder
Ruhe	0,11	0,20	1,00	1,00
leichte	0,13	0,30	1,15	1,50
moderate	0,32	0,60	2,83	3,00
mittelschwere	0,57		4,98	
schwere	0,81	0,90	7,13	4,50
schwer sportbezogen	0,90		7,89	
Aktives Autofahren	0,14		1,25	
Gartenarbeit	0,32		2,83	

Nimmt man das Steignungsverhältnis der Atemraten mit der Aktivität als interindividuell und intraindividuelle als konstant an, so würde bei einer gegebenen Aufteilung der Aktivitätsanteile das Tagesgesamtvolumen der Atmung näherungsweise einschätzbar. Cal EPA (2000a) hat aus den empirischen Daten körperlgeichtsbezogene Verteilungen für Kinder, Jugendliche und Erwachsene einheitlich als Gammaverteilung mit angepassten Parametern abgeleitet. Diese werden hier als Basis für Simulationen gewählt. Diese Vorgehensweise hat den Vorteil, dass das Körpergewicht und das Alter als Einflussgrößen für die Berechnung der Atemrate als abhängige Modellgröße in das Modell aufgenommen werden. Die mögliche Fehlspezifikation durch nicht gerechtfertigte Unabhängigkeitsannahmen für die Atemraten in Relation zum Körpergewicht wird vermieden. Weiterhin kann die zu erwartende Variation in der Grundatemrate modelliert werden, die aktivitätsabhängigen Steigerungsfaktoren werden in die simulierten Atemraten getrennt eingerechnet.

Bei der Bearbeitung dieses Teils der Expositionsabschätzung, der Festlegung alters-, geschlechts- und körperlgeichtsabhängiger Atemraten wurden, ohne hierauf im Rahmen dieses Berichtes detailliert einzugehen, unterschiedliche analytische Zugänge zur Bestimmung der Relationen zwischen den Größen Alter, Körpergewicht, basismetabolische Rate, Energieaufnahme und Atemvo-

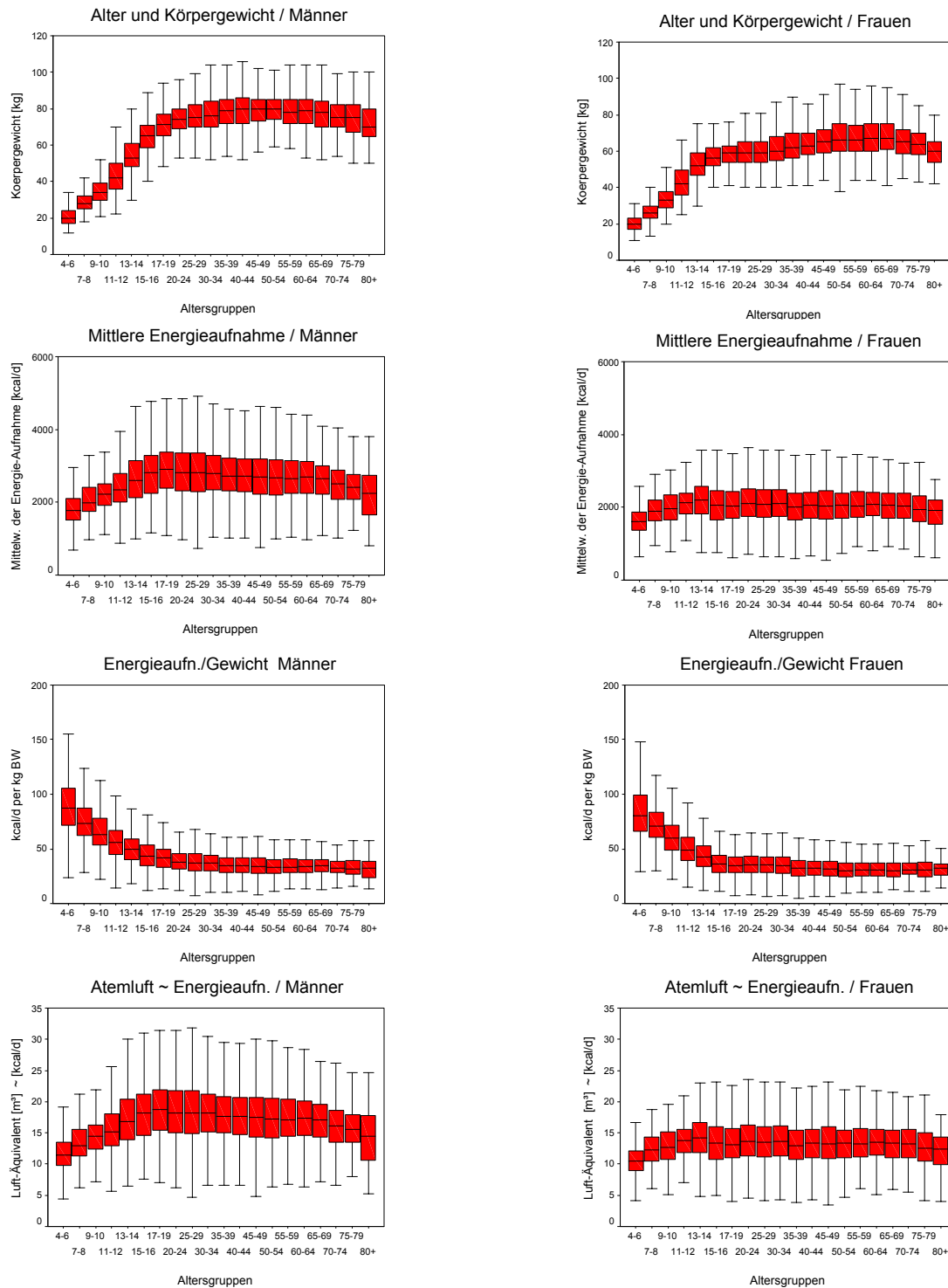
lumenbestimmung vergleichend betrachtet: (a) Berechnung mit altersbezogenen Kenn- bzw. Referenzwerten, (b) Nutzung von aktivitätsabhängigen Steigungsfaktoren unter Annahme einer konstanten bzw. körpergewichts-bezogenen Grundrate, (c) Ableitung der *basic metabolic rate* (BMR, kalorischer Grundumsatz) nach Harris und Benedict (1918) und Anwendung der aktivitätsabhängigen Steigungsfaktoren oder (d) Rückrechnung der mit der durchschnittlichen Energieaufnahme (kcal/d) korrespondierenden Gesamtatmung pro Tag (m^3/d), berechnet über den erforderlichen Sauerstoffverbrauch, und Rückrechnung der aktivitätsabhängigen Anteile. Für eine ausführliche Diskussion der Vor- und Nachteile der verschiedenen Verfahren sei auf Layton (1993) und Cal EPA (2000b) verwiesen.

Ob und wie weit die bestehenden Lücken im empirischen Datenbestand durch Bestimmung des Grundumsatzes und der Gesamtenergieaufnahme (kcal/h) vermindert werden können (US EPA 1997), indem das der Energieaufnahme entsprechende O_2 -Äquivalent und darüber das tagesbezogen Atemvolumen bestimmt wird, um es im zweiten Schritt an die Aktivitätsmuster pro Tag anzupassen, ist allerdings nicht vollständig abzuschätzen. Im Datensatz der NVS (1985-1989) liegen für die Energieaufnahme und die anthropometrischen Maße die entsprechenden Daten vor, Zeit- und Aktivitätsbudgets fehlen.

Für Personen, die zum Zeitpunkt der Erhebung über die sieben Beobachtungstage eine Reduktion der Kalorienaufnahme zeigten, wurden z. T. unplausibel niedrige Atemraten pro Tag errechnet. Gleichwohl zeigt sich in diesem Datensatz das mit dem Alter asymptotisch ansteigende Körpergewicht und die entsprechend steigende Kalorienaufnahme pro Tag, die mit dem Alter absinkende körpergewichtsbezogene Kalorienaufnahme, und die daraus abgeleitet die Funktion der Luftaufnahme. Die in Abbildung 2.24 nach Alter und Geschlecht differenziert zusammengestellten Querschnittsbetrachtungen (NVS 1985-89, $N_{\text{Männer}} = 10.786$, $N_{\text{Frauen}} = 12.178$) zeigen die Mittelwerte und Mediane der im Niveau unterschiedlichen Körperwichte (erste Zeile), die tägliche Energieaufnahme bei Männern und Frauen (zweite Zeile), die in etwa vergleichbare körpergewichtsabhängige Energieaufnahme (dritte Zeile) und die im Niveau unterschiedlichen Atemraten pro Tag (vierte Zeile). Eine gemeinsame Modellierung für beide Geschlechter und alle Altersgruppen zusammengekommen wäre unzureichend.

Keiner der oben aufgeführten Ansätze ist vollständig befriedigend, da alle eingehenden Größen gleichzeitig von der Konstitution, dem Alter, dem Geschlecht und den Aktivitätsmustern abhängen. Empirische Datensätze, aus denen die Parameter zusammen mit den anzunehmenden hohen Kovarianzen gemeinsam zu schätzen wären, liegen jedoch nicht vor. Als generelles Problem hat sich herausgestellt, dass alters-, geschlechts- und aktivitätsbezogene Bezugsdaten für die Atemminutenvolumina nur in unzureichender Detaillierung vorliegen. Die Kombination von Aktivitäten und Atemvolumina stellt daher eine nur durch Modellannahmen zu füllende Lücke dar.

Abbildung 2.24 Alters- und Geschlechtsabhängigkeit des Körpergewichts, der täglichen Energieaufnahme (7-Tage-Mittel) [kcal/d], der körpertgewichtsbezogenen Energieaufnahme [kcal/(kg·d)] und der berechneten Tagesatmung [m^3/d] für Männer (links) und Frauen (rechts) entsprechend der Daten aus NVS (1985-89)¹³



¹³ Boxplot ohne Ausreißer und Extremwerte (SPSS 11.0.1); Spannweiten 1,5 des Interquartilabstands

2.5 Ansätze zur Modellvereinfachung

Entsprechend der Empfehlungen aus dem Projektbericht Teil 1, Kapitel 3 soll ein Modell so einfach wie möglich aufgebaut werden. Betrachtet man die bislang dargestellten Ansätze im Überblick, so erreicht das zu simulierende Expositionsmodell bereits einen hohen Komplexitätsgrad. In vorliegendem Kapitel wird im Rahmen einer Grobabschätzung versucht, die wesentlichen Beitragspfade und Einflussgrößen zu ermitteln. Hierzu wird zuerst der mögliche Beitrag für Trinkwasser und Nahrungsmittel analysiert. Im zweiten Schritt wird analysiert, ob eine Modellierung der täglichen PER-Aufnahme auf der Grundlage von durchschnittlicher PER-Exposition, gemessen über Personal-Sampler möglich ist.

2.5.1 Beiträge aus Trinkwasser

Für die USA hat die Agency for Toxic Substances and Disease Registry/ Division of Toxicology (ATSDR 1997) den relativen Beitrag der Eintragsmedien verglichen:

For the general population, the estimated amount that a person might breathe per day ranges from 0.08 to 0.2 milligrams. The estimated amount that most people might drink in water ranges from 0.0001 to 0.002 milligrams per day.

Da der Chlorierungsgrad von Trinkwasser in der Regel in Deutschland deutlich unter dem der USA liegt, spielt der Trinkwasserbeitrag unter normalen Bedingungen keine wesentliche Rolle für die PER-Gesamtaufnahme in der Bevölkerung. Dieser Pfad wird nicht in das Modell aufgenommen.

2.5.2 Beiträge aus Nahrungsmitteln

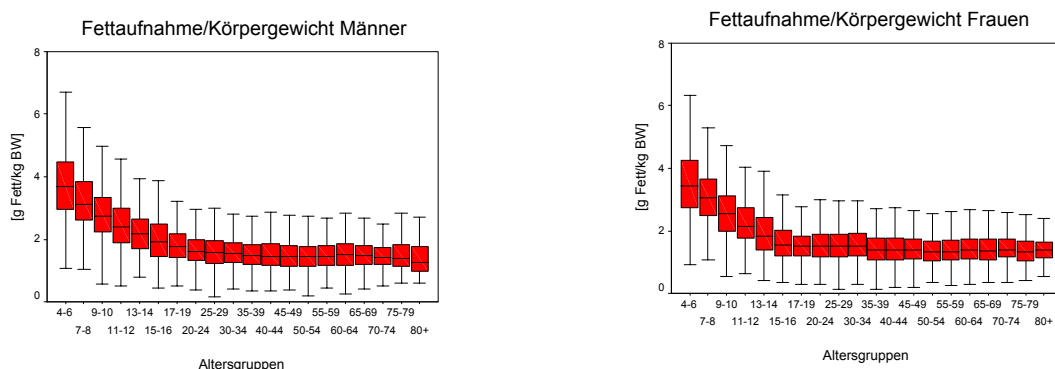
Der Beitrag aus Nahrungsmitteln ist wesentlich schwieriger zu beurteilen: In der Vergangenheit wurde PER u. a. als Extraktionsmittel für Lebensmittelfette und Öle eingesetzt; hieraus resultierten hohe potentielle Aufnahmemengen durch Verunreinigungen und z. T. erhebliche Konzentrationen in Lebensmitteln. Über kontaminierte Futtermittel wurde PER indirekt in die Lebensmittelkette übertragen. Für fettreiche Lebensmittel, die in der Nachbarschaft von Chemischreinigungen hergestellt oder gelagert wurden, ließ sich eine deutliche PER-Anreicherung zeigen, insbesondere bei Fetten (in den Bereich bis 99 mg/kg). Eine detaillierte Übersicht über die Situation in den 80er Jahren ist im BUA-Stoffbericht 139 (1994) zusammengestellt. Der Nahrungsmittelpfad kann für Personen in der Nachbarschaft von emittierenden Betrieben zu einem bedeutsamen zusätzlichen Beitrag zur Exposition über die Atemluft beigetragen haben. Eine regressionsanalytische Betrachtung mit PER im Blut als Zielvariable und alleine

der Luftbelastung als Eingangsgröße würde in dieser Situation den direkten Beitrag der Luftbelastung über die Atmung überschätzen.

Da keine angemessenen Daten für die Beurteilung dieses Beitrages (insbesondere zur Lagerzeit von fettreichen Lebensmitteln) zur Verfügung stehen, wird der Beitrag aus Nahrungsmitteln in dieser Expositionsmodellierung nicht explizit berücksichtigt. Hinweise auf eine hohe Korrelation zwischen der Innenraumluftbelastung und der Anreicherung in Fetten ergeben sich aus einer Bremer Studie (Schäfer und Hohmann 1991), in der sich eine deutliche Korrelation der Innenraumluftbelastung zur Kontamination von fetthaltigen Lebensmitteln zeigen ließ (Spearman's Rho = 0,47; N = 48). Bei einer durchschnittlichen körpergewichtsbezogenen Fettaufnahme von 1,7 g/(kg·d) und einer Kontamination der Lebensmittel von 10 - 50 µg/kg (Vieths et al. 1988b, WBB 1989) ergäbe die Modellrechnung auf der Grundlage der Daten der Nationalen Verzehrsstudie (Adolf 2003) folgende Ergebnisse: Unter Annahme von 10 µg PER/kg Lebensmittelfett wäre eine PER-Aufnahme von ca. 1,1 µg/d für Männer und 0,9 µg/d für Frauen zu erwarten gewesen (bei 112 g Fettaufnahme_{Männer}/d und 89 g Fettaufnahme_{Frauen}/d). Die US EPA (1985) schätzte die Spannweite der durch Lebensmittel aufgenommenen PER-Beiträge (mit Milchprodukten als Hauptbeitrag) zwischen 0,1 und 4 µg/Tag ein.

Kinder und Jugendliche wären bei dieser Modellrechnung für den Lebensmittelpfad als höher exponierte Gruppe zu betrachten, da die auf das Körpergewicht bezogene Fettaufnahme über der von Erwachsenen liegt, der Körperfettanteil dagegen (als Verdünnungsvolumen) niedriger ist. Abbildung 2.25 illustriert die mit dem Alter sinkende körpergewichtsbezogene Fettaufnahme pro Tag und zeigt zugleich die breite Streuung dieser Größe in allen Altersgruppen.

Abbildung 2.25 Körpergewichtsbezogene Fettaufnahme pro Tag. Durchschnitt aus dem 7-Tageprotokoll der NVS 1985-89¹⁴



¹⁴ Boxplot ohne Ausreißer und Extremwerte (SPSS 11.0.1); Spannweiten 1,5 des Interquartilsabstands

Für Kinder im Alter zwischen 4 und 6 Jahren ergäbe sich, wenn die gemessene tägliche Fettaufnahme betrachtet wird pro Tag ein Wert von $CTE = 74,3 \text{ [g/d]}$, $RME_{95\%} = 124,1 \text{ [g/d]}$ (männlich) und $CTE = 68,63 \text{ [g/d]}$, $RME_{95\%} = 117,8 \text{ [g/d]}$ (weiblich). Unter den oben genannten Annahmen entspräche dies einer medianen PER-Aufnahme von $0,743 \text{ µg/d}$ für Jungen und $0,686 \text{ µg/d}$ für Mädchen im Alter zwischen 4 und 6 Jahren. Weiterhin würde eine körpertgewichtsbezogene Aufnahme von ca. $0,035 \text{ [µg PER/(kg·d)]}$ für Kinder abgeleitet werden, für Erwachsene würde sich dagegen ein um den Faktor 2 niedrigerer Wert von ca. $0,015 \text{ [µg PER/(kg·d)]}$ ergeben.

Für die Gruppe der 25- bis 29-jährigen Männer würde eine stark vereinfachte Analyse dieses Teilszenarios die auf der folgenden Seite zusammengestellten Ergebnisse ergeben. Die Abbildungen 2.26 und 2.27 zeigen die Kombination der Gleichverteilungen der PER-Aufnahme aus Lebensmitteln und Getränken addiert auf die Aufnahme von PER aus der Innenraumluft. In dieser vereinfachten Analyse wurden feste Werte für die Innenraumluft entsprechend der Angaben aus dem Umwelt-Survey 1985/86 und LAI (2000) für die Außenluft gewählt und entsprechend der Verteilung des ICRP (2003) auf Aktivitäten (Atemvolumina) im Innen- und Außenbereich verteilt (Tabelle 2.21) siehe auch Kapitel 2.4. Hieraus ergäbe sich eine PER-Aufnahme über die Atemluft (bei 100 %-Resorption) von $84,5 \text{ [µg PER/d]}$.

Für eine Grobabschätzung des möglichen Zusatzbeitrages aus Lebensmitteln und Trinkwasser wurde die in ATSDR (1997) berichtete Spannweite der PER-Aufnahme durch Milch-, Fleisch-, Fett-Produkte, Getränke und Trinkwasser in Unkenntnis der wahren Daten als Gleichverteilung modelliert (Tabelle 2.22). Der resultierende Beitrag aus diesen Quellen wird mit ca. 4 µg PER/d einzuschätzen sein. Milchprodukte wären unter der angenommenen Variationsbreite der Kontamination als mögliche Hauptquelle einer Belastung anzusehen (s. a. EU 2005). Es muss allerdings angemerkt werden, dass BUA (1994, S.116-117) mit Bezug auf empirische Studien von Reinhard et al. (1989) darauf hinweist, dass es in Wohnungen in der direkten Nachbarschaft von Chemischreinigen zu einer relevanten Anreicherung von PER in fetthaltigen Lebensmittel bis in den Bereich von wenigen Milligramm pro Kilogramm (Vieths et al. 1988a, WBB 1989) kommen kann. Die obigen Berechnungen tragen der Korrelation zwischen der Luft- und der Nahrungsmittelbelastung nicht Rechnung.

Der ganz überwiegende Beitrag der PER-Aufnahme würde jedoch im Normalfall aus der Innenraumluftbelastung zu erklären sein, der relative Beitrag über Lebensmittel vergleichsweise niedrig. In Relation zu den $8 - 200 \text{ µg PER/d}$, die geschätzt über den Inhalationspfad aufgenommen werden (ATSDR 1997), ist der Beitrag aus Lebensmitteln vergleichsweise als untergeordnet einzuschätzen.

Tabelle 2.21 Vereinfachte Berechnung der PER-Beiträge aus der Luft als @Risk-Modell**Deterministisches Modell No.1: Aufnahme von PER aus diversen Quellen**

Simplified scenario Adults / Males

PER-Indoor	4,80	µg/m³	USurv 85/86		
PER-Outside	0,50	µg/m³	LAI 2000 Mid		
Body weight (BW)	82.00	kg	ICRP (2002)		
Indoor/Outdoor Activity	ICRP	ICRP	Volume	PER Intake	Source
Inhalation	m³/h	h		µg/d	
Sleep	0,45	8,00	3,60	17,28	Indoor
Sitting	0,54	6,00	3,24	15,55	Indoor
Light Exercise	1,50	6,83	10,24	49,14	Indoor 70%
	1,50	2,93	4,39	2,19	Outdoor 30%
HeavyExercise	3,00	0,25	0,75	0,38	Outdoor
		Std.	Volume	PER Air	
		h	m³/d	µg/d	
Total inhalation		24,0	22,2	84,5	
Indoor PER µg/d		20,8	17,1	82,0	
Outdoor PER µg/d		3,2	5,1	2,6	

Tabelle 2.22 Grobschätzung des PER-Beitrages aus Lebensmitteln als Gleichverteilung in der bei ATSDR (1997) genannten Spannweite als @Risk-Modell

Nutrition US EPA (1985)	Intake rate kg/d	Intake PER µg/d (ATSDR 1997)		Central Tendency Estimate (CTE) µg/d	Unit
		Min	Max		
Dairy products	0,75	0,00	4,00	2,00	µg/d
Meat, fish, and poultry	0,26	0,00	1,00	0,50	µg/d
Fats and oils	0,07	0,00	0,95	0,48	µg/d
Beverages	0,13	0,00	0,06	0,03	µg/d
Drinking water		0,10	2,00	1,05	µg/d
Nutrition PER				4,06	µg/d
Sum PER				88,60	µg/d
PER-Intake µg/(kg·d)				1,08	µg/(kg·d)

Abbildung 2.26 Verteilung der aus der Grobschätzung resultierenden, körpergewichtsbezogenen PER-Gesamtaufnahme [$\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{d})$] bei Männern im Alter zwischen 25-29 J.

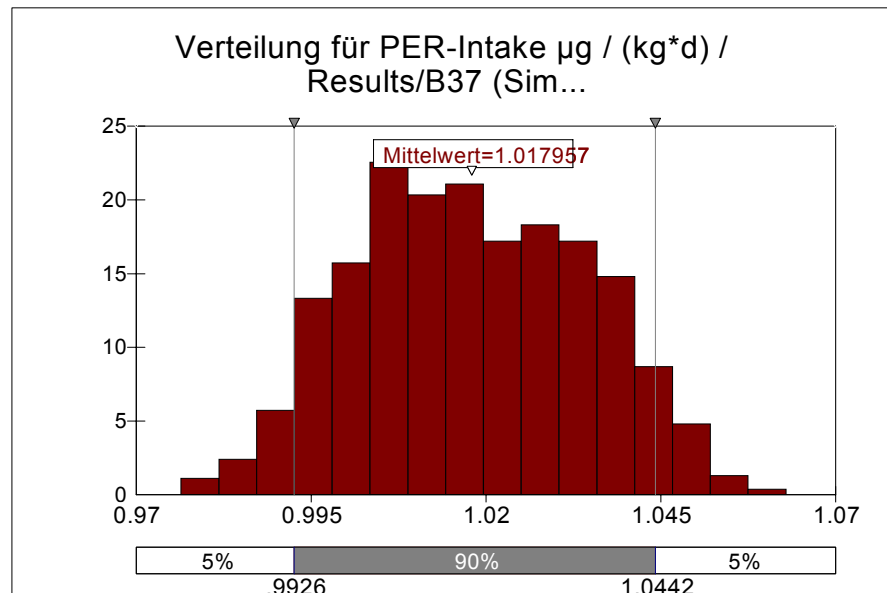
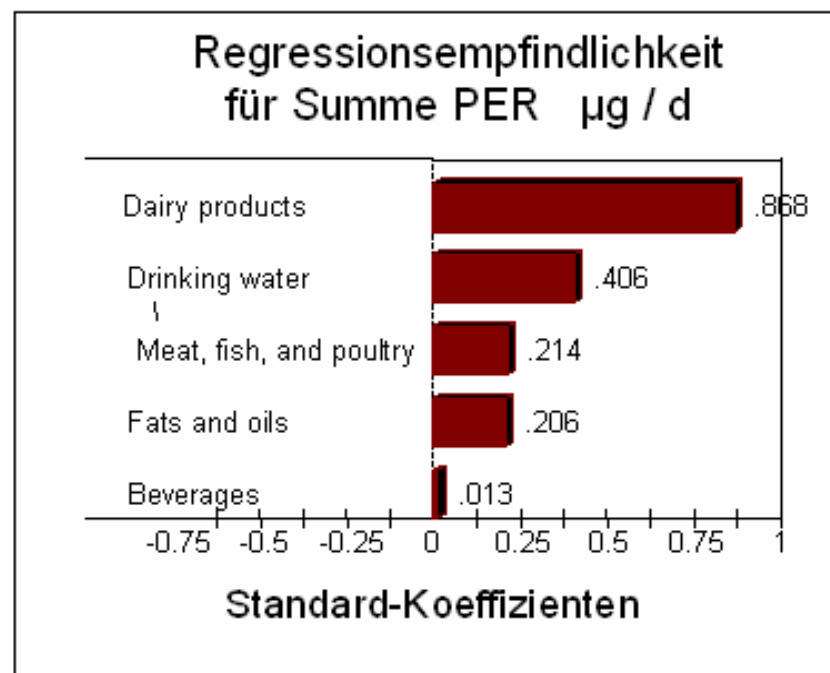


Abbildung 2.27 Analyse der Sensitivität für die möglichen PER-Beiträge aus Nahrungsmitteln (Regressionsmodell) bei Männern im Alter zwischen 25-29 J.



2.5.3 Beitrag über die Hautaufnahme

Der dermale Pfad wird wegen Datenmangels und der in der nicht mehr anzunehmenden Verbreitung von PER-haltigen Produkten, die für einen Hautkontakt von Bedeutung sein können, nicht in das Modell aufgenommen. Für besonders exponierte Personen, insbesondere mit PER als Lösemittel arbeitende Arbeitnehmer/innen, ist gleichwohl von einem relevanten Beitrag auszugehen.

2.5.4 Bewertung der Beiträge

Das zu betrachtende Expositionsmodell reduziert sich damit weitgehend auf den Inhalationspfad mit seinen relevanten Einflussgrößen. Im Folgenden werden die Einflussvariablen des Modells kurz skizziert, die vorliegenden Daten und ausgewählten Eingangsdaten knapp dargestellt und bei dem gegebenen Datenbestand für die Eingangsgrößen mögliche Modellvarianten diskutiert.

2.6 Expositionsabschätzung basierend auf Personal-Sampler-Daten

Als Ausgangsdatensatz für die Berechnung der durchschnittlichen Immission in der Lebensumgebung könnte alternativ auch die gemessene 7-Tage-Exposition gegenüber PER bei 25- bis 69-jährigen Personen aus den alten Bundesländern (N = 113) gewählt werden (UBA 2002c). In dieser Teilstudie wurde durch einen durchgehend mitgeführten Passivsammler die PER-Gesamtexposition über sieben Tage vollständig und zeitlich integriert gemessen; eine detaillierte Befragung der Teilnehmer zu möglichen Einflussfaktoren aus der Umwelt ergänzte die Datenlage. Die berichteten Expositionswerte geben damit ein sehr gutes Bild über die Summe der PER-Belastung in der Lebensumgebung der Studienteilnehmer. Das UBA (2002c) berichtet folgende Quantile und Kennwerte:

Tabelle 2.23 Personengebundene 7 Tage-Exposition PER [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] bei 25- bis 69-jährigen Personen aus den alten Bundesländern (N = 113, 33 Werte unter BG von 0,7 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]), Umwelt-Survey 1990/92

10 %	50 %	90 %	95 %	98 %	Max	AM	GM	KI (GM)
< 1	2	6	22	31	31	3,8	2,0	1,7 - 2,4

Wenn zu einer Substanz Angaben in dieser Form vorliegen, kann eine empirische kumulierte Verteilung für die Simulation abgeleitet werden. Je differenzierter die Quantile berichtet werden, desto besser wird die Verteilungsfunktion im Gesamtverlauf beschrieben und in der Simulation damit auch angemessener reproduziert.

Zu bestimmen wären noch die Zeitanteile für die Aktivitäten und die entsprechenden Atemraten. In diesem Modell als Ausgangspunkt für mögliche Modellvereinfachungen wurden die Zeitanteile der Aktivitätsniveaus über einen durchschnittlichen Wochentag entsprechend RefXP-Tabellen (BGS98) und die Atem-

raten aus den ICRP-Standards (2003) übernommen. Die durchschnittliche Tagesaufnahme von PER aus den nicht spezifizierten Quellen der Passivsammler-Anreicherung wurde anteilig ausmultipliziert und für einen fiktiven Tag summiert. Die folgenden Formeln geben das Verfahren wieder:

Variable	Atemrate[m ³ /h]*Immission[μg/m ³]*Zeit[h] Modellgleichung	Aufnahme/Aktivität
UpSleep =	0.45· PSper· RSleep	Schlaf
UpSit =	0.54· PSper· RSit	Sitzen
UpLight =	1.50· PSper· RLiEx	leicht
UpMed =	2.20· PSper· RMedEx	mäßig/mittel
UpHeavy =	3.00· PSper· RHeavEx	schwer/anstrengend
UpTotal =	UpSleep+UpSit+UpLight+UpMed+UpHeavy	Gesamt

Up... ~ Uptake/Aufnahme
 PSper ~ Durchschnittl. PER-Immission (Passivsammler)
 R... ~ Stunden pro Tag für Aktivitäten

Für die Gruppe der 17-24 jährigen Männer (als Vergleich zum Modell oben) ergibt sich das in Tabelle 2.24 dargestellte Ergebnis. Im Median beträgt die Aufnahme ca. 50 μg/d, das 95 %-Quantil liegt in der Größenordnung von 560 μg/d. In der zentralen Tendenz ergibt sich eine gegenüber der ersten Grobabschätzung niedrigere äußere Exposition. Die Einbeziehung von Variation aus der PER-Kontamination der Umgebungsluft und die Berücksichtigung der variablen Aktivitätszusammensetzung über eine für 10.000 „Personen“ simulierten Tag kann als erste Näherung an die zu erwartende Variation angesehen werden.

Tabelle 2.24 Ergebnisse der Simulation der äußeren Exposition [μg/d] unter Nutzung der empirischen Verteilung der PER-Konzentration aus 7-Tage-Passivsamplern, Aktivitätsmustern¹⁵ [h/d] und den Atemraten [m³/h] des ICRP (2003), Iterationen = 10.000

Quantil	1,0%	5,0%	25,0%	50,0%	75,0%	95,0%	99,0%	Mean	aSD	gMean	gSD
Zeiten											
Sleep	4,13	4,98	6,43	7,62	9,02	11,31	13,08	7,82	1,93	7,59	1,28
Sit	1,84	2,90	5,01	6,71	8,58	11,31	13,09	6,87	2,54	6,35	1,52
Light	0,56	1,07	2,33	3,56	5,11	7,69	9,55	3,87	2,04	3,30	1,84
Medium	0,14	0,40	1,36	2,55	4,13	7,13	9,40	2,98	2,10	2,19	2,45
Heavy	0,02	0,12	0,76	1,84	3,58	6,89	9,45	2,47	2,19	1,44	3,57
Immission											
PER μg/m ³	0,27	0,34	0,69	1,77	3,78	21,84	30,68	3,92	6,47	1,85	3,15
Aufnahme											
UpSleep	0,79	1,12	2,52	6,11	12,85	71,73	120,57	13,81	23,78	6,33	3,23
UpSit	0,56	1,02	2,53	6,18	13,47	71,23	141,44	14,58	26,16	6,35	3,41
UpLight	0,61	1,25	3,58	8,86	20,76	103,69	236,45	22,77	43,99	9,16	3,66
UpMed	0,28	0,84	3,32	9,11	23,07	111,15	295,29	25,94	56,13	8,92	4,32
UpHeavy	0,07	0,43	2,92	8,65	24,64	113,34	368,22	28,51	65,74	8,02	5,52
Gesamtaufnahme											
UpTotal	6,40	8,72	19,51	47,91	98,40	558,50	910,61	105,61	178,95	48,94	3,20

¹⁵ Die Quantilwerte der Zeitanteile summieren sich dabei erwartungsgemäß nicht zu 24 Stunden auf, alleine für den Mittelwert kann dies näherungsweise erwartet werden.

In der Tabelle 2.24 sind die Ergebnisse einer entsprechenden Simulation detailliert für ausgewählte Quantile, arithmetisches und geometrisches Mittel und Standardabweichung dargestellt. Im oberen Tabellenabschnitt sind die simulierten Zeitanteile wiedergegeben. Hierbei wurden simultan die Zeitanteile aus den in der RefXP-Datenbank dokumentierten Verteilungen generiert und im zweiten Schritt auf 24-Stunden umgerechnet. Im mittleren Tabellenteil ist die kumulierte Verteilung der durchschnittlichen PER-Luftbelastung aus den Personal-Sampler-Daten reproduziert (unter Nutzung der Originaldaten). Die unteren Tabellenzeilen zeigen die Quantile und statistischen Kennwerte der Aufnahme für die gewählten Aktivitätsniveaus und die aus der Simulation berechneten Quantile der Gesamt-PER-Aufnahme (UpTotal).

Deutlich erkennbar ist in dieser Modellierung, dass sich im Zentralbereich der Verteilung die mit der Aktivitätsstärke absinkenden Zeitanteile der höheren Atemrate im Expositionseffekt nahezu ausgleichen; im Extrembereich der Expositionsverteilung gewinnen jedoch die relativen Beiträge aus den mit höheren Atemraten verbundenen Aktivitäten an Bedeutung.

Tabelle 2.25 Sensitivitätsbetrachtung über Rangkorrelation der Zeitanteilsvariablen zur Gesamt-PER-Aufnahme

Zeitanteil des Tages	Rangkorrelation zur PER-Gesamtaufnahme
Schlaf	-0,05
Sitzen	-0,07
Mittlere Aktivität	0,06
Schwere Aktivität	0,08

Betrachtet man die Korrelationen der Eingangsvariablen auf die Zielgröße, so hat die Immissionsvariable (Personal Sampler) in diesem Modell mit $r = 0,97$ ein scheinbar dominantes Gewicht. Für die Einflüsse der relativen tagesbezogenen Zeitanteile ergibt sich das erwartete Bild; Schlafen und Sitzen (verbunden mit niedrigen Atemraten) schützt vor der Aufnahme von PER aus der Umwelt, intensive Aktivität fördert die Aufnahme.

Diese Berechnung der Exposition über den zeit- und raumgemittelten Personal-Sampler-Wert berücksichtigt allerdings nicht die Variation über die Zeit und die Aufenthaltsorte. Er differenziert dabei nicht über die zeitlich variable Innenraum- und die Außenluft-Belastung, sondern nimmt eine homogene PER-Konzentration über die Aktivitäten und die jeweiligen Aufenthaltsorte an. Weiterhin berücksichtigt es nicht die zu erwartende Interaktion zwischen dem Aufenthaltsort und der Aktivität. Dieser Punkt stellt, bei den ausgewiesenen Vorteilen einer direkten Messung der durchschnittlichen äußeren Expositionsbedingungen, die Schwäche von Expositionsmodellen auf der Basis von Personal-Sampler-Daten dar. Die Probleme wären nur zu lösen, wenn eine getrennte Messung für den Innen- und den Außenluftbereich (zusammen mit einer Aufteilung der Zeit und Aktivitäten) vorläge. Dieses Modell wird daher nur als erste Approximation an

die real zu erwartenden Expositionsbedingungen anzusehen sein und dabei voraussichtlich die empirische Variation in der Zielgröße „äußere Exposition“ unterschätzen.

2.7 Zielgröße: Innere Exposition / PER-Konzentration im Blut

Die Zielgröße von Human-Biomonitoring-Programmen ist die gemessene PER-Belastung im Blut. Ausgehend von den Daten zur Toxikokinetik von PER wird für die Resorptionsraten bei oraler Aufnahme eine rasche und nahezu vollständige Resorption angenommen (BUA 1994), für die inhalative Aufnahme wird eine Resorptionsrate von 80-100 % angenommen, hierbei scheint die Absorption bei konstant hoher Belastung der Atemluft auf Werte bis zu 75 % abzunehmen (Monster 1979). Für die dermale Aufnahme würde eine niedrigere Aufnahme rate anzunehmen sein, sofern der gleichzeitig wirksame Atemluftpfad nicht berücksichtigt wird. In den Simulationsmodellen wird für Umweltbedingungen eine vollständige Resorption angenommen.

Bei einer Eliminationshalbwertszeit (biologische Halbwertszeit BHZ) von 65 Stunden (entsprechend 2,71 [d]) wird die PER-Konzentration im Blut die Exposition über die vergangenen Tage abbilden. Da die Variation über die Zeit nicht bekannt ist und entsprechend auch keine Expositionszeit- bzw. Expositionseignis-abhängigen Modelle berechnet werden können, wird in den folgenden Modellrechnungen die Körperlast als Zustand im *steady state*, also im „Sättigungszustand unter den gegebenen Expositionsbedingungen“, angenommen. Durch diese Annahme ist es möglich, die Körpergesamtlast direkt zu berechnen:

$$\begin{aligned} \text{Eliminationsrate} &= \ln(2)/\text{BHZ[d]} = 0,256 \\ \text{Steady state} &= \text{Intake} / \text{Eliminationsrate} \end{aligned}$$

Aufgenommenes Tetrachlorethylen wird wegen seiner lipophilen Eigenschaften im Fettgewebe schnell angelagert (BUA 1994), die Schätzung des Fett-Blut-Partitionskoeffizienten liegt in der Größenordnung von 125-159.

Durch Umrechnung auf den Körperfettanteil (dem Zielkompartiment dieser im Körper ganz überwiegend lipidgebundenen vorliegenden Substanz) und zusätzlicher Annahme eines Gleichgewichts der PER-Konzentration zwischen dem Körperfett- und dem Blutfett-Kompartiment kann schrittweise die PER-Blutfett- und damit die PER-Blut-Konzentration prognostiziert werden.

Der relative Körperfettanteil wird für Erwachsene unter Berücksichtigung des Body Mass Index (BMI), des Alters und des Geschlechts (Koeffizient weiblich=1, männlich=0) nach Deurenberg et al. (1991) mit der nachfolgend gezeigten Formel berechnet. Der Ansatz geht von einem relativen Anstieg des Körperfett-Kompartiments mit der Höhe des BMI aus, darüber hinaus wird die Veränderung der Körpergewebe-Zusammensetzung mit dem Alter (Umbau des Muskelgewebes) und der höhere Körperfettanteil der Gruppe der Frauen in die Gleichung aufgenommen (Wellens et al. 1996). Die Formel wurde als Regres-

sionsschätzer aus empirischen Daten mit geeigneten Messprogrammen abgeleitet. Die Zielgröße ist der relative Körperfettanteil:

Tabelle 2.26 Ansätze zur Berechnung des Körperfettanteils (Prozentangabe)

Autoren	Formel
Deurenberg et al. (1991)	Adult Body Fat % = $(1,20 \cdot \text{BMI}) + (0,23 \cdot \text{Age}) - (10,8 \cdot \text{gender}) - 5,4$
Deurenberg et al. (1998)	Adult Body Fat % = $(1,29 \cdot \text{BMI}) + (0,20 \cdot \text{Age}) - (11,4 \cdot \text{gender}) - 8,0$
Gallagher et al. (1996)	Adult Body Fat % = $(1,46 \cdot \text{BMI}) + (0,14 \cdot \text{Age}) - (11,6 \cdot \text{gender}) - 10,0$
Jackson et al. (1980)	Adult Body Fat % = $(1,61 \cdot \text{BMI}) + (0,13 \cdot \text{Age}) - (12,1 \cdot \text{gender}) - 13,9$
Jackson et al. (2002)	Adult Body Fat % = $(1,39 \cdot \text{BMI}) + (0,16 \cdot \text{Age}) - (10,34 \cdot \text{gender}) - 9,0$

“Gender“ als Dummy Variable mit Werteausprägung : 1 Männer, 0 Frauen

Als Referenzmethoden zur Ableitung der Gleichungen wurden sowohl Methoden des hydrostatischen Wiegens und die Dual-Energy X-Ray Absorptiometry (DEXA) angewandt. Die Arbeiten von Gallagher et al. (1996) und Jackson et al. (2002) zeigen für die gleiche Modellstruktur geringfügig andere Parameter, weichen aber in einem durchgeführten Prädiktionsvergleich (Datengrundlage: NVS 1991) nur geringfügig, in der Tendenz eher in den Extreimbereichen, voneinander ab.

Das lineare Regressionsmodell zeichnet den im Anstieg mit hohen BMI-Werten abfallenden Funktionszusammenhang nicht vollständig nach. Insbesondere für jüngere Männer mit einem BMI > 30 würde dies zu einer moderaten Überschätzung des Körperfettanteils beitragen. Für Kinder und Jugendliche ist die Formel nicht anwendbar, die Ausgangslage für eine Körperfettschätzung ist hier deutlich schwieriger (Maynard et al. 2001, Greil 2005). Die Formel zur Berechnung des Körperfettanteils sollte entsprechend der Hinweise der Autoren auf den Altersbereich der über 15-Jährigen begrenzt werden. Für die hier durchgeführten Simulationsrechnungen bedeutet dies wegen des Nichtvorliegens von geeigneten Ausgangsdaten einen (vorläufigen) Verzicht auf Simulationsberechnungen für Kinder und Jugendliche.

Nimmt man eine vollständige Verteilung des aufgenommenen Tetrachlorethylens im Körperfett (Körpergewicht · relativer Fettanteil) an, so wäre die PER-Konzentration gegeben als

$$PER \text{ im Körperfett-Fett } [\mu\text{g/kg}] = \text{Steady State} / \text{Body fat}$$

Unter Berücksichtigung des spezifischen Gewichts von Körperfett von 0,92 (ICRP 2003) kann eine Transformation in die Einheit Liter erfolgen:

$$PER \text{ im Körperfett-Fett } [\mu\text{g/L}] = 0,92 \cdot PER \text{ im Körperfett-Fett } [\mu\text{g/kg}]$$

und eine weitere Renormierung auf den Fettanteil im Blut von 0.65 Prozent (ICRP 2003) vorgenommen werden:

$$PER/\text{Blut } [\mu\text{g/L}] = 0,0065 \cdot PER/\text{Fett } [\mu\text{g/L}]$$

Insbesondere die beiden zuletzt angeführten Konstanten sind als CTE-Schätzer¹⁶ zu verstehen; die Variation in jeder Alters- und Geschlechtsgruppen kann hier ebenso wenig wie die Kovarianz mit dem Alter und dem Geschlecht beurteilt werden (Datenmangel). Ebenso wenig wird die zu erwartende interindividuelle Variation des Blutfettanteils (Summe der Lipide) nicht berücksichtigt. Insbesondere für den Gesamtlipidanteil im Blutfett ist ein Anstieg mit dem Body-Mass-Index (Spearman's Rho $\approx 0,32$ - $0,37$) und damit verbunden dem Lebensalter (Spearman's Rho $\approx 0,35$ (männl.) und Spearman's Rho $\approx 0,45$ (weibl.)) zu erwarten. Da diese Größen das Ergebnis der PER/Blut-Prognose als multiplikative Faktoren direkt beeinflussen, wäre eine empirische Analyse und Dokumentation der zu erwartenden Variation und Unsicherheit auch für diesen Datenbereich wünschenswert, um für lipophile Schadstoffe einen auch in diesem Punkt geprüften Prototyp für ein bevölkerungsbezogenes Expositionsmodell zu entwickeln. Für ältere, insbesondere weibliche Personen mit einem höheren Blutfettanteil würde die Prognose der PER-Blutbelastung in der Tendenz höher ausfallen und damit den Trend der geringeren Atemraten ggf. wiederum ausgleichen. Die interindividuelle Variation (in jeder Altersgruppe) würde die Verteilung der PER/Blut-Prognose weiter spreizen. Geeignete und publizierte Referenzwerte liegen jedoch nicht vor.

Als Vergleichsbasis für Ergebnisse aus PER-Simulationsmodellen wurde die Tabelle 2.27 zusammengestellt; sie dokumentiert statistische Kennziffern für die PER-Körperlast als Vergleichsbasis für die nachfolgend dargestellten Expositionsprognosen.

¹⁶ Zusammengefasste Ergebnisse aus Analysen des Autors zur Körperlast an Dioxinen und weiteren organischen Kohlenwasserstoffen (BAGS 1997, Obi et al. 2005) zeigen einen bedeutsamen Alterstrend für beide Geschlechter. Der ICRP-Schätzer gibt in etwa den Median der berechneten Gesamtlipide (Summe der Cholesterine und Triglyceride im Blut) in der Altersgruppe der 20-35 jährigen Männer und der 35-44 jährigen Frauen wieder; der Variationskoeffizient lag in der Größenordnung von 0,16 - 0,22.

Tabelle 2.27 Zusammenstellung von ausgewählten statistischen Kennwerten der PER-Körperlast in publizierten Untersuchungen

PER/Blut [$\mu\text{g/L}$]	N	Min	Max	AM	Median/ GM ¹⁷	Jahr	Autor
Großstadt	nd	0,10	3,40		0,40	1987/88	Böttger et al (1989)
Patienten	129	0,70	23,00	2,40		1986	Antoine et al.
Nachbarschaft CR	48	2,70	257,00	43,60	31,20	1989	Schäfer & Hohmann
Nachbarschaft CR/Gesamt	86	0,40	437,00	39,90	12,20	1991	Schümann et al.
1.Messreihe	30	2,20	437,00	85,42	52,05		
2.Messreihe	29	0,40	85,50	16,19	6,40		
3.Messreihe	27	0,90	111,30	14,73	7,60		
Industr. Stadt/ Frauen	86	0,01	0,80		GM 0,054	1996	Begerow et al.
Kleinstadt/ Frauen	127	0,01	0,50		GM 0,041		
Industr. Stadt/ Frauen /CR	5	0,09	6,34		GM 0,334		
Kleinstadt/ Frauen /CR	4	0,15	2,41		GM 0,454		
Industr. Stadt/ Kinder	71	<0,004	0,13		GM 0,026		
Kleinstadt/ Kinder	94	<0,004	0,08		GM 0,017		

nd: nicht genannt,

AM: arithmetischer Mittelwert, GM: geometrischer Mittelwert, CR: Wohnen mit Nachbarschaft einer Chemischreinigung

2.8 Entwicklung eines bevölkerungsbezogenen Prognosemodells für die PER-Körperlast

Das Expositionsszenario wurde für den Altersbereich 15 - 64 Jahre und beide Geschlechter stratifiziert unter Nutzung der Angaben zu Aufenthaltszeiten im Innenraum und in der Außenluft für die Wintermonate simuliert und analysiert. Das Gesamtmodell einer Expositionsprognose für den ausgewählten Innenraumschadstoff PER hat als Zusammenfassung der dargestellten Teilanalysen die in Abbildung 2.28 dargestellte Struktur. Neben dem Alter und dem Geschlecht und den hiermit verbundenen möglichen Stratifikationen nach Berufstätigkeit und Verhalten sind die jeweiligen Umweltbedingungen, Innenraum und Außenluft, die stoffspezifischen Eigenschaften und physiologische Parameter die wesentlichen Modelleingangsgrößen. Alle anderen Größen werden in Abhängigkeit von diesen Variablen berechnet. Hierbei wurde die Korrelation zwischen dem Körpergewicht und der Körpergröße in das Modell aufgenommen, da beide Größen in die Berechnung des Body-Mass-Index und indirekt in die Bestimmung des relativen Körperfettanteils eingehen und das Körpergewicht selbst wiederum die Atemrate beeinflusst.

¹⁷ Sofern keine Angaben zum Median vorliegen, wird das geometrische Mittel vielfach als Näherung angegeben. Hintergrund ist die implizite Annahme des Vorliegens einer logarithmischen Normalverteilung, für die Median und geometrisches Mittel zumindest theoretisch zusammenfallen.

sprechend der Datenanalyse zum UBA-Datensatz (UBA 2003a) erstellte Prognosemodell (Abschnitt 2.4.2) genutzt.

Als Zielgrößen können in diesem Modell (a) die tägliche körpertgewichtsbezogene Aufnahme von PER als Indikator der äußeren Exposition und (b) die zu erwartende PER-Blut-Konzentration berechnet werden.

2.8.1 Skriptdarstellung des populationsbezogenen Simulationsmodells

Das Simulationsmodell wurde in seinen Komponenten schrittweise in @Risk® (Version 4.5.2, Palisade Corp. 2002), z. T. zusätzlich in Analytica® (Professional Version 3.0.1; Lumina 2003) und z. T. als Programm in Delphi® (Version 7 Enterprise/Build 4.453, Borland Software Corp. 2002) implementiert. Beide erstgenannten Software-Umgebungen erlauben die vollständige Implementierung des Modells. Die Berücksichtigung einer Alters- und Geschlechtsstratifizierung macht das Tabellenwerk, auch bei großer Disziplin in der Dokumentation und Gestaltung, sehr schwierig zu lesen. Die @Risk-Darstellung als Excel-Arbeitsblatt mit nicht durchgehend erkennbaren Beziehungen zwischen der großen Zahl von Zellen, Bezügen über mehrere Tabellenseiten ist jedoch für eine Dokumentation weniger geeignet. Die Modellierung in Analytica® ist in der graphischen Oberfläche mit sichtbaren Relationen zwischen den Modellvariablen z. T. sehr einfach zu realisieren. Die Nutzung von Modulen, d. h. die Einbettung von Teilmodellen, erleichtert die übersichtliche Gestaltung. Allerdings ist auch hier der algorithmische Teil des Modells (die Abfolge von zu berechnenden Formeln) intern „versteckt“ und daher nicht unmittelbar in nachvollziehbarer Form dokumentierbar. Aus diesem Grund wird hier die Modellstruktur als Formelsammlung dargestellt, die in verschiedenen Softwareumgebungen implementiert werden kann.

Sofern in dem nachfolgend dargestellten Programm auf alters- und geschlechtsspezifische Tabellen zurückgegriffen wird, sind diese direkt hinter der Formel aufgeführt. Die Daten sind weitgehend aus der interaktiven Datenbank für Expositionsfaktoren RefXP übernommen worden. Eine Besonderheit dieser Simulation ist, dass für jede Variable durchgehend gleiche Verteilungsannahmen gewählt wurden. Dies ist z. T. mit der Notwendigkeit einer Berücksichtigung von Korrelationen begründet, für die es nur im Bereich der Normalverteilung bzw. nach exponentieller Transformation für die Lognormalverteilung entsprechende Methoden gibt. Die Auswahl eines festen Verteilungstyps ist dann gerechtfertigt, wenn die in der Datenbank RefXP dokumentierte Likelihood-Ratio-Anpassung des gewählten Verteilungstyps vergleichbar gut¹⁸ ist, wie die „beste“ Anpassung.

¹⁸ Obwohl die Entscheidung, was vergleichbar gut sei, meist subjektiv und aus der Erfahrung des Expositionsabschätzers abgeleitet ist, kann als „Daumenregel“ angewandt werden, dass eine Abweichung in der zweiten Nachkommastelle nur selten zu einer statistisch begründeten (signifikanten) Abweichung der Anpassungsgüte führen wird.

Teilbereiche dieses Modells wurden bereits zu einem Zeitpunkt entwickelt, zu dem noch nicht die entsprechenden Xprob-Referenzwerte abgeleitet waren. Da Reanalysen für einzelne Altersbereiche mit jeweils spezifischen, entsprechend der RefXP-Datenbank ausgewählten Verteilung jedoch keine abweichenden Ergebnisse zeigten, wurde das komplexe Gesamtmodell nicht geändert. Da Korrelationen in der aktuellen Fassung der Datenbank RefXP noch nicht dokumentiert sind, wurden diese aus den Datensätzen des BGS 1998 (Alter > 18) und aus der NVS 1986 (Kinder und Jugendliche) gesondert für diese Simulation abgeleitet. Hier wird dem Umweltbundesamt empfohlen, der Problematik von Korrelation in Expositionsmodellen weiter nachzugehen bzw. entsprechende F&E-Vorhaben zu unterstützen. Auf dem gegenwärtigen Kenntnisstand kann nur exemplarisch geprüft werden, ob, in welcher Größenordnung und bezüglich welcher Charakteristika sich Expositionsprognosen ändern, wenn existierende Abhängigkeiten nicht berücksichtigt werden.

Tabelle 2.28 Simulationsskript in Formeldarstellung¹⁹

// Eigenschaften und Parameter der Substanz PER

ResRate=1.0 //BUA(1994)

//Kinetik von PER

BHZ=2.71 //Eliminationshalbwertszeit = 65 [h] = 2.71 [d] BUA(1994)

k=Ln(2)/BHZ //Eliminationsrate k=Ln(2)/BHZ [h]

//Angaben zur Simulation der personenbezogenen Daten

Age=rUniform(15,65) //Alter als Gleichverteilung zwischen 15 und 64

ACat=trunc((Age-15)/10)+1 //Alterskategorie zur Analyse (10-Jahresklassen)

Sex=1 //Frauen=0 ; Männer=1 → Deurenberg-Formel

//Daten zur Anthropometrie und Physiologie

//Körpergewicht [kg] : Lesen des Gruppenmittelwertes und der geom. Standardabw.

//Körpergewicht aus Tabelle Xprob //Quelle : BGS 1998

bwGM=Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht²⁰ //geometrischer Mittelwert

bwGS= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht //geometrische Standardabweichung

bW0= Normal(Ln(bwGM),Ln(bwGS)) //Generieren entspr. Normalverteilung

// In den nachfolgenden Tabellen werden folgende Abkürzungen verwendet:

//Sex = Geschlecht (F Frauen), (M Männer)

//AgeMid = Klassenmitte der Alterskategorien

//gMn= geometrischen Mittel ; gSD = geometrische Standardabweichung / Streufaktor

//Rho= Spearman's Rho

SEX	AGEMID	GMN	GSD
F	8.0	29.88	1.30
F	13.5	50.49	1.20
F	20.5	60.04	1.17
F	29.5	64.53	1.19
F	39.5	67.09	1.20
F	49.5	70.81	1.21
F	59.5	71.53	1.20
F	67.0	70.58	1.20

SEX	AGEMID	GMN	GSD
M	8.0	30.49	1.27
M	13.5	51.00	1.26
M	20.5	73.50	1.18
M	29.5	80.22	1.17
M	39.5	83.06	1.16
M	49.5	83.16	1.16
M	59.5	81.19	1.16
M	67.0	79.03	1.16

¹⁹ Kommentare sind durch „//“ abgegrenzt.

²⁰ In der Simulation wird für jedes Objekt der Wert der Tabelle eingesetzt, für den die Distanz des jeweiligen Alters zum Mittelpunkt einer der Altersgruppen am niedrigsten ausfällt.

//Körpergröße [m] : Lesen des Gruppenmittelwertes und der geom. Standardabw.

bhGM= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht //geometrischer Mittelwert

bhGS= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht //geometrische Standardabweichung

SEX	AGEMID	GMN	GSD
F	7.0	1.29	1.07
F	12.5	1.55	1.07
F	20.5	1.68	1.04
F	29.5	1.65	1.04
F	39.5	1.63	1.04
F	49.5	1.62	1.04
F	59.5	1.60	1.04
F	67.0	1.58	1.04

SEX	AGEMID	GMN	GSD
M	7.5	1.33	1.08
M	13.0	1.59	1.08
M	20.5	1.80	1.04
M	29.5	1.78	1.04
M	39.5	1.76	1.04
M	49.5	1.75	1.04
M	59.5	1.72	1.04
M	67.0	1.69	1.04

//Korrelation zwischen Körpergewicht [kg] und -größe [m] : Simulation

rxvWH= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht //geometrischer Mittelwert

SEX	AGEMID	RHO
F	4.0	0.38
F	8.0	0.68
F	13.0	0.79
F	18.0	0.44
F	19.0	0.40
F	23.0	0.44
F	28.0	0.40
F	38.0	0.33
F	48.0	0.32
F	58.0	0.30
F	68.0	0.25

SEX	AGEMID	RHO
M	4.0	0.54
M	8.0	0.67
M	13.0	0.81
M	18.0	0.52
M	19.0	0.31
M	23.0	0.49
M	28.0	0.44
M	38.0	0.37
M	48.0	0.41
M	58.0	0.41
M	68.0	0.45

//Körpergröße [m] : Generieren als korrelierte normalverteilte Größe

bh0=rxv_Normal(Ln(bwGM),Ln(bwGS),bw0, Ln(bhGM),Ln(bhGS),rxvWH)

bw=exp(bw0)

//Exponieren → lognormalverteilte Größe

bh=exp(bh0)

//Exponieren → lognormalverteilte Größe

//Abgeleitete anthropometrische Größen und Konstanten

BMI=BW/sqr(BH)

//Body mass index [kg/m²]

PFat=((1.20·BMI)+(0.23·Age)-(10.8·Sex)-5.4)/100

//Berechnung des relativen Körperfettanteils

//Deurenberg P, Weststrate JA, Seidell JC. (1991)

//Br J Nutr 1991; 65:105-114.

BFat=BW·pFat

//Körperfett-Kompartiment [kg]

SPWFat=0.92

//spez. Gewicht von Körperfett ICRP(2003)

FatInBld=0.0065

//Fettanteil/Blut ICRP(2003)

//Atemrate in Abhängigkeit vom Gewicht

Loc=193.99

//Cal EPA (2000 Adult popuation breathing rate [L/kg·d]

Scale=31.27

Shape=2.46

Br3=rGamma(Loc,Shape,Scale)

//Cal EPA (2000 Children popuation breathing rate [L/kg·d]

LocC=301.67

ScaleC=29.59

ShapeC=5.06

BrC3=rGamma(LocC,ShapeC,ScaleC)

BrthSL=(If(Age<12.0,BrC3,Br3))-0.001

//Differenzierung nach Alter und Transformation [L→m³]

// Interpolation des Zeitbudgets

// nach Schlaf (SL), Sitzen (SI), Leicht- (LI), Medium- (ME), Schweraktivität (HE)

// Hierarchietyp: (Sleep)(Sit)(Light) (Heavy) jeweils als Gammaverteilung aus Mittelwert und Standardabw.

// Schlafen

SLMnA= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Mittelwert des relativen Schlafanteils / Tag

SLSDA= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Standardabw. des relativen Schlafanteils/ Tag

SEX	AGEMID	MEAN	SD
F	18.5	0.342	0.063
F	22.5	0.334	0.045
F	27.5	0.326	0.052
F	32.5	0.320	0.051
F	37.5	0.315	0.046
F	42.5	0.320	0.048
F	47.5	0.316	0.055
F	52.5	0.321	0.048
F	57.5	0.331	0.051
F	62.5	0.341	0.055
F	67.5	0.348	0.080

SEX	AGEMID	MEAN	SD
M	18.5	0.318	0.054
M	22.5	0.303	0.043
M	27.5	0.303	0.043
M	32.5	0.308	0.064
M	37.5	0.301	0.058
M	42.5	0.298	0.047
M	47.5	0.312	0.062
M	52.5	0.309	0.047
M	57.5	0.314	0.053
M	62.5	0.334	0.058
M	67.5	0.356	0.056

SLA=24·rGammaMS(SLMnA,SLSDA)

// Schlaf [h] / Tag

// Sitzen

SIMnA= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Mittelwert des relativen Sitzanteils / Tag

SISDA= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Standardabw. des relativen Sitzanteils/ Tag

SEX	AGEMID	MEAN	SD
F	18.5	0.308	0.143
F	22.5	0.315	0.131
F	27.5	0.278	0.142
F	32.5	0.255	0.132
F	37.5	0.281	0.136
F	42.5	0.271	0.131
F	47.5	0.273	0.131
F	52.5	0.295	0.141
F	57.5	0.295	0.141
F	62.5	0.272	0.109
F	67.5	0.286	0.121

SEX	AGEMID	MEAN	SD
M	18.5	0.283	0.144
M	22.5	0.303	0.043
M	27.5	0.303	0.043
M	32.5	0.292	0.161
M	37.5	0.293	0.156
M	42.5	0.306	0.163
M	47.5	0.308	0.153
M	52.5	0.326	0.156
M	57.5	0.306	0.144
M	62.5	0.286	0.126
M	67.5	0.271	0.115

SIA=24·rGammaMS(SIMnA,SISD)

A) // Sitzen [h] / Tag

// Leichte Aktivität

LIMnA= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Mittelwert des relativen Leichtakt.-Anteils / Tag

LISDA= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Standardabw. des relativen Leichtakt.-Anteils / Tag

SEX	AGEMID	MEAN	SD
F	18.5	0.183	0.108
F	22.5	0.207	0.114
F	27.5	0.239	0.118
F	32.5	0.256	0.117
F	37.5	0.246	0.121
F	42.5	0.241	0.112
F	47.5	0.247	0.119
F	52.5	0.225	0.116
F	57.5	0.241	0.108
F	62.5	0.245	0.096
F	67.5	0.245	0.104

SEX	AGEMID	MEAN	SD
M	18.5	0.14	0.095
M	22.5	0.163	0.118
M	27.5	0.163	0.118
M	32.5	0.162	0.11
M	37.5	0.167	0.106
M	42.5	0.162	0.113
M	47.5	0.173	0.115
M	52.5	0.164	0.107
M	57.5	0.189	0.121
M	62.5	0.196	0.107
M	67.5	0.211	0.108

LIA=24·rGammaMS(LIMnA,LISDA)

// Leichte Aktivität [h] / Tag

// Mittelschwere Aktivität

MEMnA= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Mittelwert des relativen Mittelakt.-Anteils / Tag

MESDA= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Standardabw. des relativen Mittelakt.-Anteils / Tag

SEX	AGEMID	MEAN	SD
F	18.5	0.095	0.080
F	22.5	0.100	0.092
F	27.5	0.111	0.091
F	32.5	0.126	0.101
F	37.5	0.115	0.092
F	42.5	0.118	0.082
F	47.5	0.116	0.093
F	52.5	0.116	0.094
F	57.5	0.114	0.084
F	62.5	0.109	0.079
F	67.5	0.100	0.077

SEX	AGEMID	MEAN	SD
M	18.5	0.131	0.110
M	22.5	0.133	0.120
M	27.5	0.133	0.120
M	32.5	0.131	0.122
M	37.5	0.137	0.128
M	42.5	0.137	0.123
M	47.5	0.120	0.118
M	52.5	0.125	0.125
M	57.5	0.114	0.109
M	62.5	0.112	0.088
M	67.5	0.100	0.093

MEA=24·rGammaMS(MEMnA,MESDA)

// Mittelschwere Aktivität [h] / Tag

// Schwere/anstrengende Aktivität

HEMnA= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Mittelwert des relativen Schwerakt.-Anteils / Tag

HESDA= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Standardabw. des relativen Schwerakt.-Anteils / Tag

SEX	AGEMID	MEAN	SD
F	18.5	0.072	0.097
F	22.5	0.043	0.073
F	27.5	0.045	0.083
F	32.5	0.042	0.071
F	37.5	0.043	0.070
F	42.5	0.051	0.075
F	47.5	0.047	0.082
F	52.5	0.043	0.077
F	57.5	0.050	0.075
F	62.5	0.033	0.053
F	67.5	0.022	0.050

SEX	AGEMID	MEAN	SD
M	18.5	0.128	0.118
M	22.5	0.111	0.130
M	27.5	0.111	0.130
M	32.5	0.106	0.130
M	37.5	0.102	0.127
M	42.5	0.097	0.118
M	47.5	0.087	0.111
M	52.5	0.076	0.108
M	57.5	0.077	0.114
M	62.5	0.072	0.085
M	67.5	0.063	0.082

HEA=24·rGammaMS(HEMnA,HESDA)

// Schwere/anstrengende Aktivität [h] / Tag

// Renormierung der Zeitanteile auf 24 Stunden

SUM2=SLA+SIA+LIA+LIA+HEA

// Summe der Aktivitäten [h] / Tag

SL=24·SLA/sum2

// Renormiert Schlaf [h] / Tag

SI=24·SIA/sum2

// Renormiert Sitzen [h] / Tag

LI=24·LIA/sum2

// Renormiert Leichte Aktivität [h] / Tag

ME=24·MEA/Sum2

// Renormiert Mittelschw. Aktivität [h] / Tag

HE=24·HEA/Sum2

// Renormiert schwere Aktivität [h] / Tag

// Innen - Aussen - Zeiten nach BGS'91

Otm= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Mittelwert der Zeit aussen / Tag (Winter)

OtmD= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Median der Zeit aussen / Tag (Winter)

ATPx= Tabelleneintrag nach Alter und Geschlecht // Anteil von Nullangaben / Tag (Winter)

SEX	AGEMID	MEAN	MED	rNULL
F	6.5	2.32	2.00	0.00
F	12.0	2.42	2.00	0.00
F	29.5	0.91	0.60	0.25
F	39.5	0.81	0.51	0.28
F	49.5	0.75	0.50	0.32
F	59.5	0.96	0.78	0.26
F	72.0	1.05	0.98	0.20

SEX	AGEMID	MEAN	MED	rNULL
M	6	2.39	2.00	0.00
M	11.5	2.70	2.50	0.00
M	29.5	1.52	0.52	0.26
M	39.5	1.33	0.52	0.30
M	49.5	1.67	0.97	0.27
M	66.5	1.71	1.00	0.20

OutW=ZeroRnd(ATPx,rLogNrmMM (OtMd,Otm)) siehe Fußnote21, 22 // Stunden im Außenbereich [h] / Tag
 // berechnet als Lognormal aus Mittelw.&Median
 OutW=If(OutW>24.0,24.0,OutW) // Kontrolle für 24-h-Überschreitung
 OutW=OutW/24 // Relativer Aussenanteil / Tag
 InW=1-OutW // Relativer Innenraum-Anteil / Tag

//Verteilung der Aktivitäten nach Innen/Aussen ohne Schlaf (siehe auch Abs. 2.4.3)

NSL=(24-SL) // Nichtschlafanteil / Tag
 OutSit=Si·Outw // Aussen-Sitzen / Tag
 InSit=Si·InW // Innen-Sitzen / Tag
 OutLi=Li·Outw // Aussen-Leichte Akt. / Tag
 InLi=Li·InW // Innen-Leichte Akt. / Tag
 OutMe=Me·Outw // Aussen -Mittelschwere Akt. / Tag
 InMe=Me·InW // Innen -Mittelschwere Akt. / Tag
 OutHe=He·Outw // Aussen -Schwere Akt. / Tag
 InHe=He·InW // Innen -Schwere Akt. / Tag

//PER-Innenraum-Konzentration (UBA 1991) in µg/m³ (siehe auch Abs. 2.4.2)

InnenraumKonzentration =	Präv.	Koeff.(Ln)
Exp(Baseline	100 %	1.64
+ Industrienähe (1 km)	37.4 %	0.20
+ Vorstadt	34.1 %	0.20
+ Stadt	24.8 %	0.29
+ Saison (Sommer)	25.0 %	-0.61
+ Nachbarschaft Chem. Reinig.	0.1 %	5.29
+ Kleidung / Chem. Reinig.	0.5 %	2.57
+ Residualvarianz)	100 %	NV(0,0.91)

technisch in Scriptform:

aBase=1.641 // Basisbelastung
 aResid=rNormal(0.0,0.913) // Basis-Variation
 aIndustrie=rpArray /Prob=0.374 0.626 /Values= 0.2 0.0 // Industrie
 aSaison=rpArray /Prob=0.25 0.75 /Values= -0.61 0.0 // Sommerabschlag
 aRegio=rpArray /Prob=0.248 0.341 0.411 /Values= 0.29 0.2 0 // Großstadt – Stadt/urban - Land
 aCR=rpArray /Prob=0.001 0.999 /Values= 5.29 0.0 // Chemisch-Reinigung
 aKCR=rpArray /Prob=0.005 0.995 /Values= 2.57 0.0 // Nutzung chem.gereinigter Kleidung
 SumInR=exp(aBase+aResid+aIndustrie+aSaison+aRegio) // Immission ohne Chem.Reinigung
 SumInPER=exp(aBase+aResid+aIndustrie+aSaison+aRegio+aCR+aKCR)
 // Immission mit Chem.Reinigung

²¹ In dieser Simulation werden, wenn sonst keine ausreichenden Daten zur Verfügung stehen, in Einzelfällen die Parameter der Lognormalverteilung aus dem Mittelwert und dem Median geschätzt. Dies erfolgt vor dem Hintergrund, dass der Median (Med) bei Vorliegen einer Lognormalverteilung deutlich unter dem arithmetischen Mittelwert (Mean) liegt, aus der Differenz kann näherungsweise (unter Annahme der Gleichheit von Median und geom. Mittelwert) der Streufaktor SF abgeleitet $SF:=\sqrt{2 \cdot (\ln(\text{Mean}/\text{Med}))}$ und damit eine logarithmisch normalverteilte Größe simuliert werden: $\text{Wert}:=\exp(r\text{Normal}(\ln(\text{med}),\text{vs}))$, d. h. dass der Wert eines normalverteilten Zufallswertes exponentiert wird, um zu lognormalverteilten Daten zu gelangen.

²² In diesem Ansatz wird zuerst geprüft, ob entsprechend der Prävalenz der Null-Angaben eine Null als Ergebnis generiert wird, oder ob entsprechend der gewählten Verteilung eine lognormalverteilte Größe als Ergebnis gewählt wird.

//Analytischer Ansatz: Aussenluft (LAI 2002) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (s.a. Abs. 2.4.1)

SumOutPER=rLogNrmMM(0.5,1)

// Basisbelastung Aussen nach LAI (2002)

// berechnet Lognormalvert.

//aus Mittelw.&Median

//Uptake pro Tag: Prognose $[\mu\text{g}/\text{d}]$ und $[\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{d})]$

UpSleep=SL·BrthSL·SumInPER

//Aufnahme PER im Schlaf

UpSit=Si·BrthSL·1.22·SumInPER

//Aufnahme PER im Sitzen

UpLight=InW·Li·BrthSL·2·SumInPER+(1-InW)·Li·BrthSL·2·SumOutPER

//Aufnahme PER leichte Akt.

UpMed=InW·Me·BrthSL·4·SumInPER+(1-InW)·Me·BrthSL·4·SumOutPER

//Aufnahme PER mittlere Akt.

UpHeavy=InW·He·BrthSL·7·SumInPER+(1-InW)·He·BrthSL·7·SumOutPER

//Aufnahme PER schwere A.

UpPER=UpSleep+UpSit+SumInPER+UpMed+UpHeavy

//Gesamtaufnahme von PER

UpPerKg= UpPER/ bw

//Gesamtaufnahme von PER/KG

//Steady State – Prognose des Gesamtburden $[\mu\text{g}]$ (s.a. Abs.2.7)

StSt= UpPER/k

//Steady State $[\mu\text{g}]$ = Intake $[\mu\text{g}/\text{d}]$ / Eliminationsrate $[\cdot/\text{d}]$

//Steady State umgerechnet in $[\mu\text{g}/\text{kg}]$ und in $[\mu\text{g}/\text{L}]$

PERFat=StSt/BFat

//PER/Fett $[\mu\text{g}/\text{kg}]$ = Steady State / Body fat

PERFatL=PERFat·SPWFat

//PER/Fett $[\mu\text{g}/\text{L}]$ = PER/Fett $[\mu\text{g}/\text{kg}]$ · [default=0.92]

//Target PER/Blood

PERBld=FatInBld·PERFatL

//PER/Blut $[\mu\text{g}/\text{L}]$ = 0.0065 · PER/Fett $[\mu\text{g}/\text{L}]$

2.8.2 Ergebnisse der bevölkerungsbezogenen Expositionsprognose

Aus der Simulation mit je 1000 Wiederholungen pro Altersgruppe/Geschlecht ergeben sich unter den ausgewählten Randbedingungen folgende Verteilungen für die simulierten Modellgrößen und die Zielgrößen der Expositionsprognose. Hier wird die Detailsicht exemplarisch für die Gruppe der Frauen dargestellt.

Aus den Simulationen ergeben sich die in Tabelle 2.29 dargestellten Ergebnisse, aus denen folgende Schlüsse gezogen werden:

- Die zentrale Tendenz und Spannweiten der Eingangsgrößen entsprechen den Erwartungen, die Wahl der Verteilungsannahmen hat in der Simulation nicht zu unrealistischen bzw. fachlich unplausiblen „Ausreißern“ geführt.
- Die Aufnahme von PER erfolgt weitgehend im Innenraum, im medianbezogenen Vergleich liegt der Einfluss der Innenraum-bezogenen Aufnahme ca. um den Faktor 5-6 höher als der aus der Außenluft.
- Mit Ausnahme der Anteile aus schwerer/anstrengender Aktivität sind die Aufnahmeanteile aus der Schlafzeit und den leichten bis mittelschweren Aktivitäten in etwa gleich; hier gleichen sich die unterschiedlichen Atemraten gegen die Unterschiede in den Zeitanteilen in etwa aus.
- Die PER-Aufnahme pro Tag liegt im Median mit 51 $[\mu\text{g}/\text{d}]$ nicht sehr weit unter der in Abschnitt 2.5.2 sehr grob geschätzten Aufnahme von 84 $[\mu\text{g}/\text{d}]$,

das 95 %-Quantil liegt unter den hier vorliegenden Randbedingungen jedoch mit 272 [$\mu\text{g}/\text{d}$] deutlich über diesem Schätzwert.

- (e) Die Extrema der Verteilung werden durch die in der Prävalenz niedrig eingeschätzten Größen „Nachbarschaft zu einer Chemischreinigung“ und „Tragen von chemisch gereinigter Kleidung“ bestimmt.
- (f) Für eine gezielte, auf Abweichungen/Auffälligkeiten bei Vorliegen selten auftretender Risikofaktoren ausgerichtete Expositionsanalyse hätte das Modell eine gesonderte Stratifizierung aufnehmen müssen. Die Anzahl der Simulationen pro Alters- und Geschlechtsgruppe reicht für eine gesonderte statistische Betrachtung des Einflusses z. B. des Tragens von chemisch-gereinigter Kleidung hier nicht aus. Bei 1000 Simulationen pro Gruppe wäre bei einer Prävalenz von 1:1000 auch nur ein Fall dieser spezifischen Exposition in der Simulation zu erwarten. Diese Einschränkung trifft für alle Expositionsfaktoren zu, die eine niedrige Expositionsprävalenz haben. Die hier gewählte Form der bevölkerungsbezogenen Simulation entspricht jedoch gleichzeitig der Situation, in der sich auch epidemiologische Querschnittstudien befinden: Entweder wird auf angemessene Analyse der Populationsverteilung gezielt oder es muss eine nach Expositionsfaktoren gesondert geschichtet durchgeführte Analyse erfolgen. Dies wird für die Nachbarschaft zu Chemischreinigungen am Beispiel der Hamburger Daten in Abschnitt 2.9 erfolgen.
- (g) Die Prognose der PER-Konzentration im Blut liegt im Median mit 0.08 PER $\mu\text{g}/\text{L}$ in der Größenordnung leicht über den in Tabelle 2.27 für NRW dargestellten Werten (Begerow et al. 1996). Dies wäre wegen der zwischen 1990-1995 zu erwartenden Senkung der PER-Luftbelastung zu erwarten gewesen. Die Spannweite der prognostizierten PER-Konzentration liegt für das 99 %-Quantil in etwa in einer vergleichbaren Größenordnung.

Tabelle 2.29 Quantile der simulierten Verteilungen (Gruppe der Frauen)

Abk.	1,0%	5,0%	25,0%	50,0%	75,0%	95,0%	99,0%	Variable
age	5,524	17,511	27,524	39,647	52,326	62,306	64,377	Alter y
BW	2,248	48,279	58,341	66,564	75,892	91,476	102,852	Gewicht kg
BH	1,466	1,520	1,585	1,632	1,680	1,750	1,798	Körpergr. m
BMI	6,113	18,227	21,832	25,003	28,590	34,483	39,631	BMI kg/m ²
PFat	0,078	0,111	0,173	0,232	0,292	0,375	0,442	%(Krp.Fett*100)
Bfat	3,406	5,650	10,365	15,387	21,709	33,441	44,204	Körperfett kg
BrthSL	0,202	0,210	0,234	0,260	0,297	0,365	0,421	Atem m ³ /d*kg
Abk.	1,0%	5,0%	25,0%	50,0%	75,0%	95,0%	99,0%	Variable
SL	3,776	4,598	5,949	7,107	8,500	10,906	12,863	Schlaf h/d
SI	1,592	2,500	4,333	5,914	7,726	10,478	12,213	Sitzen h/d
LI	1,331	2,187	3,693	4,800	5,887	7,303	8,188	Leicht h/d
ME	0,076	0,279	0,975	1,940	3,436	6,607	9,857	Medium h/d
HE	0,000	0,000	0,048	0,353	1,279	3,955	6,586	Schwer h/d
InW	0,774	0,875	0,954	0,979	0,998	1,000	1,000	Anteil Innen
OutW	0,000	0,000	0,002	0,021	0,046	0,125	0,226	Anteil Aussen
Abk.	1,0%	5,0%	25,0%	50,0%	75,0%	95,0%	99,0%	Variable
SumInPER	0,584	1,159	3,041	5,892	10,961	27,541	54,078	PER Ind,µg/m ²
SumOutPER	0,033	0,074	0,233	0,494	1,099	3,456	7,641	PER Out,µg/m ²
UpSleep	0,983	2,051	5,640	11,039	21,067	57,563	119,840	µg/d PERSchlaf
UpSit	0,829	1,743	5,089	10,740	21,307	60,657	128,727	µg/d PER Sitzen
UpLight	1,127	2,269	6,778	13,689	27,560	71,623	162,067	µg/d PER Leicht
UpMed	0,219	0,882	4,138	11,043	26,047	89,192	256,246	µg/d PER Medium
UpHeavy	0,000	0,005	0,439	3,369	14,344	69,583	181,024	µg/d PER Schwer
Abk.	1,0%	5,0%	25,0%	50,0%	75,0%	95,0%	99,0%	Variable
UpPer	4,540	8,887	25,357	51,640	99,620	271,784	612,995	µg/d PER Summe
StSt	7,752	34,746	99,137	201,896	389,483	1062,595	2396,629	µg Steady state
UpPerKg	0,066	0,133	0,372	0,770	1,539	4,301	9,352	µg/(kg*d) PER
PERBld	0,005	0,012	0,036	0,080	0,177	0,567	1,333	µg/L PER/Blut

Eine nach Alters- und Geschlechtsgruppen stratifizierte Analyse der Zielgröße prognostizierter PER-Konzentration im Blut (Tabellen 2.30 und 2.31) zeigt, dass für jüngere Personen (auch bei einer niedrigeren Aufenthaltszeit im Innenraum) eine höhere Exposition zu erwarten wäre. Dieses Ergebnis kann auf dem Zusammenwirken mehrerer Faktoren beruhen: (a) Das angegebene Aktivitätsniveau und damit die Atemrate liegt für jüngere Personen tendenziell höher, (b) die Variablen Körpergröße und -gewicht sind noch stärker korreliert mit der Folge, dass der BMI und damit das Verteilungsvolumen (das Fettkompartiment) niedriger liegen wird²³.

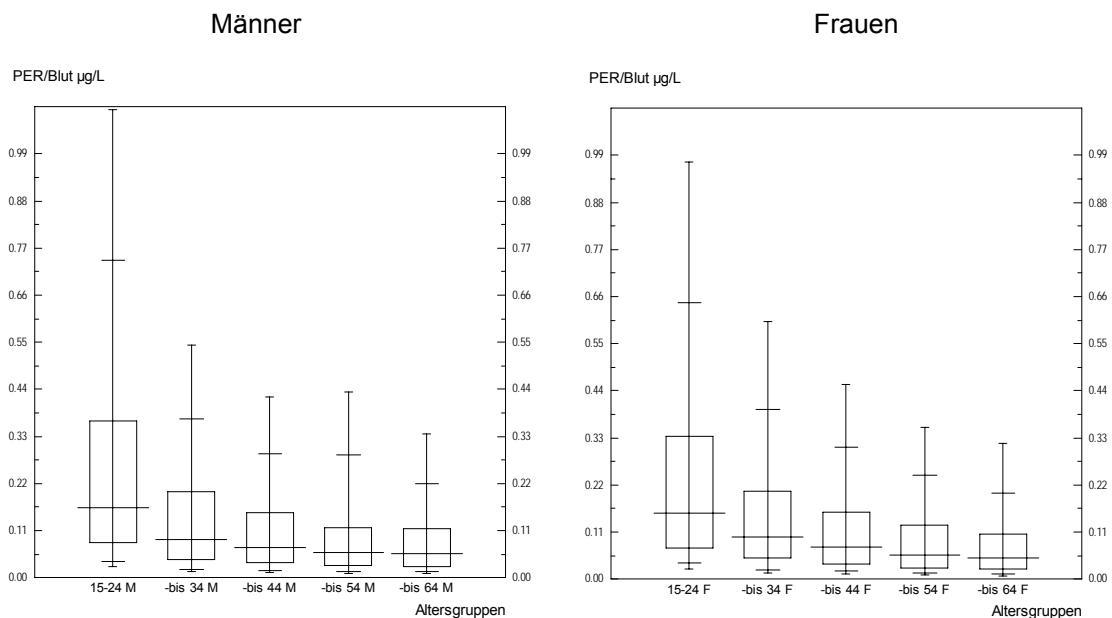
²³ Es sei angemerkt, ohne hier detailliert auf die explorativen Ergebnisse einzugehen, dass die Nichtberücksichtigung von Korrelation zwischen der Körpergröße und dem Körpergewicht zu einer Spreizung der Verteilung der PER/Blut-Konzentration führt. Für kleinere Personen wird die Häufigkeit eines hohen Körpergewichts fälschlich zu hoch eingeschätzt, für große Personen wird die Häufigkeit auch eines abnorm niedrigen Körpergewichts ebenfalls zu hoch angesetzt. Dies führt für die Berechnung der Verteilungsvolumina zu unplausiblen Wertekombinationen, die sich insbesondere in den Extrembereichen der Verteilung auswirken. In der zentralen Tendenz wirkt sich die Nichtberücksichtigung von Korrelation vergleichsweise niedrig aus.

Tabelle 2.30 Alters- und geschlechtsstratifizierte Betrachtung der Quantile der Expositionsprognose für PER im Blut / Männer

Männer	Quantile der PER/Blutkonz. [$\mu\text{g/L}$]						
Altersgrp.	5	10	25	50	75	90	95
15-24	0,027	0,038	0,082	0,164	0,366	0,741	1,094
25-34	0,014	0,020	0,041	0,089	0,201	0,371	0,543
35-44	0,011	0,017	0,035	0,071	0,153	0,289	0,421
45-54	0,009	0,014	0,029	0,059	0,117	0,288	0,433
55-64	0,009	0,013	0,026	0,056	0,115	0,218	0,335

Tabelle 2.31 Alters- und geschlechtsstratifizierte Betrachtung der Quantile der Expositionsprognose für PER im Blut / Frauen

Frauen	Quantile der PER/Blutkonz. [$\mu\text{g/L}$]						
Altersgrp.	5	10	25	50	75	90	95
15-24	0,025	0,037	0,073	0,154	0,333	0,647	0,974
25-34	0,014	0,022	0,050	0,099	0,205	0,396	0,602
35-44	0,012	0,018	0,036	0,075	0,156	0,307	0,454
45-54	0,009	0,014	0,027	0,057	0,126	0,243	0,354
55-64	0,008	0,013	0,024	0,049	0,104	0,202	0,316

Abbildung 2.29 Alters- und geschlechtsstratifizierte Betrachtung der Quantile der simulierten Expositionsprognose für PER im Blut

Quantile: 5 %, 10 %, 25 %, 50 %, 75 %, 90 %, 95 % der Verteilung,
markiert durch die horizontalen Linien

Die Abbildungen für Männer und Frauen (Abbildung 2.29) zeigen deutlich die Einflüsse des Alters auf die zentrale Tendenz und die zu erwartenden Variation deutlich. Die Variationsbreite nimmt mit dem Alter systematisch ab. Die Gruppen der Männer und Frauen unterscheiden sich nicht systematisch.

Eine Analyse der Rangkorrelationen zwischen den Einflussgrößen und den Zielgrößen PER-Aufnahme pro Tag, unadjustiert und körpergewichtsbezogen, und prognostizierter PER-Konzentration im Blut zeigt die Größenordnung des Einflusses (Sensitivität) der Eingangsgrößen auf die Zielgröße PER im Blut. In Tabelle 2.32 ist dies für die beiden Geschlechtsgruppen dargestellt. Ein Vergleich der Geschlechtsgruppen zeigt keine Abweichungen in der Zusammenhangsstruktur. Das Alter hat für die Aufnahmemenge kein relevantes Gewicht, für die körpergewichtsbezogenen Aufnahmemenge und noch stärker für die Prognose der Körperlast hat es, vermittelt über die Veränderung der Konstitution (Körpergewicht und relativer Körperfettanteil) und die Atemrate ein deutlich höheres Gewicht.

Die beitragsstärkste Einflussgröße auf alle Zielgrößen ist, wie nach den Voranalysen zu erwarten, die PER-Innenraumbelastung. Der direkte Einfluss der Außenluft wird dagegen als marginal einzustufen sein. Ein überwiegend leichtes Aktivitätsniveau senkt den möglichen Beitrag der Innenraumbelastung, ein hoher Anteil an mittelschwerer und anstrengender Tätigkeit verstärkt den Einfluss der Innenraumbelastung deutlich. Diese Wechselbeziehung in den konkurrierenden Zeitanteilen verdeutlicht vor dem Hintergrund der oben diskutierten Unsicherheiten, dass eine Verbesserung der Datenlage hier zu einer wesentlichen Modellverbesserung beitragen könnte.

Tabelle 2.32 Sensitivitätsbetrachtungen (Rangkorrelation Spearman's Rho) für die Zielgrößen PER-Aufnahme pro Tag, körpergewichtsbezogene PER-Aufnahme pro Tag und PER/Blut nach Geschlecht

	Frauen			Männer		
	Aufnahme /d	Aufnahme /kg·d	PER/Blut	Aufnahme /d	Aufnahme /kg·d	PER/Blut
Alter	-0,04	-0,11	-0,34	-0,06	-0,11	-0,31
Körpergröße	0,02	-0,02	0,08	0,02	-0,04	0,02
Körpergewicht	-0,01	-0,19	-0,42	-0,01	-0,17	-0,35
Atemvolumen	0,14	0,14	0,13	0,16	0,15	0,13
Schlaf	0,06	0,06	0,08	0,06	0,06	0,07
Sitzen	0,05	0,06	0,08	0,02	0,02	0,02
Leichte Akt.	-0,16	-0,18	-0,20	-0,20	-0,21	-0,22
Mittelschw. Akt.	0,23	0,22	0,18	0,22	0,22	0,21
Schwere Akt.	0,18	0,19	0,20	0,24	0,25	0,26
Innenraum-PER	0,92	0,90	0,80	0,91	0,89	0,81
Außenluft-PER	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,00

2.9 Evaluation der Übereinstimmung zwischen Prognose und Messungen im Hamburger Untersuchungsprogramm

Für das Hamburger Untersuchungsprogramm im Zusammenhang mit der Sanierung von Chemischreinigungen liegen die wesentlichen Daten für Anwohner aus der Nachbarschaft von Chemischreinigungen vor. Die PER-Blutkonzentrationen und die Innenraumraumbelastung sind bekannt. Die Datenerhebung, die Analysen und die Hauptergebnisse wurden in Abschnitt 2.3.1 ausführlich dargestellt. Das Innenraumzeitbudget in den der Blutmessung vorausgegangene 48 Stunden wurde dort erhoben. Als Modellevaluation kann daher geprüft werden, ob das im vorausgehenden Abschnitt formulierte Modell einerseits eine in der Größenordnung und in der Variation insgesamt angemessene Prognose der PER/Blut-Konzentration und andererseits eine hinreichende individuelle Prognose für die einzelnen Untersuchungsteilnehmer/innen erlaubt. Die Evaluation der Prognosegüte erfolgt dabei in Anlehnung an die in Teil 1, Kapitel 8.4.2 dargestellten methodischen Ansätze für personenbezogene Daten bei Vorliegen der individuellen Expositionsprognosen und der individuell gemessenen PER/Blut-Belastungen.

Die Prognose der zu erwartenden PER-Blutbelastung wurde wiederum ausgehend von einem einfachen Ein-Kompartimentmodell (Körperfett mit vereinfachter Kinetik 1. Ordnung) in Übereinstimmung mit den getroffenen Modellannahmen berechnet. Für 58 der 86 PER/Blut-Messungen lagen die in das Modell eingehenden Angaben zum Alter, zum Geschlecht, zum Körpergewicht, zur Körpergröße und zur Aufenthaltszeit in der Wohnung vollständig pro Datensatz vor. Aus diesen Daten wurden jeweils das körpergewichtsabhängige Atemvolumen und der erwartete Körperfettanteil auf der Basis von Modellgleichungen berechnet. Für die Außenluft wurde ein konstanter Außenluft-PER-Wert von $0,05 \text{ mg/m}^3$ für alle Personen angenommen, um den zurückliegenden höheren innerstädtischen Messungen abzubilden. Die individuelle Prognoseberechnungen wurden in SPSS 12.0.1 (SPSS[®] Inc. 2003) direkt als Skript durchgeführt.

Tabelle 2.33 SPSS-Skript zur Prognose der individuellen PER-Körperlast²⁴

* **Modell-Eingangsgrößen aus der Messreihe (Eingabedaten, N=86 inkl. fehlender Werte)**

* age Alter
 * Sex Geschlecht
 * gew Körpergewicht
 * bmi Body Mass Index
 * Zeit Aufenthaltszeit in der Wohnung (48 std.) vor Blutentnahme
 * gew Körpergewicht
 * plftp PER-Passivmessung
 * plfta PER-Aktiv-/Kurzzeitmessung

RECODE sex (MISSING=SYSMIS) ('M'=1) ('W'=0) INTO NumSex .
 VARIABLE LABELS NumSex 'Geschlecht in 0=W 1=M'.

* Zeitnormierung auf die letzten 48 Stunden. zeit/48 .
 COMPUTE RelInnen = Zeit/48.
 VARIABLE LABELS RelInnen 'Relativer Innenanteil'.

* Atemvolumen [m³/d].
 COMPUTE BreathV = gew * 271 * 0.001 .
 VARIABLE LABELS BreathV 'Gewichtsabh. Atemvol [m³/d]'.

* Innen geatmete Luft: V/d .
 COMPUTE LuftInnen = RelInnen*BreathV .
 VARIABLE LABELS LuftInnen 'Innenluft [m³/d]'.

* Aussen geatmete Luft: V/d .
 COMPUTE LuftAussen = (1-RelInnen)*BreathV .
 VARIABLE LABELS LuftAussen 'Aussenluft [m³/d]'.

* Innen geatmetes PER: Innenraumwert.
 COMPUTE PERVonIn = LuftInnen*(0.8 * plftp + 0.2 * plfta).
 VARIABLE LABELS PERVonIn 'PER aus Innenluft [mg/d]'.

* Aussen geatmetes PER: 0.05 mg/m³.
 COMPUTE PERVonAussen = LuftAussen* 0.05.
 VARIABLE LABELS PERVonAussen 'PER aus Aussenluft [mg/d]'.

* Resorption: 100 % Annahme
 COMPUTE Res = 1.0 .
 VARIABLE LABELS Res 'Resorption'.

* Gesamtaufnahme pro Tag PER /d.
 COMPUTE PERpD = Res * (PERVonAussen+PERVonIn) .
 VARIABLE LABELS PERpD 'PER-Aufnahme pro Tag [mg/d]'.

* Steady State.
 COMPUTE SteadyState = PERpD *(65/24)/Ln(2) .
 VARIABLE LABELS SteadyState 'PER-Steady State [mg]'.

* Steady State auf Körpergewicht Fett berechnet nach Deurenberg et al (1991).
 COMPUTE PERpKg = SteadyState/(gew*((1.2*bmi+0.23*alt-10.8*NumSex)/100)).
 VARIABLE LABELS PERpKg 'PER auf Körperfett [mg/kg]'.

* Steady State auf Liter Fett bezogen.
 COMPUTE PERpL = PERpKg*0.92 .
 VARIABLE LABELS PERpL 'PER auf Körperfett [mg/L]'.

* PER bezogen auf Fettanteil im Blut und mg/L nach µg/L.
 COMPUTE ProgPERBLL = PERpL*0.0065 * 1000 .
 VARIABLE LABELS ProgPERBLL 'Prognose PER/Blut [µg/L]'.

²⁴ Kommentare sind durch „*“ eingeleitet; Execute-Befehle wurden hier ausgeblendet.

Die Angaben in Tabelle 2.34 zeigen die modellbasierten Expositionsprognosen zusammen mit den Ergebnissen der Blutmessungen im Vergleich über die drei Wiederholungsmessungen und als Gesamtvergleich.

Tabelle 2.34 Modellprognose und empirische Daten zur PER-Blutbelastung im Vergleich über die drei Messwiederholungen

PER/Blut [$\mu\text{g/L}$]				Prognose			
Wiederholung	N	Min	Max	Aritm. Mittelw.	SD	Median	Geom. Mittelw.
1	22	3,2	161,5	41,5	37,1	38,4	26,0
2	19	0,8	111,1	22,2	30,1	8,3	8,9
3	17	0,9	25,9	8,2	7,7	5,1	5,3
Gesamt	58	0,8	161,5	25,4	31,7	11,7	11,5

PER/Blut [$\mu\text{g/L}$]				Messung			
Wiederholung	N	Min	Max	Aritm. Mittelw.	SD	Median	Geom. Mittelw.
1	30	2,2	437,0	85,4	109,2	52,1	39,0
2	29	0,4	85,5	16,2	21,7	6,4	7,2
3	27	0,9	111,3	14,7	23,1	7,6	6,9
Gesamt	86	0,4	437,0	39,9	74,2	12,2	12,8

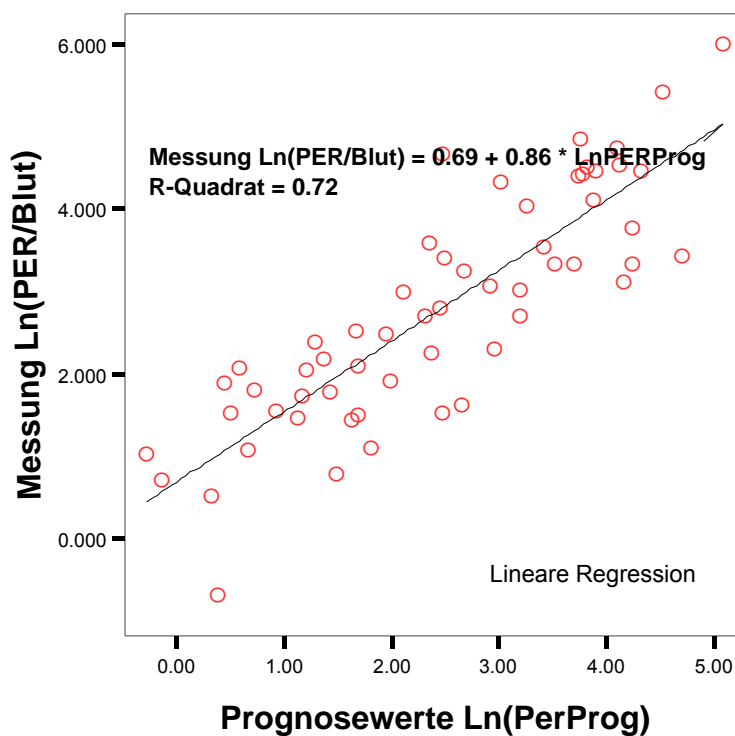
Die modellbasierten Prädiktionen stimmen bei einer aggregierten Betrachtung in der Größenordnung und in der Variationsbreite mit den gemessenen PER-Konzentrationen im Blut insgesamt gut überein. Die Modellprognosen liegen für die erste Messung, bei der eine sehr hohe Innenraumbelastung vorlag, unter den empirisch gesehenen PER/Blut-Konzentrationen; für die zweite und dritte Messreihe ergeben sich nur geringere Abweichungen in der zentralen Tendenz.

Da kein Referenzwert für die PER-Belastung im Blut vorliegt, wurde für die PER-Konzentration im Blut keine gesonderte ROC-Analyse zur Bestimmung der Sensitivität und Spezifität durchgeführt. Die Güte des Prognoseverfahrens wird hier durch eine personenbezogene Vergleichsanalyse der prognostizierten und der gemessenen PER-Blutwerte durchgeführt. Betrachtet man die Wertepaare der Expositionsprognose und der gemessenen PER/Blutkonzentrationen auf individueller Ebene, so kann die Stärke des Zusammenhangs, d. h. die Güte der Prognose, über regressionsanalytische Verfahren direkt graphisch und rechnerisch beurteilt werden.

Für die Gesamtdaten ergibt sich das in Abbildung 2.30 dargestellte Bild. Der Determinationskoeffizient liegt mit $R^2 = 0,72$ vergleichsweise hoch. Der Steigungsparameter b der angepassten linearen Regressionsgleichung, hier als Geradengleichung $y_{\text{beobachtet}} = a + b \cdot x_{\text{Prognose}}$, ist kleiner als Eins, das Expositionsmodell überschätzt hiernach tendenziell die tatsächlich gemessenen PER/Blutkonzentrationen. Der Shift-Parameter a hat einen Wert größer als Null,

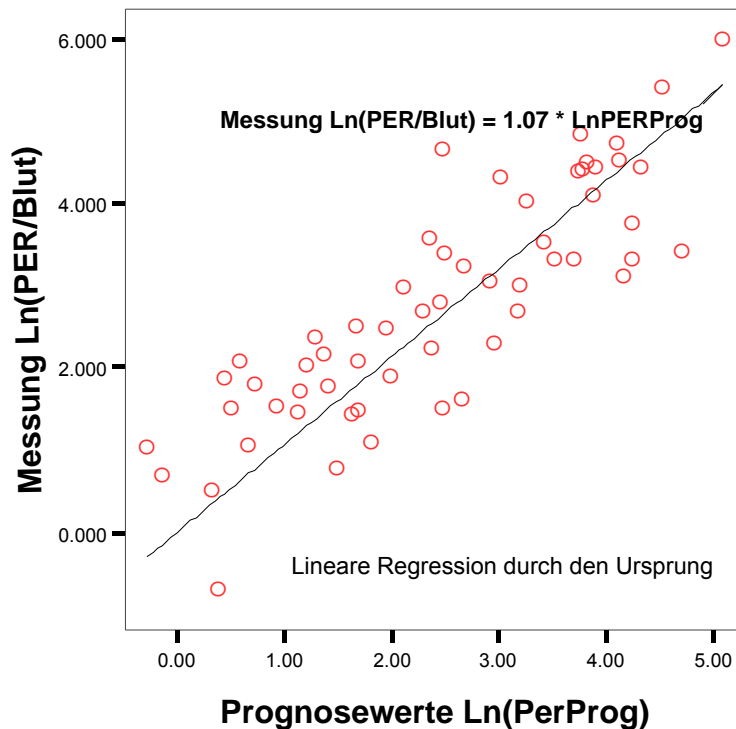
die prognostizierten Werte würden (gegeben $b = 1$) insgesamt in der Tendenz unter den realen Werten liegen; der Shift-Parameter ist statistisch signifikant ($p < 0,01$). Die Residuenanalyse des Regressionsmodells zeigt keine auffälligen Abweichungen.

Abbildung 2.30 Streudiagramm und lineare Regressionsgleichung (mit Regressionskonstante) für den Zusammenhang zwischen individuellen PER/Blutmessungen und modellbasierten Expositionsprognosen in logarithmischer Darstellung



Wird eine Regression durch den gemeinsamen Nullpunkt, also unter Auslassung der Konstanten a , berechnet, so ergibt sich für den Steigungsparameter $b=1,07$, also eine tendenzielle Unterschätzung der gemessenen PER/Blutwerte durch das Expositionsmodell (Abbildung 2.31). Die Residuenanalyse der Regressionsberechnung zeigt deutliche Abweichungen zwischen der gemessenen und der prognostizierten PER/Blut-Konzentration im Zentralbereich der Verteilung.

Abbildung 2.31 Streudiagramm und lineare Regressionsgleichung (ohne Konstante) für den Zusammenhang zwischen individuellen PER/ Blutmessungen und modellbasierten Expositionsprognosen in logarithmischer Darstellung



Die Zeitreihe basiert auf 30 Personen, die zu drei Zeitpunkten untersucht wurden. Es könnte kritisch hinterfragt werden, ob (1) die Messungen aus den jeweiligen Wiederholungen statistisch unabhängig wären und (b), ob die Parameterschätzung über die Messungen stabil sei. Analysiert man die Daten des zeitlich gestuften Messprogramms jeweils für die drei Messreihen getrennt (mit Shift-Parameter), so liegt die Prognosegüte (Determinationskoeffizient R^2) des Expositionsmodells für die erste Messreihe höher als für die Gesamtanalyse (Tabelle 2.35). Dies könnte aus der bei hohen Immissionen weniger durch nicht kontrollierbare Störeinflüsse beeinflussten Zusammenhangsstruktur resultieren. Der Steigungsparameter von $b=1,02$ zeigt, dass die Prognose die tatsächlich gemessenen PER-Blut-Konzentrationen sehr gut vorhersagt; die Konstante $a=0,43$ weist auf eine leichte systematische Überschätzung, ist jedoch nicht statistisch signifikant ($p = 0,35$).

Für die zweite und dritte Messreihe liegt die Prognosegüte niedriger, jedoch noch in einer als gut zu bezeichnenden Größenordnung. Der Steigungsparameter b zeigt hier Werte kleiner Eins, das Expositionsmodell überschätzt hier nach tendenziell die tatsächlich gemessenen PER/Blutkonzentrationen (ange-

nommen $a = 0$). Der Shift-Parameter a hat einen Wert größer Null, die prognostizierten Werte würden (gegeben $b = 1$) insgesamt in der Tendenz unter den realen Werten liegen. Die Parameterschätzungen dieser Koeffizienten sind auch bei einer kleinen Fallzahl signifikant ($p < 0,05$). Die Residuenanalyse der Regressionsberechnung zeigen bei einer differenzierten Betrachtung der Einzelmessreihen keine auffälligen oder systematischen Abweichungen, die beiden Fehler gleichen sich gegeneinander aus.

Tabelle 2.35 Modellprognose und empirische Daten: Regressionskoeffizienten im Vergleich über die drei Messwiederholungen

Wiederholung	R^2	Konstante a	Steigung b
1	0,76	<i>0,43</i>	1,02
2	0,58	0,93	0,62
3	0,66	0,81	0,75

nicht signifikante Koeffizienten sind kursiv gestellt

Mögliche Ursachen für gesehene tendenzielle Fehleinschätzungen der zu erwartenden Blutbelastungen könnten in folgenden Ursachen gesehen werden:

- Durch die Modellannahme einer vollständigen Resorption des eingeatmeten Tetrachlorethylens: Eine Überschätzung der Resorptionsrate hätte eine systematische Überschätzung der Körperlast zur Folge, diese Annahme wäre mit dem Shift-Parameter in Übereinstimmung.
- Durch die Nichtberücksichtigung der Anreicherung von PER in fetthaltigen Lebensmitteln (siehe Abschnitt 2.5.2): Die resultierende höhere Exposition und Körperlast von Personen, für die eine höhere PER-Innenraumbelastung vorliegt, wäre mit dieser Annahme erklärbar.
- Durch eine möglicherweise zu niedrige Einschätzung des Blutfettgehaltes in den höheren Altersgruppen: Als mögliche Verzerrungsursache könnte hier der in den Modellgleichungen als konstant angenommene Anteil von Lipiden im Blut wirksam sein. Aus der Literatur (Choi et al. 2002) und anderen Studien des Autors (Obi, Fertmann, Schümann 2005) ist bekannt, dass der Blutfettanteil (berechnet aus der Summe der gemessenen Triglyceride und Cholesterine) mit den Lebensalter ansteigt ($\text{Gesamtlipide} = a + 0,04 \cdot \text{Lebensalter}$; $a_{\text{Männer}} = 5,94$, $a_{\text{Frauen}} = 5,12$). Die Summe der Lipide im Blut ist dabei mäßig hoch mit dem berechneten Indikator für das Fettkompartiment korreliert (Spearman's Rho 0,41 (Männer) 0,45 (Frauen)), die Korrelation zum Body-Mass-Index ist niedriger (Spearman's Rho 0,35 (Männer) 0,36 (Frauen)).

Eine Übersicht über die Rangkorrelationen zwischen den Zielgrößen PER/Blut-Prognose (Modell) und PER/Blut-Messung (Beobachtung) einerseits und den Einflussgrößen andererseits ist in Tabelle 2.36 zusammengestellt. Der Innenraum-Beitrag stellt sowohl im Prognosemodell als auch in den empirischen Da-

ten einen dominanten Beitrag dar. Die Expositionsprognose ist stärker vom Alter und vom BMI abhängig, als dies aus den empirisch gesehenen Zusammenhängen erkennbar wäre.

Tabelle 2.36 Modellprognose und empirische Daten: Sensitivitätsbetrachtungen mittels Rangkorrelation zwischen Einfluss- und Zielgrößen

Spearman's Rho	Progn. PER/Blut [µg/L]	Messung PER/Blut [µg/L]
Alter	-0,26	-0,15
Gewicht [kg]	-0,20	-0,12
Größe [cm]	0,01	-0,17
BMI [kg/m ²]	-0,19	0,01
Progn.PER aus Innenluft mg/d	0,91	0,88*
Progn.PER aus Außenluft mg/d	0,25	0,25
Luft Aktivmessung PER [mg/m ³]	0,82*	0,81*
Luft Passiv PER [mg/m ³]	0,90*	0,89*

* Signifikant auf dem 5%-Niveau

Die tendenziell höheren Korrelationen im Expositionsmodell zum Alter und zum Body-Mass-Index (BMI) könnten (unter dem Vorbehalt der kleinen Datengrundlage) als Hinweis in diese Richtung gewertet werden.

2.10 Zusammenfassung und Bewertung des aktuellen Standes

Die Substanz Tetrachlorethylen (PER) wurde als Modells substanz ausgewählt, um bei einer im Vergleich zu den meisten Fluorkohlenwasserstoffen besseren Datenlage ein Prognosemodell für die Exposition der Bevölkerung aus Innenraumbelastungen formulieren und danach evaluieren zu können. Hierzu wurden Teilmodelle für die wesentlichen Einflussgrößen formuliert und in Bezug auf die vorhandene Datenlage und die Anwendung einer probabilistischen Methodik bewertet. Unter der Zielsetzung einer bevölkerungsbasierten Prognose wurden ausgehend von einem vereinfachten Modellansatz schrittweise Daten aufgenommen, um die Variation der Expositionsfaktoren in der Bevölkerung abbilden.

Die Belastung der deutschen Bevölkerung wird zum gegenwärtigen Zeitpunkt voraussichtlich deutlich unter den hier zugrunde gelegten Immissionen liegen, da mit einer verbesserten Regulierung sowie mit der Veränderung der industriellen und gewerblichen Anwendung eine Verminderung der Umweltbelastung durch PER einher geht. Für das Anwendungsszenario wurde versucht, die äußere Exposition und die PER-Konzentration im Blut für ausgewählte Altersgruppen vorherzusagen.

Im Prozess der Modellbildung, insbesondere bei der Parametrisierung der aufzunehmenden Einflussfaktoren und bei der Implementierung der Modelle (@Risk[®] bzw. Analytica[®] als Zielplattformen), wurden sowohl Kenntnis- als

auch Datenlücken deutlich. Die relevanten Variablen konnten nicht durchgehend bezüglich der Wahl des Verteilungstyps, der Parameter, der Abhängigkeiten und Korrelation durch einfache Verteilungsmodelle abgebildet werden. Für die Innenraum-PER-Immissionssituation zeigte sich, dass eher von Mischverteilungen, die durch saisonale, durch Nachbarschaften zur Industrie und Gewerbe, durch Nutzungsverhalten von chemisch-gereinigten Produkten bedingt werden, auszugehen wäre.

Als problematisch hat sich herausgestellt, dass bezüglich der Aktivitätsverteilung in den Umweltmedien insgesamt und für Aktivitäten im Innenraum speziell keine ausreichend differenzierte Datengrundlage verfügbar ist, um die alters-, geschlechts- und aktivitätsabhängigen Atemvolumina angemessen einzuschätzen. Insbesondere für die Gruppe der Kinder und Jugendlichen konnte das entwickelte Modell nicht hinreichend durch Daten gestützt werden. Dieser Modellbereich musste daher durch z. T. stark vereinfachende Hilfsannahmen, die die real zu erwartende Variation in der Bevölkerung voraussichtlich nicht ausreichend abbilden können, gefüllt werden.

Durch eine von reduzierten deterministischen Ansätzen ausgehende schrittweise verfeinerte Modellbildung und durch die Aufnahme der jeweiligen Expositionsverteilungen für die relevanten Expositionsfaktoren in das Modell konnte der mögliche Beitrag von einzelnen Einflussfaktoren näherungsweise geschätzt werden. Es zeigt sich, dass für die Modellsubstanz PER die Innenraumbelastung (vermittelt über den inhalativen Aufnahmepfad) die stärkste Bedeutung hat und die möglichen Beiträge über die Außenluft und Nahrung dagegen für die Bevölkerung insgesamt eine untergeordnete Rolle spielen. Für Wohnumgebungen mit hoher PER-Belastung, hier analysiert für direkt benachbarte Chemischreinigungen, bestätigt die Expositionsprognose die relevanten Beiträge in der Vergangenheit.

Die prognostische Anwendung des formulierten Expositionsmodells auf individuelle Expositionsbedingungen wurde als abschließender Modelltest am Beispiel der Hamburger Daten durchgeführt. Die Analysen zeigen, dass das Prognosemodell für eine Prädiktion insbesondere bei Vorliegen einer höheren Innenraumbelastung gut geeignet ist. Die Varianzdetermination liegt nahezu in der gleichen Größenordnung wie sie in einem berechneten Regressionsmodell für die Human-Biomonitoring-Daten gesehen wird; das Prognosemodell überschätzt bei den eingehenden vereinfachten Annahmen die tatsächliche Körperlast leicht.

Das formulierte Prognosemodell scheint für die zu erwartende PER/Blut-Konzentration über die recht unterschiedlichen Expositionsbedingungen weitgehend konsistente Prognosen in der richtigen Größenordnung der zentralen Tendenz zu geben. Dies gilt für die Daten aus Nordrhein-Westfalen (Begerow et al. 1996) und die Daten aus dem sanierungsbegleitenden Hamburger Untersuchungsprogramm (Schümann et al. 1991, 1995).

Die hier gezeigte bevölkerungsorientierte Expositionsprognose beinhaltet im Gegensatz zum epidemiologischen Ansatz spezifische Annahmen, die sich auf den Expositionsprozess, auf die individuellen Expositionsbedingungen und auf begründete Annahmen über die Resorption, Verteilung, Akkumulation bzw. den Abbau der untersuchten Substanz PER beziehen. Die demonstrierte hohe Prognosegüte des Expositionsmodells zeigt, dass durch einen hinreichenden Detaillierungsgrad des modellierten Expositionsprozesses und durch die Anwendung einer populationsbezogenen, im Kern probabilistischen Methodik die vielfach durch so genannte „Worst-Case-Analysen“ verursachten Fehleinschätzungen der tatsächlich zu erwartenden Exposition überwunden werden können.

Die gezeigten Lücken in der erforderlichen Datenlage und im fach- und methodenbezogenen Kenntnisstand zu Basisdaten, bestehenden Zusammenhangstrukturen, Assoziationen und Korrelationen zeigen aber auch, dass eine weitere Verbesserung der Methodik nur durch eine interdisziplinäre enge Kooperation zwischen Epidemiologen, Toxikologen, Pharmakologen, Umwelt- und Ernährungswissenschaftlern und Statistikern erreicht werden kann.

Literatur Kapitel 2

1. @RISK® (2002): Advanced risk analysis for spreadsheets. Version 4.5.2 Palisade Corp.
2. Abrahamsson K, Ekdahl A, Collen J et al. (1995): Marine algae – a source of tri-chloroethylene and perchloroethylene. *Limnology and Oceanography* 40(7): 1321-1326.
3. Adolf T (2003): Dokumentation des Public Use Files – Nationale Verzehrsstudie (NVS) und Verbundstudie Ernährungserhebung und Risikofaktorenanalytik (VERA).: Justus-Liebig-Universität, Institut für Ernährungswissenschaften, Gießen.
4. Analytica® (2003): Beyond the spreadsheet. Professional Version 3.0.1; Lumina .
5. Antoine SR, DeLeon IR & O'Dell-Smith RM (1986): Environmentally significant volatile organic pollutants in human blood. *Bull.Environ.Contam.Toxicol.* 26: 364-371 zit. nach BUA (1994).
6. ATSDR (1995): Tetrachloroethylene, Draft for Public Comment (Update). Prepared by Sciences International, Inc. Research Under Contract No. 205-93-0606 for U.S. Department of Health and Human Services. Agency for Toxic Substances and Disease Registry, August 1995.
7. ATSDR (1997): TETRACHLOROETHYLENE. CAS # 127-18-4. Toxicological Profile for Tetrachloroethylene. Agency for Toxic Substances and Disease Registry, U.S. Department of Health and Human Services. Atlanta/USA, September 1997. <http://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp18.html> (12.08.2002).
8. BAGS (1997): Epidemiologisches Untersuchungsprogramm Bille-Siedlung. (Hrsg. Behörde für Arbeit, Gesundheit und Soziales Hamburg), Peter Lang Verlag, Frankfurt a.M.
9. Bauer, U. (1991): Occurrence of tetrachloroethylene in the Federal Republic of Germany. *Chemosphere* 23: 11-12.
10. Baumann R, Boos R, Damberger B, Hanus-Ilhnar A, Hutter HP, Kundi M, Moshhammer H, Palmisano G, Tappler P, Twrdik F (2003): Richtlinie zur Bewertung der Innenraumluft. Flüchtige organische Verbindungen – VOC: Allgemeiner Teil, Wien. www.umwelt.lebensministerium.at/filemanager/download/10240/ (12. Juni 2004).
11. Baumann R, Boos R, Damberger B, Hanus-Ilhnar A, Hutter HP, Kundi M, Moshhammer H, Palmisano G, Tappler P, Twrdik F (2003): Richtlinie zur Bewertung der Innenraumluft. Flüchtige organische Verbindungen – VOC: Tetrachlorethen (TCE) , Wien. <http://www.umwelt.net.at/article/archive/7277/>.
12. Beck BD, Seeley MR, Tonner-Navarro LE, Deskin R (2000): Variation in Cancer Classification between European Countries and Organizations. *Toxicologist.* 54(1): 273-274.
13. Begerow J, Jermann E, Keles T, Freier I, Ranft U, Dunemann L (1996): Internal and external tetrachloroethene exposure in differently polluted areas of North Rhine-Westphalia (Germany). *Zb. Hyg.* 198: 394-406.

14. BimSchV 2. Ausführungsverordnung zur Durchführung des BimSchG (1991) von flüchtigen Kohlenwasserstoffen (2. BimSchV) vom 1.3.1991.
15. Böttger A, Elstermeier F (1989): Belastung der Bevölkerung durch organische Lösemittel. Abschlussbericht an das Umweltbundesamt; Berlin, Projekt 10606058 vom 31.5.1989; 1-160.
16. BUA (1994): Beratergremium für umweltrelevante Altstoffe: Tetrachlorethen (PER) BUA-Stoffbericht 139. Hirzel Verlag, Stuttgart.
17. BUA (2003): Beratergremium für umweltrelevante Altstoffe: Sicherheitsfaktoren bei der toxikologischen Bewertung von Chemikalien. Bewertungsbasis, Extrapolationskonzepte und praktische Vorgehensweise. BUA-Stoffbericht 244. S Hirzel. Wiss. Verlagsanstalt, Stuttgart.
18. BUA (2007): Tetrachlorethen. Ergänzungsbericht zum BUA-Stoff-Bericht 139. S. Hirzel. Wiss. Verlagsanstalt, Stuttgart (in Druck).
19. Cal EPA / California Environmental Protection Agency (1991): Technical Support Document. Proposed Identification of Perchloroethylene as a Toxic Air Contaminant. California Department of Health Service. State of California Air Resources Board.
20. Cal EPA / California Environmental Protection Agency (2000a): Air Toxics Hot Spots Program Risk Assessment Guidelines. Part IV Technical Support Document for Exposure Assessment and Stochastic Analysis. Office of Environmental Health Hazard Assessment, Oakland, California, Sept 2000.
21. Cal EPA / California Environmental Protection Agency (2000b): Comparison of Breathing Rates Distribution to Energy Expenditure Information. Technical Support Document for Exposure Assessment and Stochastic Analysis, Appendix K, Office of Environmental Health Hazard Assessment, Oakland, California, Sept 2000.
22. CEPA / Canadian Environmental Protection Act (1993): Priority Substances List Assessment Report: Tetrachloroethylene. Government of Canada, Environment Canada, Health Canada.
23. Chlorine Online (2001): Chlorinated Solvents: Tetrachloroethylene. [24/05/2001] www.Eurochlor/chlorsolvents/science/science1.htm
24. Choi JW, Pai SH, Kim SK (2002): Associations between total body fat and serum lipid concentrations in obese human adolescents. *Ann.Clin.Lab.Sci.* 32: 271-278.
25. Cupitt LT (1987): Atmospheric persistence of eight air toxics. Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, NC, Atmospheric Sciences Research Lab. EPA/600/3-87/004.
26. Delphi® (2002): Version 7 Enterprise/Build 4.453, Borland Software Corp.
27. Deurenberg P, Westrate JA, Seidell JC (1991): Body mass index as a measure of body fatness: age- and sex-specific prediction formulas. *Br J Nutr* 65:105-114. <http://www.halls.md/bmi/fat.html>
28. Deurenberg P, Yap M, van Staveren WA (1998): Body mass index and percent body fat. A meta analysis among different ethnic groups. *Int J Obes Relat Metab Disord* 22: 1164-1171.

29. EB (2002): Tetrachloroethylene. Encyclopædia Britannica, Inc.© 1994-2002.
30. EU (2005): European Union Risk Assessment Report. Tetrachloroethylene, CAS-No.: 127-18-4, vol. 57. Part 1 – Environment. Final Report, 2005 (EUR 21680 EN) http://ecb.jrc.it/documents/Existing-Chemicals/RISK_ASSESSMENT/REPORT/tetraENVreport021.pdf
31. FHH (2003): Projekt „Chemische Reinigungen“ / 5. Zwischenbericht (Stand Dezember 2003). Freie und Hansestadt Hamburg. Behörde für Umwelt und Gesundheit. Amt für Umweltschutz W24, Hamburg.
32. Franklin, J (2005): Transformations involving organohalogens: mechanisms and products. In: Zellner R, Becker KH, Zetzsch C, Wiesner J, Behret H, Endres F (eds.): Volatile chlorinated hydrocarbons: occurrence, fate and impact. DECHEMA/GDCh/DBG - Joint Committee, GDCh-Monographie 34: 80-93.
33. Gallagher D, Visser M, Sepulveda D, Pierson RN, Harris T, Heymsfield SB. (1996): How useful is body mass index for comparison of body fatness across age, sex, and ethnic groups? Am J Epidemiol, Feb 1996;143(3): 228-239. <http://www.halls.md/bmi/race.htm>
34. Garetano G, Gochfeld M (2000): Factors influencing tetrachloroethylene concentrations in residences above dry-cleaning establishments. Arch Environ Health 55: 59-68
35. GESTIS (2002): GESTIS-Stoffdatenbank: Gefahrenstoffinformationssystem der gewerblichen Berufsgenossenschaften. Berufsgenossenschaftliches Institut für Arbeitssicherheit – BIA. Datenblatt vom 28.10.2002/ ZVG-Nr. 013680.
36. Greil (2005): persönliche Mitteilung, dass auf der derzeitigen Datengrundlage eine berechnete Ableitung des Körperfettanteils aus Bevölkerungsdaten zum Körpergewicht und zur Körpergröße aus fachlichen Gründen nicht in die Datenbank RefXP aufgenommen werden sollte.
37. Guberan E, Fernandez J (1974): Control of industrial exposure to tetrachloroethylene by measuring alveolar concentrations; Theoretical approach using a mathematical model. Br.J.Ind.Med. 31: 159-167.
38. Harris JA, Benedict FG (1918): A Biometric Study of Human Basal Metabolism. Proc Natl Acad Sci / USA. 4 (12): 370–373. <http://www.pubmedcentral.nih.gov/picrender.fcgi?artid=1091498&blobtype=pdf>
39. Health Canada (1996): Health-Based Tolerable daily Intakes/Concentrations and Tumorigenic Doses/Concentrations for Priority Substances. Environmental Health Protectorate, Health Protection Branch. Ottawa, Ontario.
40. Hoffmann K, Krause C, Schulz C, Schwabe R, Seifert B und Ullrich D (1996): Umwelt-Survey 1990/91, Band IV: Personengebundene Exposition gegenüber flüchtigen organischen Verbindungen in den alten Bundesländern. WaBoLu-Heft 4/96, Umweltbundesamt, Berlin.
41. HSIA - Halogenated Solvents Industry Alliance, Inc. (1999): White Paper: Perchloroethylene. http://www.hsia.org/white_papers/perc%20wp.htm (6.5.05)

42. IARC - International Agency for Research on Cancer (1995): Dry cleaning, Some Chlorinated Solvents and Other Industrial Chemicals. IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risk of Chemicals to Humans. Volume 63. International Agency for Research on Cancer, Lyon, France.
43. ICRP (2003): International Commission on Radiological Protection: Basic anatomical and physiological data for use in radiological protection: Reference values. (Ed. J. Valentin): ICRP publ. 89. Pergamon Press/ Elsevier Science Ltd.
44. Jackson AS, Pollock ML, Ward A (1980): Generalized equations for predicting body density of women. *Med Sci Sports Exercise* 1980: 12:175-182.
45. Jackson AS, Stanforth PR, Gagnon J, Rankinen T, Leon AS, Rao DC, Skinner JS, Bouchard C, Wilmore JH (2002): The effect of sex, age and race on estimating percentage body fat from body mass index: The Heritage Family Study. *Int J Obes Relat Metab Disord*. 26(6):789-796
46. Krause C, Chutsch M, Henke M, Huber M, Kliem C, Leiske M, Mailan W, Schulz C, Schwarz E, Seifert B, Ullrich D (1991): Umwelt-Survey. Band IIIc. Wohn-Innenraum: Raumluft. WaBoLu-Hefte 4/1991, Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene, Berlin.
47. LAI (2000): Länderausschuss für Immissionsschutz: Bewertung von Tetrachlorethen-Immissionen. In: Schriftenreihe des LAI; Band 20: Bewertung von Tetrachlorethen-, Ethen- und Kohlenmonoxid-Immissionen. Erich Schmidt Verlag, Berlin.
48. Lash LH, Parker JC (2001): Hepatic and Renal Toxicities Associated with Perchloroethylene. *Pharmacol Rev* 53: 177–208. <http://pharmrev.aspetjournals.org>
49. Layton DW (1993): Metabolically consistent breathing rates for use in dose assessments. *Health Phys*. 64 (1): 23-36.
50. Lux W, Mohr S, Heinzow B, Ostendorp G (2001): Belastungen der Raumluft privater Neubauten mit flüchtigen organischen Verbindungen, *Bundesgesundheitsblatt* 44: 619-624.
51. MacQueen J (1967): Some methods for classification and analysis of multivariate observations. In: Le Cam L M, Neyman J (eds): *Proceedings of the Fifth Berkeley Symposium on Mathematical Statistics and Probability*, volume 1, Berkeley, California. University of California Press: 281-297.
52. MAK (2005): MAK- und BAT-Wert-Liste 2005: Maximale Arbeitsplatzkonzentrationen und Biologische Arbeitsstofftoleranzwerte. Mitteilungen 41. DFG. Wiley-VCH/Weinheim.
53. Maynard LM, Wisemandle W, Roche AF, Chumlea W, Guo S, Siervogel RS (2001): Childhood Body Composition in Relation to Body Mass Index.: *Pediatrics* 107(2): 344-350. www.pediatrics.org (4.12.2004)
54. Monster AC (1979): Differences in uptake, elimination, and metabolism in exposure to trichloroethylen, 1,1,1-trichloroethane and tetrachloroethylene. *Int. Arch. Occup. Environ. Health*, 42, 311-317.

55. Monster AC, Boersma G, Steenweg H (1979): Kinetics of tetrachloroethylene in volunteers; Influence of exposure concentration and work load. *Int. Arch. occup. environ. Health*, 42: 303-309.
56. NTP (1986): National Toxicology Program - Technical Report Series no.311. Toxicology and carcinogenesis studies of tetrachloroethylene (perchloroethylene) (CAS No. 127-18-4) in F344/N rats and B6C3F1 mice (inhalation studies). Research Triangle Park, NC: U.S. Department of Health and Human Services, Public Health Service, National Institutes of Health, NIH publication no. 86-256.
57. Obi N, Fertmann R, Schümann M (2005): Umwelt-Survey 1998, Band X: Chlororganische Verbindungen im Blut der Bevölkerung in Deutschland – Belastungsquellen und –pfade. *WaBoLu-Hefte Nr. 05/2005*, Umweltbundesamt, Berlin.
58. Reinhard K, Dulson W, Exner M (1989): Untersuchungen zum Vorkommen von perchlorethylen in raumluft und Lebensmitteln in Wohnungen in der Nähe von Chemischreinigungen. *Zentralbl. Bakteriol. Mikrobiol. Hyg.* 189: 111-116.
59. Schäfer I, Hohmann H (1989): Tetrachlorethenbelastung bei Anwohnern von chemischen Reinigungen. *Öff. Gesundheitswesen* 51: 291-295.
60. Schäfer I, Hohmann H (1991): Tetrachlorethen-Belastung – Ergebnisse einer Nachuntersuchung bei Anwohnern Chemischer Reinigung und gesetzliche Entwicklungen. *Öff. Gesundheitswesen* 54: 265-268.
61. Schleibinger H, Hott U, Marchl D, Braun P, Plieninger P, Rüden H (2001): VOC-Konzentrationen in Innenräumen des Großraums Berlin im Zeitraum von 1988 bis 1999, *Gefahrstoffe – Reinhaltung der Luft* 61: 26-38.
62. Schümann M, Sagunski H, Kruse H, Reimers S, Bigdon M, Czaplenski U, Golgert R (1991): Evaluation administrativer Maßnahmen im Zusammenhang mit Chemisch-Reinigungen (TCE). *Proceedings of the European Regional Meeting of the International Epidemiological Association*, Aug. 1991/ Basel.
63. Schümann M, Sagunski H, Kruse H, Reimers S, Bigdon M, Czaplenski U, Golgert R (1995): Sanierung von Chemisch-Reinigungen. Evaluation von Emissions- und Immissionsminderungsmaßnahmen. *Bericht BAGS / Hamburg*.
64. Seifert B (1990): Flüchtige Organische Verbindungen in der Innenraumluft. *Bundesgesundheitsblatt* 33(3): 111-115.
65. Seifert B et al. (1989): Seasonal variation of concentrations of volatile organic compounds in selected German homes. *Environ. Internat.* 15: 397-408.
66. SPSS (2003): Statistical package for the social sciences. Version 12.0.1. SPSS® Inc.
67. Stolzenberg H (2000): Bundesgesundheitssurvey 1998. Public Use File BGS98. Robert Koch Institut, Berlin.
68. UBA (2002a): Chlorierte Kohlenwasserstoffe (CKW).
http://www.umweltbundesamt.de/luft/emissionen/situation_de/schadstoffe/pops/ckw.htm (17.04.2002)
69. UBA (2002b): Chlorierte Kohlenwasserstoffe.
<http://www.umweltbundesamt.de/survey/us9092/atem.html> (12.5.2005)

70. UBA (2002c): Personengebundene 7 Tage-Exposition gegenüber FOV bei 25- bis 69-jährigen Personen aus den alten Bundesländern (N = 113). Umwelt-Survey 90/92 (Tabelle 12) Stand: 27.08.02 <http://www.umweltbundesamt.de/survey/us9092/atem.htm> (12.5.2005)
71. UBA (2003a): Datensatz zur PER-Innenraumbelastung und wesentlicher Einflussgrößen. Bereitstellung durch das Umweltbundesamt Berlin, Fachgebiet II 1.3, 2003.
72. UBA (2003b): Datensatz zur PER-Personal-Sampler-Messungen. Additives Untersuchungsprogramm zum Umwelt-Survey 1985/86: Bereitstellung durch das Umweltbundesamt Berlin, Fachgebiet II 1.3, 2003.
73. Ullrich D, BrenskeKR, Heinrich J, Hoffmann K, Ung L, Seifert B (1996): Volatile organic compounds: Comparison of personal exposure and indoor air quality measurements. Proceedings of the 7th Intern. Conf. Indoor Air Quality and Climate, Tokio 1996: 301-306.
74. Ullrich D, Weiland SK, Seifert B (1999): VOC in homes of children with asthma: A case-control study of indoor quality. INDOOR AIR '99. Proceedings of the 8th International Conference on Indoor Air Quality and Climate. Edinburgh, Scotland, August 8-13, 1999.
75. US EPA - US Environmental Protection Agency (1985): Health Assessment Document for Tetrachloroethylene (Perchloroethylene). Prepared by the Office of Health and Environmental Assessment, Environmental Criteria and Assessment Office, Research Triangle Park, NC for the Office of Air Quality Planning and Standards, Research Triangle Park, NC. EPA 600/8-82/005F.
76. US EPA - US Environmental Protection Agency (1982): Exposure and risk assessment for tetrachloroethylene. Office of water. US Environmental Protection Agency, available through the National Technical Information Service (NTIS), Springfield, VA, PB85-221497.
77. US EPA - US Environmental Protection Agency (1992): IRIS database, Tetrachloroethylene, last update 04/01/92. siehe auch: Integrated Risk Information System (IRIS) On-line Computer Database 2000. <http://www.epa.gov/iris>
78. US EPA - US Environmental Protection Agency (1996): Exposure Factors Handbook. EPA/600/P-95/002Fa, August 1997, Washington DC.
79. US EPA (1987): Quantification of Toxicological Effects for Tetrachloroethylene. Prepared from the Health Assessment Document for Tetrachloroethylene (Perchloroethylene). Office of Drinking Water, Washington, DC.
80. US EPA (1988): U.S. Environmental Protection Agency. Health Effects Assessment for Tetrachloroethylene. EPA/600/8-89-096. Environmental Criteria and Assessment Office, Office of Health and Environmental Assessment, Office of Research and Development, Cincinnati, OH.
81. US EPA (1999): U.S. Environmental Protection Agency. Integrated Risk Information System (IRIS) on Tetrachloroethylene. National Center for Environmental Assessment, Office of Research and Development, Washington, DC.

82. Vieths S, Blaas W, Fischer M, Klee T, Krause C, Matissek R, Ullrich D, Weber R (1988a): Modellversuche zum Übergang von Tetrachlorethen aus der Raumluft in Lebensmittel. Dtsch. Lebensm. Rundsch. 84: 381-388.
83. Vieths S, Blaas W, Fischer M, Krause C, Matissek R, Mehltitz I, Weber R (1988b): Lebensmittelkontaminationen im Emissionsbereich Chemischer Reinigungen. Dtsch. Lebensm. Rundsch. 86: 393-397.
84. WBB - Wissenschaftlichen Beirates der Bundesärztekammer (1989): Belastung der Bevölkerung durch Perchlorethylen (PER, Tetrachlorethen). Stellungnahme des Wissenschaftlichen Beirates der Bundesärztekammer. Dt. Ärztebl. 86(49): 46-48 (B2606-2608)
85. Wellens RI, Roche AF, Khamis HJ, Jackson AS, Pollock ML, Siervogel RM (1996): Relationships between the Body Mass Index and body composition. Obes Res. 4(1):35-44.
86. WHO (1984): World Health Organization: Tetrachloroethylene. Geneva, World Health Organization (Environmental Health Criteria, No. 31).
87. WHO (1996): World Health Organization: Updating and Revision of the Air Quality Guidelines for Europe. Report on a WHO Working Group on Volatile Organic Compounds. Brussels, Belgium, 2-6 October, 1995.
88. WHO (2000): World Health Organization: The Air Quality Guidelines. Second Edition. Chapter 5.13 Tetrachloroethylene. WHO Regional Office for Europe, Copenhagen.
89. Wiley JA, Robinson JP, Cheng YT, Piazza T, Stork L, Pladsen K (1991b): Study of Children's Activity Patterns, Final Report. Survey Research Center, University of California, Berkeley. Prepared for California Air Resources Board, September 1991.
90. Wiley JA, Robinson JP, Piazza T, Garrett K, Cirkensa K, Cheng YT, Martin G (1991a): Activity Patterns of California Residents. Final Report. Survey Research Center, University of California, Berkeley. California Air Resources Board, September 1991

3 Modellierung der Exposition gegenüber Quecksilber und Arsen für die Bewohner einer Altlast

Oliver Hehl, Michael Hoopmann, Sandra Heidrich, Katja Claußen

3.1 Aufgabenstellung

Im Nordpfälzer Bergland finden sich aufgrund ehemaliger Bergbau- und Verhüttungsaktivitäten erhöhte Bodengehalte an Quecksilber und Arsen, wobei große Teile der betroffenen Region heute als Siedlungsgebiet genutzt werden. In einer Mitte der 90er Jahre durchgeführten Human-Biomonitoring-Studie (Gebel et al. 1998) wurden 218 Bewohner der exponierten Region auf eine möglicherweise erhöhte korporale Belastung mit Quecksilber und Arsen untersucht. Als nicht-exponierte Kontrollgruppe wurden 76 Personen aus dem Raum Südniedersachsen in die Studie einbezogen. Für beide Kollektive waren die Arsen- und Quecksilbergehalte im über 24 Stunden gesammelten Urin sowie im Kopfhaar bestimmt worden. Mittels Fragebogen wurden von jedem Probanden Angaben zu Alter, Wohndauer, Vorerkrankungen, Schulbildung, Rauchstatus, beruflichem Umfeld und Freizeitbeschäftigung, Alkoholkonsum, Verzehr von selbst-angebautem Obst und Gemüse sowie von Meeresfrüchten und Wildfleisch und -pilzen, ggf. Zahl der Geburten sowie Hautveränderungen erfragt. Zusätzlich wurden durch Ärzte Anzahl und Zustand der Amalgamfüllungen sowie Körpergröße und -gewicht erfasst. Ausschließlich für die Probanden des exponierten Kollektivs liegen zusätzlich die Quecksilber- und Arsen-Bodengehalte (Totalaufschluss) von den jeweiligen Grundstücken vor. Die Fragebögen sowie die Boden- und Uringehalte für Quecksilber und Arsen stehen für die Auswertung im Rahmen des Xprob-Projekts vollständig zur Verfügung.

Das Ziel der Anwendungsstudie besteht darin, auf der Basis der vorliegenden Daten der Human-Biomonitoring-Studie – im Folgenden als Ausgangsstudie bezeichnet – je ein quantitatives Expositionsmodell für die korporale Belastung der Probanden mit Quecksilber und Arsen zu entwickeln. Hierzu werden zunächst die jeweils relevanten Expositionspfade auf der Basis von Literaturauswertungen identifiziert. In einem weiteren Schritt werden die relevanten Expositionspfade durch mathematische Gleichungen beschrieben und quantifiziert. Dabei werden in den Gleichungen soweit wie möglich die im Rahmen des Xprob-Projekts ermittelten Expositionsfaktoren verwendet, die durch Literaturangaben ergänzt werden.

Vorgehensweise

Die Daten der Ausgangsstudie bilden die Grundlage für die im Rahmen des Xprob-Projekts durchgeführte szenarienbasierte Anwendungsstudie. In einem ersten Schritt wurden die aus der Literatur bekannten möglichen Einflussfaktoren auf die korporale Quecksilber- und Arsen-Belastung bzw. die Ausscheidung der beiden Elemente über den Urin identifiziert. Für eine grobe Orientierung wurden auf der Basis einer linearen Regressionsanalyse dann die Variablen mit dem größten Einfluss auf die Exposition der exponierten Probanden selektiert. In einem weiteren Schritt wurde für Quecksilber und Arsen jeweils ein quantitatives Expositionsmodell unter Berücksichtigung der relevanten Pfade formuliert, wobei die erforderlichen Parameter aus der Xprob-Datenbank RefXP oder aus der Literatur verwendet werden.

3.2 Daten der Ausgangsstudie

Die Ausgangsstudie wurde in den 90er Jahren als Human-Biomonitoring-Studie (HBM-Studie) zur korporalen Arsen- und Quecksilber-Belastung (Gebel et al. 1998) im nördlichen Rheinland-Pfalz durchgeführt. Für die Auswertung im Rahmen des Xprob-Projekts lagen im Niedersächsischen Landesgesundheitsamt (NLGA) die Datensätze der HBM-Studie vor.

In der Ausgangsstudie wurde für die Elementgehalte im Urin ein nicht näher dokumentierter Ausreißertest durchgeführt und diese „nicht repräsentativen Werte“ von der weiteren Auswertung ausgeschlossen. Nach diesem Kriterium wurden 7 Werte aus dem exponierten Kollektiv und 4 Werte aus dem Vergleichskollektiv ausgeschlossen. Diese 11 Werte sind jedoch in den vorliegenden Daten der Ausgangsstudie enthalten. Ein Ausschluss dieser Werte aufgrund des Ausreißerkriteriums erscheint im Sinne der in der Anwendungsstudie zu bearbeitenden Fragestellung nicht sinnvoll, die ja gerade auch die Variabilitäten im Expositionsmodell berücksichtigt werden sollen. Die 11 ursprünglich ausgeschlossenen Werte werden somit in der Evaluationsstudie berücksichtigt. Ausgeschlossen bleiben jedoch weiterhin die Urinproben, die auch in der Ausgangsstudie wegen eines zu geringen Urinvolumens ($< 0,5$ l) oder eines zu geringen Creatiningehalts ($< 0,5$ g/l) als Nicht-24h-Urin ausgeschlossen worden sind.

In der Ausgangsstudie wurde mittels Fragebogen vom jedem Probanden Angaben zu Alter, Wohndauer, Vorerkrankungen, Schulbildung, Rauchstatus, beruflichem Umfeld und Freizeitbeschäftigung, Alkoholkonsum, Verzehr von selbst-angebautem Obst und Gemüse sowie von Meeresfrüchten und Wildfleisch und -pilzen, ggf. Zahl der Geburten sowie Hautveränderungen erfragt. Zusätzlich wurden durch Ärzte Art und Zahl der Amalgamfüllungen, Körpergröße und -gewicht sowie die Beschaffenheit der Haare (z. B. Färbung) erfasst. Da nicht alle Fragebogenangaben im Rahmen der Ausgangsstudie in elektronische Form überführt wurden, lagen einige Items nicht (z. B. zum Alkoholkonsum)

oder nur in aggregierter Form (z. B. als „Kleingartennutzungsfaktor“) im NLGA vor. Aus diesem Grund wurden die Originalfragebögen für die weitere Auswertung in der Anwendungsstudie für beide Kollektive vollständig eingegeben.

Tabelle 3.1 Stichprobenumfänge des exponierten und Vergleichskollektivs

	Exponiertes Kollektiv	Vergleichskollektiv
Probandenzahl	218	76
davon männlich	97	38
weiblich	121	38
Raucher	49	16
ehem. Raucher	46	22
Nichtraucher	123	38

Tabelle 3.2 Altersstruktur der Probanden der Ausgangsstudie

Alter in Jahren	Exponiertes Kollektiv			Vergleichskollektiv		
	Alle	Frauen	Männer	Alle	Frauen	Männer
Mittelwert	46,2	46,8	45,4	43,4	43,8	42,9
Median	53,0	53,0	51,0	45,0	44,5	45,0
Maximum	89	89	87	84	84	84
Minimum	1	1	2	2	6	2

Tabelle 3.3 Arsengehalte in µg im 24h-Urin des exponierten Kollektivs und des Vergleichskollektivs

	Exponiertes Kollektiv			Vergleichskollektiv		
	Alle	Frauen	Männer	Alle	Frauen	Männer
Mittelwert	4,28	3,79	4,91	7,96	5,94	9,97
Median	3,22	2,90	3,48	6,23	5,99	7,93
Maximum	69,01	18,32	69,01	36,32	19,82	36,32
Minimum	<0,1	0,12	<0,1	0,29	0,89	0,29
n	200	111	89	76	38	38

Tabelle 3.4 Quecksilbergehalte in μg im 24h-Urin des exponierten Kollektivs und des Vergleichskollektivs

	Exponiertes Kollektiv			Vergleichskollektiv		
	Alle	Frauen	Männer	Alle	Frauen	Männer
Mittelwert	0,63	0,58	0,70	0,57	0,66	0,48
Median	0,44	0,38	0,55	0,36	0,30	0,37
Maximum	5,54	4,12	5,54	3,53	3,53	1,77
Minimum	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1	<0,1
n	200	111	89	76	38	38

In Tabelle 3.1 bis Tabelle 3.4 werden die Daten der Ausgangsstudie auszugswise dargestellt. Da wie oben beschrieben diejenigen Werte, die in der Ausgangsstudie als Ausreißer ausgeschlossen worden waren, in der Anwendungsstudie berücksichtigt werden, weichen sowohl die Stichprobenumfänge als auch die statistischen Kennwerte geringfügig von denen bei Gebel et al. (1997) angegebenen ab.

3.3 Arsen

Hauptexpositionsquellen gegenüber Arsen sind Nahrungsmittel und Trinkwasser. Die durchschnittliche Aufnahme von anorganischem Arsen wird hierbei in Deutschland auf $1 \mu\text{g/kg}$ Körpergewicht pro Woche geschätzt. Organische Arsenverbindungen werden vom Menschen vorwiegend mit fischreicher Kost und Meeresfrüchten aufgenommen (Arsenobetain, Arsenocholin, ferner Dimethylarsinsäure, Trimethylarsenoxid und Trimethylarsin). Eine Arsenaufnahme über Boden- und Staubingestion spielt in Deutschland nur bei Kindern im Bereich arsenbelasteter Böden eine Rolle. Die inhalative Aufnahme beträgt im Allgemeinen $< 0,1 \mu\text{g/Tag}$ und ist damit eher zu vernachlässigen, zumal sie in Abhängigkeit von der Art der Verbindung und der Partikelgröße stark variiert. Die dermale Resorptionsrate ist ebenfalls von der chemischen Form abhängig und liegt zwischen $< 1 \%$ (anorganische Verbindungen) und einigen wenigen Prozent (organische Verbindungen).

Oral aufgenommene organische und anorganische Arsenverbindungen werden über den Magen-Darm-Trakt zu 45 - 90 % resorbiert (dreiwertiges As besitzt gegenüber fünfwertigem As eine bessere Bioverfügbarkeit) und rasch im Körper verteilt. Dabei wird fünfwertiges Arsen (As V) im Organismus in die zwei bis zehnmal stärker toxische dreiwertige Form (As III) überführt. Nach etwa 24 Stunden findet man nur noch 1 % der inkorporierten Menge im Blut, der größte Anteil befindet sich als As III in Muskeln, Kochen, Nieren und Lunge. Bei chronischer Exposition wird Arsen durch Bindung an Sulfhydrylgruppen vor allem in

keratinreichen Geweben wie Haut, Haaren und Nägeln eingelagert und akkumuliert.

Organische Arsenverbindungen hingegen binden kaum an Gewebe und werden beim Menschen fast unverändert innerhalb von 2-3 Tagen renal eliminiert. Anorganische Arsenverbindungen werden in der Leber durch Methylierung zu Monomethylarsonsäure (MMAA) und Dimethylarsinsäure (DMAA), also organischen Verbindungen, umgewandelt und damit ebenfalls über die Nieren ausgeschieden.

Insgesamt werden beim Menschen etwa 10 - 20 % des anorganischen Arsens als drei- und fünfwertiges Arsen, ca. 15 - 25 % als Monomethylarsonsäure und ca. 30 - 60% als Dimethylarsinsäure eliminiert. Aufgrund der Verteilung auf die verschiedenen Kompartimente verläuft die Elimination in mehreren Phasen: der größte Teil wird mit einer kürzeren Halbwertszeit innerhalb von wenigen Tagen, ein geringerer Anteil mit einer Halbwertszeit bis zu einem Monat ausgeschieden.

Es gilt also die Regel, dass für den Menschen scheinbar weniger toxische Verbindungen rasch ausgeschieden, stärker wirksame, mit höherer akuter und chronischer Toxizität einhergehende, Arsenverbindungen dagegen überwiegend im Gewebe gebunden werden. Neuere Untersuchungen deuten allerdings darauf hin, dass auch MMAA und DMAA zelltoxisch sowie potentiell DNA-schädigend sind und im Tierversuch (DMAA) Hauttumore fördern. Eine Neueinschätzung der humanpathogenen Bedeutung kann anhand dieser Beobachtungen jedoch noch nicht abgeleitet werden.

Die toxische Wirkung von Arsen beruht auf einer kompetitiven Hemmung der zellulären ATP-Gewinnung, einer Blockade der Sulhydrylgruppen in Enzymen sowie chromosomalen Mutationen und Hemmung von DNA-Reparaturmechanismen.

Dreiwertiges Arsen ist auch infolge seiner höheren Bioverfügbarkeit toxischer als fünfwertiges Arsen. Die orale Aufnahme von 100 mg As III kann bereits tödlich verlaufen.

Akut treten kurz nach der Inkorporation Übelkeit, meist gefolgt von Erbrechen, sowie eine schwere Gastroenteritis mit reiswasserähnlichen Durchfällen ein. Vasodilatation und Exsikkose führen schließlich zur Schocksymptomatik und Nieren- bzw. Multiorganversagen.

Bei der chronischen Vergiftung kommt es hingegen primär zu Hautmanifestationen (Melanose und Hyperkeratosen, letztere gilt als Präkanzerose) und Affektionen des Nervensystems (Polyneuropathien mit schmerzhaften peripheren Paraesthesien). Arsen ist zudem karzinogen: bei hoher oraler Arsenbelastung treten vermehrt Basal- und Plattenepithelkarzinome der Haut auf, die inhalative Aufnahme von Arsen III und V führt langfristig zu einem gehäufteten Auftreten von malignen Lungenneoplasien.

3.3.1 Trinkwasser

Die Aufnahme von Arsen mit dem Trinkwasser kann bei entsprechender Belastung des Trinkwassers auch unterhalb der Grenzwerte der Trinkwasserverordnung einen deutlichen Beitrag zur Gesamtarsenaufnahme leisten. Da sich für die beiden untersuchten Kollektive die Arsengehalte im Trinkwasser (geogen bedingt) deutlich unterscheiden, wird dieser Pfad im Expositionsmodell explizit berechnet.

Für die Wohnorte des exponierten Kollektivs wurden Trinkwasseranalysen von den Gesundheitsämtern Donnersbergkreis und Kusel (Rheinland-Pfalz) bereitgestellt. Alle Analysenwerte lagen unterhalb der Nachweisgrenze von 2 µg/l. Für die Expositionsmodellierung wird hilfsweise für den Arsengehalt im Trinkwasser der Probanden die halbe Nachweisgrenze von 1 µg/l angenommen.

Die Ergebnisse der Trinkwasseranalysen aus den Jahren 1992 sowie 2003 wurde für die Wohnorte der Probanden des Kontrollkollektivs vom Gesundheitsamt Göttingen zur Verfügung gestellt. Dabei betrug der Arsengehalt im Trinkwasser in beiden Jahren 5 µg/l. Da nach Mitteilung des Gesundheitsamts gegenüber dem Untersuchungszeitraum der Ausgangsstudie keine relevanten Umstellungen in der Trinkwasserversorgung der betroffenen Gemeinden stattgefunden hat, kann der Wert von 5 µg/l auch für das Jahr 1995 (Studiendurchführung im Kontrollkollektiv) angenommen werden.

Die Trinkwasseraufnahme der Probanden wurde in der Ausgangsstudie nicht abgefragt, so dass keine individuellen Daten hierzu vorliegen. Für den täglichen Trinkwassergenuss der erwachsenen Probanden werden daher die Medianwerte aus der Xprob-Datenbank RefXP unter Berücksichtigung des Alters und des Geschlechts verwendet. Ergänzend werden für die Kinder und Jugendlichen die vom AUH (1995) vorgeschlagenen Werte herangezogen.

Oral aufgenommene organische und anorganische Arsenverbindungen werden im Magen-Darm-Trakt rasch und effektiv mit einer Resorptionsquote von etwa 45 - 90 % aufgenommen (UBA 2003). Im Modell wird mit einer Resorptionsquote von 70 % gerechnet.

Die interne Arsen-Exposition durch die tägliche Aufnahme von Trinkwasser ergibt sich zu:

$$(1) \quad e_{\text{Trinkw}} = R_{\text{Trinkw}} \cdot k_{\text{Trinkw}} \cdot \text{Trinkw}$$

mit e_{Trinkw}	trinkwasserbed. interne Exposition [µg As/d]
R_{Trinkw}	Resorptionsquote [-]
k_{Trinkw}	Arsengehalt im Trinkwasser [µg/l]
Trinkw	täglich aufgenommene Trinkwassermenge [l/d]

3.3.2 Fischverzehr

Der Fischverzehr der Probanden wurde in der Ausgangsstudie mit mehreren Fragen erfasst. Im Fragebogen wurde die Zahl der Fisch-/Meeresprodukt-Mahlzeiten pro Woche gefragt, wobei nach durchschnittlichem Verzehr sowie nach dem Verzehr in der letzten Woche getrennt wurde. Zusätzlich wurden die Tage seit der letzten Fisch-/Meeresproduktmahlzeit erfragt. Allerdings ist der zeitliche Abstand zwischen dem Ausfüllen des Fragebogens durch den Probanden und der Urinprobenahme nicht genau bekannt. Es ergibt sich hier – durch das Design der Ausgangsstudie bedingt – eine Unschärfe von bis zu etwa einer Woche.

Die Elimination des mit Fisch bzw. Meeresprodukten aufgenommenen Arsens verläuft in mehreren Phasen. Dabei wird der überwiegende Teil mit einer Halbwertszeit je nach Arsenverbindung von einem bis wenigen Tagen ausgeschieden, ein kleinerer Teil mit einer Halbwertszeit von bis zu einem Monat (UBA, 2003). Für die täglich mit dem Urin ausgeschiedene Arsenmenge ist daher vorwiegend der Verzehr in den letzten Tagen relevant und weniger der durchschnittliche Verzehr. Im Modell wird daher nur die Angabe des Zeitraums seit dem letzten Fischverzehr T_{Fisch} ausgewertet. Dabei wird im Modell angenommen, dass die durch den Fischverzehr bedingte Arsenausscheidung mit dem Tag nach dem Verzehr beginnt und dann zeitlich exponentiell abfällt. Die Geschwindigkeit des zeitlichen Abfalls wird durch eine Zeitkonstante $T_{\text{Elimination}}$ beschrieben, die sich aus der Halbwertszeit ergibt. Diese Halbwertszeit wird unter Berücksichtigung der beiden oben genannten typischen Eliminationsraten im Modell mit 5 Tagen angenommen. Bei der angenommenen exponentiellen zeitlichen Abnahme der Arsenausscheidung $\sim \exp(-T_{\text{Fisch}}/T_{\text{Elimination}})$ und einer Halbwertszeit von 5 Tagen ergibt sich die Zeitkonstante $T_{\text{Elimination}}$ dann zu

$$(2) \quad T_{\text{Elimination}} = -5 \text{ d} / \ln(1/2) \approx 7 \text{ d}.$$

Die Xprob-Datenbank RefXP enthält zwar Daten zur durchschnittlichen täglich verzehrten Fischmenge, jedoch keine Angaben zur mittleren Portionsgröße je Mahlzeit. Es ist jedoch eine Abhängigkeit der Portionsgröße zumindest vom Alter der Probanden zu erwarten. Es wird daher für das Modell die Annahme getroffen, dass die Portionsgröße proportional zum durchschnittlichen täglichen Fischverzehr ist.

Die Resorptionsquote R_{Fisch} wird wiederum nach UBA (2003) mit 70 % angenommen.

Die Urinanalytik erfolgte in der Ausgangsstudie mit einem Atomabsorptionsspektrometer nach der Hydridtechnik. Mit dieser Methodik wird jedoch das vorwiegend in Fischen enthaltene Arsenobetain nur zu einem geringen Anteil erfasst (Gebel et al. 1997). Hierdurch bedingt wird die durch den Fischverzehr

bedingte Arsen-Ausscheidung systematisch untererfasst. In vielen Studien hat sich aber gezeigt, dass trotz dieses analytischen Ausschlusskriteriums ein Einfluss des Fischkonsums auf den Arsengehalt im Urin festzustellen ist (Seiwert et al. 1999). Die Stärke dieses analytischen Effektes kann allerdings nicht näher quantifiziert werden. Im Modell wird dieser Effekt durch die Einführung einer Modellkonstanten k_{Fisch} berücksichtigt.

Der Arsengehalt im Fisch weist deutliche Unterschiede zwischen den einzelnen Fischarten auf. So sind in der Regel die Arsengehalte in Süßwasserfischen niedriger als in Meeresfischen. Die höchsten Gehalte werden üblicherweise in Krusten- und Schalentieren festgestellt. In den Fragebögen der Ausgangsstudie wird nicht nach einzelnen Fischarten bzw. Meeresfrüchten differenziert. Im Modell wird für den mittleren Arsengehalt C_{Fisch} der in EU (2004) aufgeführte Wert für Deutschland von $1 \mu\text{g As/g}$ Fisch bzw. Meeresfrüchte angenommen.

Die Arsen-Ausscheidung mit dem Urin durch den Verzehr von Fisch und Meeresfrüchten wird anhand der folgenden Gleichung im Modell berechnet:

$$(3) \quad e_{\text{Fisch}} = R_{\text{Fisch}} \cdot k_{\text{Fisch}} \cdot k_{\text{Analytik}} \cdot \text{FischMenge} \cdot \exp(-T_{\text{Fisch}}/T_{\text{Elimination}})$$

mit	e_{Fisch}	interne Exposition durch Fischverzehr [$\mu\text{g As/d}$]
	R_{Fisch}	Resorptionsquote [-]
	C_{Fisch}	Arsengehalt im Fisch [$\mu\text{g As/g}$]
	k_{Fisch}	Modellkonstante (s. Text) [-]
	FischMenge	mittlerer täglicher Fischverzehr [g/d]
	T_{Fisch}	Tage seit dem letzten Fischverzehr [d]
	$T_{\text{Elimination}}$	Zeitkonstante für die As-Elimination [d]

3.3.3 Kleingartennutzung

Zur Modellierung des Pfades Boden \rightarrow Pflanze \rightarrow Mensch wurden verschiedene Ansätze getestet. Als Ausgangsbasis liegen die Arsen-Bodengehalte aus den Hausgärten des exponierten Kollektivs vor. Allerdings wurde der Gesamtarsengehalt des Bodens bestimmt (Königswasseraufschluss), so dass hieraus eine Ableitung des pflanzenverfügbaren Arsenanteils nur mit großen Unsicherheiten möglich ist. Zudem weisen die Ergebnisse der Mehrfachbeprobungen der Hausgärten auf eine hohe kleinräumige Variabilität der Arsenkonzentrationen hin.

Je nach Pflanzenart wird Arsen in Wurzeln, Knollen oder oberirdischen Pflanzenteilen eingelagert. Pflanzeninterne Regelmechanismen können dabei die Arsenaufnahme bei steigender Bodenbelastung beschränken, so dass sich eine

deutlich nichtlineare Beziehung zwischen Boden- und Pflanzengehalt ergibt. So unterscheiden sich die Transferfaktoren ($=C_{\text{Pflanze}}/C_{\text{Boden}}$) zwischen gering und hoch mit Arsen belasteten Böden um Faktor 10 - 100. Weiterhin gibt es deutliche Unterschiede zwischen den einzelnen Obst- und Gemüsearten, wobei diese wiederum artenspezifisch von der Bodenart abhängen können. In Aufwuchsuntersuchungen zeigen sich daher auch meist nur geringe Korrelationen zwischen Boden- und Pflanzengehalten.

Zur Abschätzung der individuellen Verzehrsmenge des im eigenen Garten angebauten Obstes und Gemüses finden sich im Fragebogen der Ausgangsstudie umfangreiche, meist qualitative Angaben. Allerdings lassen sich aus diesen Angaben kaum quantifizierbare Verzehrsmengen ableiten, da die Angaben nur lückenhaft und teilweise inhaltlich widersprüchlich vorliegen (z. B. kein eigener Garten, aber gleichzeitig Verzehr von selbstangebautem Gemüse aus diesem Garten). Hinzu kommt, dass in der Ausgangsstudie mehrere Fragebogenversionen mit unterschiedlichen Fragen eingesetzt wurden, die eine konsistente Auswertung erschweren.

Etwa 20 % der Probanden verzehren Obst und Gemüse (auch) aus einem anderen als dem eigenen Privatgarten. Da die Bodenproben aber immer aus dem eigenen Privatgarten stammen, wäre eine mögliche Arsenbelastung der von diesen Probanden verzehrten Früchte aus den gemessenen Bodenproben nicht ableitbar.

Aus diesen Gründen wurde von einer detaillierten Modellierung des Pfades Boden → Pflanze → Mensch zugunsten eines deutlich vereinfachten Ansatzes abgesehen. Dabei wird ausschließlich für diejenigen Probanden, die in ihrem eigenen Hausgarten angebautes Obst und Gemüse verzehren, eine Arsensatzbelastung proportional zum Arsengehalt des Bodens angesetzt. Für alle anderen Probanden wird dieser Expositionsbeitrag auf Null gesetzt.

Die allein durch den Verzehr von selbstangebautem Obst und Gemüse bedingte Arsen-Exposition wird im Modell wie damit wie folgt berücksichtigt:

$$(4) \quad e_{\text{KGN}} = k_{\text{KGN}} \cdot \text{KGN} \cdot \text{AsB}$$

mit	e_{KGN}	Exposition durch Verzehr von im eigenen Kleingarten angebautem Obst und Gemüse [$\mu\text{g As/d}$]
	k_{KGN}	Modellkonstante [kg Boden/d]
	KGN	Verzehr selbstangebautes Obst/Gemüse [0/1]
	AsB	Arsengehalt im Boden [$\mu\text{g As/kg Boden}$]

Für die Probanden des Kontrollkollektivs liegen keine Arsenbodengehalte aus den Kleingärten vor. Daher wird für diese Probanden angenommen, dass sie

keiner erhöhten Arsen-Zufuhr durch den Verzehr von selbstangebautem Obst und Gemüse ausgesetzt sind. Der Arsengehalt im Boden (AsB) wird daher für die Probanden des Kontrollkollektivs mit Null angesetzt.

3.3.4 Grundbelastung

Unter der Grundbelastung werden alle Arsen-Expositionen subsumiert, die nicht mit dem Trinkwasser, Fisch, Meeresfrüchten oder selbstangebautem Obst und Gemüse aufgenommen werden, insbesondere also alle anderen mit der Nahrung oder Getränken aufgenommenen Arsenmengen.

Daten zur Arsen-Grundbelastung in Deutschland sind beispielsweise in EU (2004) für drei Altersgruppen angegeben. Danach beträgt die tägliche Arsenaufnahme mit der Nahrung – aber ohne Fisch- und Meeresfrüchteverzehr – für vier- bis sechsjährigen Kinder 15 µg As/d, für zehn- bis zwölfjährige Kinder 20 µg As/d und für Erwachsene 26 µg As/d. Im Kindes- und Jugendalter nimmt damit die tägliche Arsen-Aufnahme annähernd linear mit dem Alter zu. Um die Altersabhängigkeit des Grundbelastungsanteils an der Arsenaufnahme (GrundAs) zu berücksichtigen wird im Modell für das Kinder- und Jugendalter die in EU (2004) angegebenen Werte interpoliert:

$$(5) \quad \begin{aligned} \text{GrundAs} &= 11 \mu\text{g As/d} + 0.85 \mu\text{g As/d/a} \cdot \text{Alter} && \text{für Alter} \leq 18 \\ &= 26 \mu\text{g As/d} && \text{für Alter} > 18 \end{aligned}$$

mit Alter Lebensalter des Probanden [Jahre]

Der Umstand, dass nur ein Teil des mit der Nahrung aufgenommenen Arsens auch mit dem Urin ausgeschieden wird und zudem durch das in der Ausgangsstudie eingesetzte analytische Verfahren (s. Abschnitt 3.3.2) nur bestimmte Arsenverbindungen nachgewiesen werden, wird im Modell durch einen entsprechenden Proportionalitätsfaktor k_{GrundAs} berücksichtigt:

$$(6) \quad e_{\text{GrundAs}} = k_{\text{GrundAs}} \cdot \text{GrundAs}$$

mit e_{Grund} Grundbelastungsanteil Exposition [µg As/d]
 k_{GrundAs} Modellkonstante [-]
 GrundAs altersabh. Grundbelastung (s. Gl. (5))

Durch die vergleichsweise hohe Belastung von Wildpilzen mit Arsen kann auch deren Verzehr einen deutlichen Beitrag zur Gesamtexposition liefern. Allerdings lag der letzte Wildpilzverzehr bei allen Probanden mindestens drei Monate zu-

rück, was durch den Studienzeitraum von Juni bis September bedingt sein dürfte. Eine Berücksichtigung dieses Expositionspfades im Modell erscheint daher nicht sinnvoll.

3.3.5 Gesamtmodell für Arsen

Die Modellgleichung für die tägliche Arsenausscheidung mit dem Urin e_{As} ergibt sich somit aus den Gleichungen (1) bis (6) additiv zu:

$$(7) \quad e_{As} = e_{Trinkw} + e_{Fisch} + e_{KGN} + e_{GrundAs}.$$

3.3.6 Ergebnisse Arsen

Die Modellkonstanten in den Einzeltermen (Gl. (1) bis (6)) sind wie oben beschrieben zum überwiegenden Teil aus der Literatur oder aus der Xprob-Datenbank RefXP bekannt. Lediglich die drei Modellkonstanten $k_{Analytik}$, k_{KGN} und $k_{GrundAs}$ müssen durch Regressionsrechnung aus den Daten der Ausgangsstudie bestimmt werden. Dabei wird angenommen, dass sich die beiden Proportionalitätsfaktor $k_{GrundAs}$ für die Grundbelastung aus Gl. (6) und k_{Fisch} für die fischbedingte Arsenaufnahme aus Gl. (3) für die beiden Kollektive nicht unterscheiden. Der Faktor k_{KGN} aus Gl. (4) ist aufgrund der beim Vergleichskollektiv nicht gemessenen Arsen-Bodengehalte ausschließlich beim exponierten Kollektiv zu bestimmen.

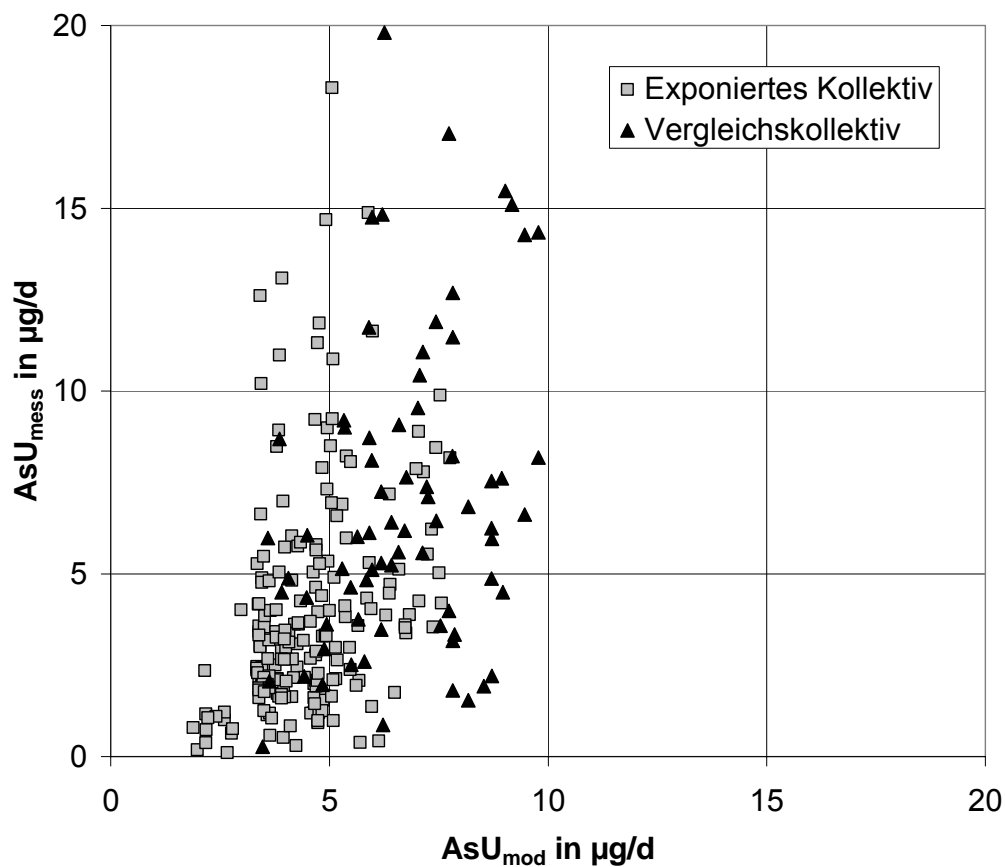
Die aus der Regressionsrechnung bestimmten Werte für die drei genannten Modellkonstanten sind in Tabelle 3.5 angegeben. Abbildung 3.1 zeigt die HBM- und die Modellergebnisse für die tägliche Arsenausscheidung mit dem Urin für das exponierte und das Vergleichskollektiv. Die durch das Modell erklärte Varianz beträgt 23 %. Dieser relativ niedrige Wert ist zwar nicht ganz befriedigend, ist aber eher typisch für arsenbezogene Modelle. Die geringe erklärte Varianz ist aber nicht auf fehlende Expositionspfade zurückzuführen, sondern auf die kurzen Halbwertszeiten von As (wenige Tage) und die daraus resultierenden großen „Tag-zu-Tag“-Schwankungen. So erklärt das Regressionsmodell von Seiwert et al. (1999), dass auf den Daten des Umwelt-Surveys 1990/92 basiert, für die erwachsene Bevölkerung etwa 16 % und für Kinder etwa 8 % der Varianz.

Tabelle 3.5 Modellkonstanten für das Arsenmodell

Modellkonstante	Gleichung	Wert	Einheit
k_{Fisch}	Gl. (3)	0,20	—
k_{KGN}	Gl. (4)	$4,5 \cdot 10^{-3}$	kg Boden/d
k_{GrundAs}	Gl. (6)	0,11	—

Die Varianzaufklärung kann auf etwa 26 % erhöht werden, wenn die Modellkonstante k_{Fisch} für die beiden Kollektive getrennt bestimmt wird. Es ergibt sich dann für das exponierte Kollektiv ein k_{Fisch} von 0,10 und für das Vergleichskollektiv ein k_{Fisch} von 0,32. Danach wäre die mit dem Urin ausgeschieden tägliche Arsenmenge bei gleicher verzehrter Fischmenge in Göttingen dreifach höher als im Pfälzer Bergland. Dies könnte zum einen durch Unterschiede in der Probengewinnung oder der Analytik bedingt sein, da die beiden Kollektive in zwei Phasen im zeitlichen Abstand von einem Jahr untersucht worden sind. Eine andere Erklärung könnte allerdings auch in Unterschiede in den Fischverzehrsgewohnheiten (z. B. beim relativen Anteil der im Durchschnitt höher arsenbelasteten Meeresfische im Vergleich zu Süßwasserfischen). Allerdings liegen zu möglichen regionalen Unterschieden im Anteil verzehrter Fischarten nicht vor.

Abbildung 3.1 Gemessene vs. modellierte tägliche Arsenausscheidung mit dem Urin für das exponierte und das Vergleichskollektiv



3.4 Quecksilber

Eine Aufnahme von Quecksilber (Hg) erfolgt in der Regel mit der Nahrung ($\sim 15 \mu\text{g/d}$), über das Trinkwasser ($\sim 2 \mu\text{g/d}$), die Luft ($\sim 0,2 \mu\text{g/d}$) oder auch durch Amalgamfüllungen (bis zu $15 \mu\text{g/d}$), wobei Fischkonsum und Amalgam als wichtigste Quellen einer Quecksilberzufuhr gelten (Schweinsberg 2002).

Elementares Quecksilber wird nach oraler Aufnahme nur ca. 1 %, nach Inhalation von Quecksilberdampf jedoch zu etwa 80 % resorbiert; anorganisches Quecksilber wird bis zu maximal 10 - 15 % vom Körper aufgenommen. Wasserlösliche anorganische Quecksilberverbindungen treten leicht durch Schleimhäute. Die kutane Resorption ist hingegen gering, kann jedoch bei Applikation quecksilberhaltiger Salben auch toxikologisch relevante Mengen erreichen. Organisches Quecksilber wird, sowohl per inhalationem als auch oral aufgenommen, zu über 90 % resorbiert.

Mit dem Blut gelangt das Quecksilber in die verschiedenen Organe. Metallisches Hg ist stark lipophil und kann somit die Blut-Hirn- als auch die Plazenta-Schranke passieren. Allerdings wird es innerhalb weniger Minuten durch Kata-

lasen in Blut, Leber und Gehirn zu ionisiertem Quecksilber (Hg^{2+}) oxidiert, welches aufgrund seiner Polarität Körperschranken nur in sehr geringem Maße passieren kann. Ionogene Hg-Verbindungen verfügen über eine hohe Affinität gegenüber freien SH-Gruppen von Proteinen und sind starke Enzyminhibitoren.

Zur Beurteilung der toxischen Wirkung ist somit von Bedeutung, dass metallisches Quecksilber im Organismus die mobile Form darstellt, während das in ionisierter Form vorliegende Hg die reaktive und somit toxikologisch relevante Form ist.

Nach Aufnahme von anorganischem Quecksilber verteilt sich dies zunächst gleichmäßig in Erythrozyten und Plasma. Es reichert sich am stärksten in den Nieren, weniger in der Leber an. Hauptausscheidungsweg, sowohl für Hg^{2+} als auch für metallisches Quecksilber, sind die Nieren, in geringerem Maße auch die Faeces.

Organisches Quecksilber verteilt sich binnen ca. vier Tagen gleichmäßig im Körper. Es ist im Blut vorwiegend an Erythrozyten gebunden und reichert sich nach Überwinden der Körperschranken auch im Gehirn und fetalen Nieren an. Es unterliegt dem enterohepatischen Kreislauf und wird im Kolon durch Darmbakterien teilweise zu Hg^{2+} demethyliert. Dieses wird dort in geringem Umfang rückresorbiert, der Rest mit dem Stuhl ausgeschieden. Insgesamt werden etwa 90 % des resorbierten organischen Quecksilbers faecal eliminiert.

Die mittlere Halbwertszeit für die Quecksilberausscheidung hängt von der Art der Quecksilberverbindung ab: für elementares Hg beträgt sie etwa 60 Tage, für anorganisches Hg etwa 40 Tage und für organische Verbindungen mehrere (1-18) Jahre.

Von der Weltgesundheitsorganisation (WHO) werden $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ als Schwelle für klinische Vergiftungserscheinungen, $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ als industrieller Schwellenwert ohne beobachtete Symptome, $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ als Schwellenwert für die Allgemeinbevölkerung sowie $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ als Schwellenwert für Kinder und Schwangere angegeben.

Eine akute Intoxikation mit metallischem oder anorganischem Quecksilber führt initial zu gastrointestinalen Beschwerden, im weiteren Verlauf treten Nierenschäden und eine Colitis mucomembranacea auf. Eine chronische Intoxikation manifestiert sich in Form einer Stomatitis mit Metallgeschmack, einem gingivalem Quecksilbersaum sowie vor allem zentralnervösen Störungen (Erethismus, Intentionstremor, Konzentrations- und Sprachstörungen).

Eine Vergiftung mit organischem Quecksilber führt zu schwersten neurologischen Schäden: akut finden sich zentralnervöse Reizerscheinungen (Erregung, Paraesthesien, Tremor, Krämpfe), eine chronische Intoxikation geht mit Seh- und Hörstörungen, Paresen sowie geistigen Störungen bis hin zu psychotischen Zuständen einher.

3.4.1 Selektion der Eingangsvariablen im Quecksilbermodell

Um aus den verfügbaren potentiellen Regressoren (Modellvariablen) eine im statistischen Sinne „optimale Auswahl“ zu treffen sind verschiedene Ansätze bekannt. Weit verbreitet sind automatische Variablenselektionsprozeduren, die aus einer Menge von möglichen Regressoren die „beste Untermenge“ auswählen:

Die „Stepwise-Prozeduren“ lassen sich dabei etwas vereinfachend in zwei Arten unterscheiden (Hocking 1976). Bei der „Forward-Selektion“ wird - beginnend mit einem Regressor - in jedem Selektionsschritt ein Regressor, dessen Effekt einen vorgegebenen p-Wert (unter dem aktuellen Modell) unterschreitet, hinzugefügt, während bei der „Backward-Selektion“ - beginnend mit der gesamten Menge der verfügbaren Regressoren - in jedem Schritt ein Regressor, der einen vorgegebenen p-Wert überschreitet, aus dem Regressorensatz eliminiert wird. Diese automatisierten Kriterien sollten vorsichtig angewendet werden: keineswegs dürfen die p-Werte eines derart selektierten Modells wie die p-Werte eines vorab aufgrund theoretischer Überlegungen aufgestellten Modells interpretiert werden. Die Verfahren reagieren bei Multikollinearität der Regressoren empfindlich und an sich ist mit den Eingangs- und Ausstiegs-p-Werten kein Optimalitätskriterium für das „beste Modell“ festgelegt.

Neben diesen automatisierten Verfahren sind die verschiedenen Modelle anhand definierter Variablenselektionskriterien, wie dem universell einsetzbaren „Akaike-Information-Kriterium (AIC)“, der auf einer Ausweitung des Maximum-Likelihood-Ansatzes basiert (Bozdogan 1987), zu vergleichen:

Bei der Variablenselektion wird dabei ein Ausgleich zwischen der Anpassungsgüte und der Anzahl der im Modell verwendeten Parameter getroffen. Zum einen erhöht jeder zusätzlich in ein Modell aufgenommener Regressor die Anpassungsgüte des Modells für die vorliegenden Daten, jedoch wird zum anderen auch die Variabilität jeder einzelnen Schätzung erhöht, d. h. die Schätzungen werden instabiler. Insbesondere kann ein komplexeres Modell bei einer neuen Realisation der Daten („zukünftige Werte“) zu einer schlechteren Modellanpassung als ein weniger komplexes Modell führen.

Gerade im Bereich der linearen Regressionsanalyse sind einige leicht anzuwendende Kriterien entwickelt worden, deren Minimierung über die betrachteten Modelle zu einem optimal parametrisierten Modell im Sinne eines vorab festgelegten Maßes führt. So schätzen „Mallow's Kriterium“ C_p , „Amemiya's Prädiktions-Kriterium“ (PC) oder das „Shibata-Kriterium“ (SH) im Wesentlichen den „Mean Square Error of Prediction“ (MSEP) eines Regressionsmodells, d. h. die zu erwartende quadratische Abweichung zwischen einer neuen Realisation der abhängigen Variable und den durch das betrachtete Modell geschätzten Werte.

Die Minimierung des MSEP erscheint auch für den vorliegenden Datensatz als der geeignete Ansatz. Es wurde daher eine Variablenselektion über die aus der Ausgangsstudie verfügbaren und möglicherweise relevanten Variablen

- Grundbelastung (s. Abschnitt 3.4.4)
- Geschlecht
- Wertigkeit bzw. Zahl der Amalgamfüllungen (s. Abschnitt 3.4.2)
- gewerblich-technischer Beruf (s. Abschnitt 3.4.3)
- Alkoholkonsum
- Bodenbelastung des Hausgartens mit Quecksilber
- Verzehr von im Hausgarten selbstangebautem Obst und Gemüse
- Rauchverhalten
- Fischverzehr
- Body-Mass-Index (BMI)
- Alter: Erwachsene (über 18 J.) vs. Kinder (bis 18 J.)
(s. Abschnitt 3.4.4)

durchgeführt; als Diskrepanz wurde der MSEP gewählt, der durch Mallows' Cp-Kriterium geschätzt wird. Die Variablenselektion liefert mit der Grundbelastung, der Wertigkeit der Amalgamfüllungen, dem Alter und (grenzwertig) dem Beruf im Wesentlichen die schon aus der Literatur als relevant angesehenen Regressoren. Die Variablenselektion ergab keine Abhängigkeit von der Bodenbelastung (weder direkt z. B. über den inhalativen Pfad noch indirekt über den Verzehr von im eigenen Hausgarten angebautem Obst oder Gemüse).

Die so selektierten Variablen bilden die Grundlage für das Quecksilber-Expositionsmodell und werden in den folgenden Abschnitten näher betrachtet.

3.4.2 Amalgamfüllungen und Kaugummi-Kauen

In der Ausgangsstudie wurde neben der Anzahl der Amalgamfüllungen bei jedem Probanden auch die so genannte Wertigkeit der Amalgamfüllungen (Hermann und Schweinsberg 1993) bestimmt, die sich aus der Summe der Oberflächen der Amalgamfüllungen ergibt: Eine vollständig auf der Kaufläche (okklusal) mit Amalgam gefüllte Fläche eines Molaren erhält die Wertigkeit zwei; seitliche (vestibuläre, linguale oder palatinale) Füllungen erhalten maximal die Wertigkeit eins. Diese Variable wird in der Anwendungsstudie mit $Wert_{AF}$ bezeichnet. Da die Wertigkeit der Amalgamfüllungen auch die potentielle mechanische Beanspruchung beim Kauen und die Oberflächengröße berücksichtigt, wurde ihr als Eingangsvariable der Vorzug vor der einfachen Anzahl der Amalgamfüllungen gegeben.

In der Literatur finden sich Hinweise, dass auch das Kauen von Kaugummi über die mechanische Beanspruchung der Amalgamflächen zu einer erhöhten Freisetzung von Quecksilber führen kann. Daher wurde zusätzlich der Einfluss des Kaugummi-Kauens in das Quecksilbermodell aufgenommen (Variable Kau in der Einheit „Kaugummis pro Woche“). Der Einfluss des Kaugummikauens kann

nur wirksam werden, wenn beim Probanden auch gleichzeitig Amalgamfüllungen vorhanden sind. Zusätzlich wird angenommen, dass der Effekt des Kaugummikauens mit der Anzahl der pro Wochegekauenen Kaugummis linear ansteigt. Der kombinierte Einfluss der Amalgamfüllungen und des Kaugummikauens wird im Modell durch Gl. (8) berücksichtigt:

$$(8) \quad e_{AF} = k_{AF} \cdot \text{Wert}_{AF} \cdot (1 + k_{Kau} \cdot \text{Kau})$$

mit	e_{AF}	Hg-Exposition durch Amalgamfüllungen [$\mu\text{g Hg/d}$]
	k_{AF}	Modellkonstante [$\mu\text{g Hg/d/Wertigkeit}$]
	Wert_{AF}	Wertigkeit der Amalgamfüllungen
	k_{Kau}	Modellkonstante [Wochen]
	Kau	Kaugummis pro Woche [1/Woche]

3.4.3 Berufliche Exposition

Um eine mögliche berufliche Quecksilber-Exposition zumindest in einem sehr groben Raster zu berücksichtigen, wurden die von den Probanden im Fragebogen angegebene „berufliche Tätigkeit in den letzten Jahren“ als dichotome Variable „Beruf“ einbezogen. Hierzu wurde eine mögliche berufliche Exposition immer dann angenommen (Beruf = 1), wenn die im Fragebogen angegebene berufliche Tätigkeit typischerweise einem gewerblich-technischen Umfeld zugeordnet werden kann. Bei beruflicher Tätigkeit in anderen Umfeldern oder bei keiner beruflichen Tätigkeit wurde die Variable Beruf auf Null gesetzt.

Die durch eine berufliche Exposition bedingte zusätzliche Quecksilberexposition e_{Beruf} wird im Modell folgendermaßen berücksichtigt:

$$(9) \quad e_{\text{Beruf}} = k_{\text{Beruf}} \cdot \text{Beruf}$$

mit	e_{Beruf}	Hg-Zusatzbelastung durch Beruf [$\mu\text{g Hg/d}$]
	k_{Beruf}	Modellkonstante [$\mu\text{g Hg/d}$]
	Beruf	1 wenn gewerb.-technisch. Beruf, sonst 0

3.4.4 Quecksilber-Grundbelastung

Mit der Grundbelastung e_{GrundHg} wird die Exposition gegenüber den betrachteten Elementen über diejenigen Pfade zusammengefasst, die durch in Abschnitten 3.4.2 und 3.4.3 genannten Einflussfaktoren noch nicht abgedeckt wurden. Beispiele hierfür wären die allgemeine Ernährung, die über den Fischkonsum und den Verzehr von im eigenen Garten angebautem Obst und Gemüse hin-

ausgehen und auch nicht durch Fragebogenangaben abgeschätzt werden können.

Da sich in Voruntersuchungen bereits ein Unterschied zwischen den korporalen Belastungen der Erwachsenen und der Kinder/Jugendlichen zeigte, geht die Grundbelastung getrennt für erwachsene Probanden (über 18 Jahre) und Probanden bis 18 Jahren in das Grundmodell ein.

Die Quecksilber-Grundbelastung e_{GrundHg} wird daher im Modell folgendermaßen berücksichtigt:

$$(10) \quad \begin{aligned} e_{\text{GrundHg}} &= k_{\text{GrundHgErw}} \text{ für Probanden über 18 Jahre } [\mu\text{g Hg/d}] \\ e_{\text{GrundHg}} &= k_{\text{GrundHgKind}} \text{ für Probanden bis zu 18 Jahren } [\mu\text{g Hg/d}] \end{aligned}$$

3.4.5 Gesamtmodell für Quecksilber

Die Modellgleichung für die tägliche Quecksilberausscheidung mit dem Urin e_{Hg} ergibt sich somit aus den Gleichungen (8) bis (10) additiv zu:

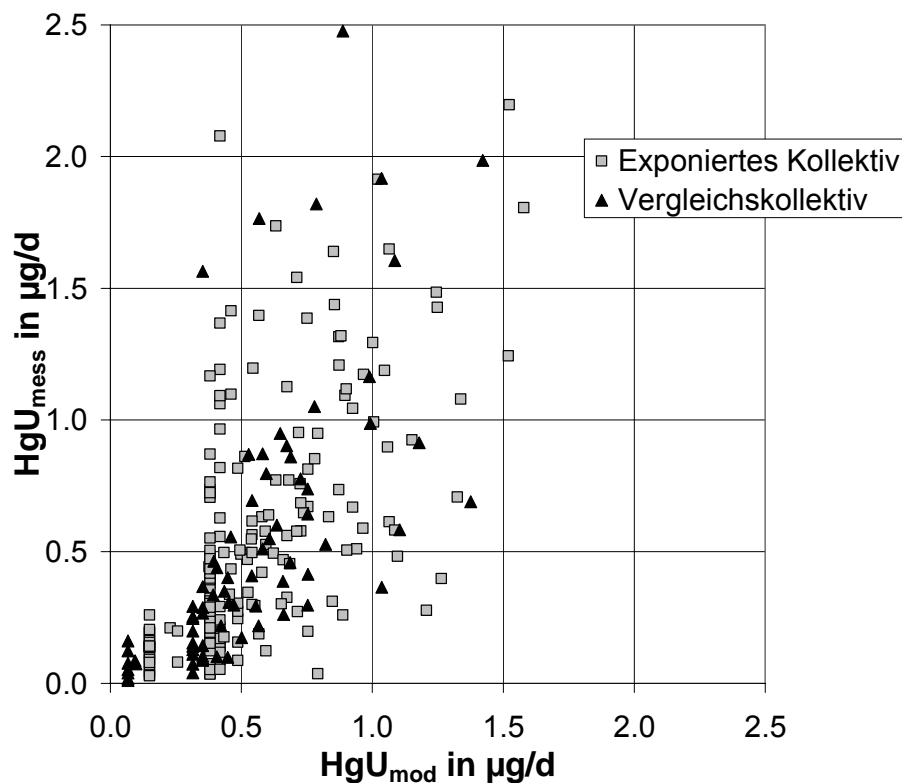
$$(11) \quad e_{\text{Hg}} = e_{\text{AF}} + e_{\text{Beruf}} + e_{\text{GrundHg}}$$

3.4.6 Ergebnisse Quecksilber

Die aus der Regressionsrechnung bestimmten Werte für die fünf oben genannten Modellkonstanten sind in Tabelle 3.6 angegeben. Abbildung 3.2 zeigt die HBM- und die Modellergebnisse für die tägliche Quecksilberausscheidung mit dem Urin für das exponierte und das Vergleichskollektiv. Die durch das Modell erklärte Varianz beträgt 39 %.

Tabelle 3.6 Modellkonstanten für das Quecksilber-Modell

Modellkonstante	Gleichung	Wert	Einheit
k_{AF}	Gl. (8)	0,026	$\mu\text{g Hg/d/Wertigkeit}$
k_{Kau}	Gl. (8)	0,071	Wochen
k_{Beruf}	Gl. (9)	0,032	$\mu\text{g Hg/d}$
$k_{\text{GrundHg (Erw.)}}$	Gl. (10)	0,366	$\mu\text{g Hg/d}$
$k_{\text{GrundHg (Kind)}}$	Gl. (10)	0,129	$\mu\text{g Hg/d}$

Abbildung 3.2 Gemessene vs. modellierte tägliche Quecksilberausscheidung mit dem Urin für das exponierte und das Vergleichskollektiv

Die Grundbelastung ist im gewählten Modellansatz ausschließlich vom Alter der Probanden abhängig. Es wäre jedoch ebenso plausibel, dass es regionale Unterschiede in der Grundbelastung (z. B. durch unterschiedliche Ernährungsgewohnheiten) gibt. Daher wurde zusätzlich ein alternativer Modellansatz mit einer kollektivabhängigen Grundbelastung geprüft (Tabelle 3.7). Das Alternativmodell erklärt mit 40 % nur einen unwesentlich höheren Anteil der Varianz. Die sich aus dem Alternativmodell jeweils ergebenden Grundbelastungen sind bei den Erwachsenen für das exponierte Kollektiv um etwa 20 % höher als für das Vergleichskollektiv. Die Grundbelastung der Kinder ist im exponierten Kollektiv etwa doppelt so hoch wie im Vergleichskollektiv.

Tabelle 3.7 Ergebnisse des Alternativmodells mit einer vom Kollektiv abhängigen Grundbelastung

	Exponiertes Kollektiv	Vergleichskollektiv	Einheit
k_{GrundHg} (Erw.)	0,381	0,315	$\mu\text{g Hg/d}$
k_{GrundHg} (Kind)	0,150	0,068	$\mu\text{g Hg/d}$

3.4.7 Einfluss des Lebensalters auf die Quecksilber-Exposition

Die Differenzen zwischen Mess- und Modellwert (Residuen) für die Quecksilberausscheidung sind in Abhängigkeit vom Lebensalter der Probanden in Abbildung 3.3 dargestellt. Dabei fallen die vergleichsweise geringen Differenzen zwischen Mess- und Modellwert für die Probanden im Kindes- und Jugendalter auf. Ab einem Lebensalter von etwa 18 Jahren steigen diese Differenzen schnell und deutlich an. Ab einem Lebensalter von etwa 60 Jahren nimmt die Streuung langsam wieder ab. Die Zeitspanne zwischen 18 und etwa 60 Jahren fällt in etwa mit dem typischen Erwerbsleben zusammen, so dass als Erklärung für die in diesem Lebensabschnitt hohe Streuung eine zusätzliche, durch das Modell nicht hinreichend zu erfassende berufliche Exposition in Frage käme. Ein anderer Zusammenhang kann jedoch auch mit der Anzahl der Amalgamfüllungen bzw. mit der Wertigkeit der Amalgamfüllungen hergestellt werden (Abbildung 3.4). Die Summe der Wertigkeit der Amalgamfüllungen steigt ebenfalls im Jugendalter deutlich an und erreicht für beide Kollektive im Alter von etwa 40 Jahren das Maximum. Danach nehmen die Amalgamfüllungen je Proband wieder ab, da zunehmend amalgamgefüllte Zähne durch (Teil-)Prothesen ersetzt werden. Da die Amalgamwertigkeit zwar die Lage und Größe, nicht aber den Zustand der Füllungen und deren mögliche mechanische Belastungen wiedergibt, könnte eine hohe Amalgamwertigkeit daher potenziell auch mit einer hohen Unsicherheit der modellierten korporalen Belastung der Probanden mit Quecksilber aus Amalgamfüllungen verbunden sein. Allerdings zeigen die Residuen keine solche Abhängigkeit von der Amalgamwertigkeit (Abbildung 3.5). Ob die erhöhten Residuen im mittlern Lebensabschnitt durch die Amalgamfüllungen, durch eine berufliche Exposition oder einfach durch eine große Bandbreite der persönlichen Lebensbedingungen in diesem Lebensabschnitt bedingt sind, kann anhand der Daten nicht sicher geklärt werden.

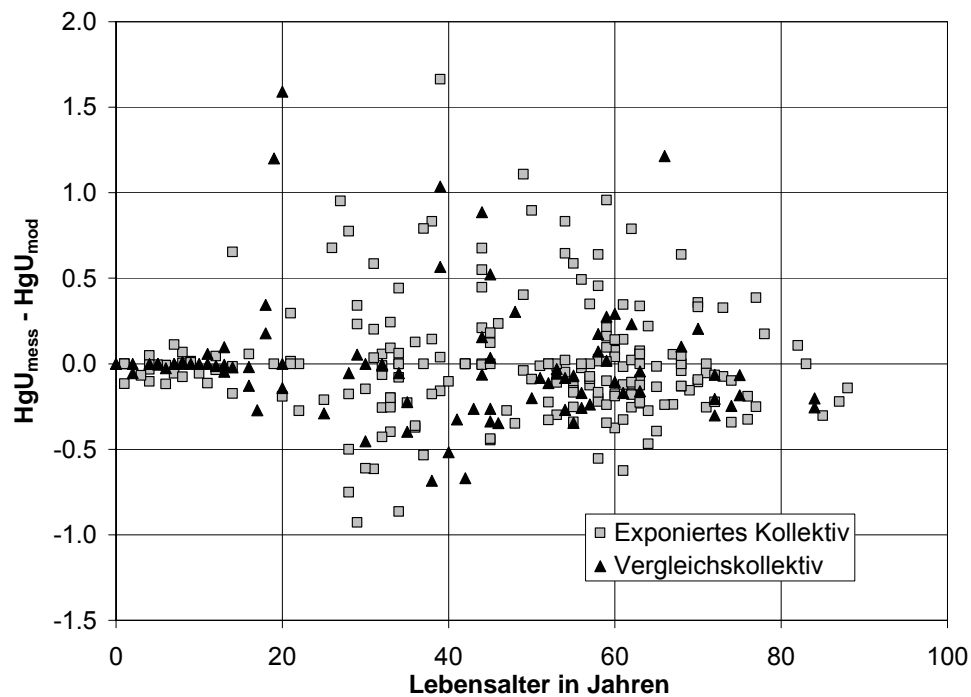
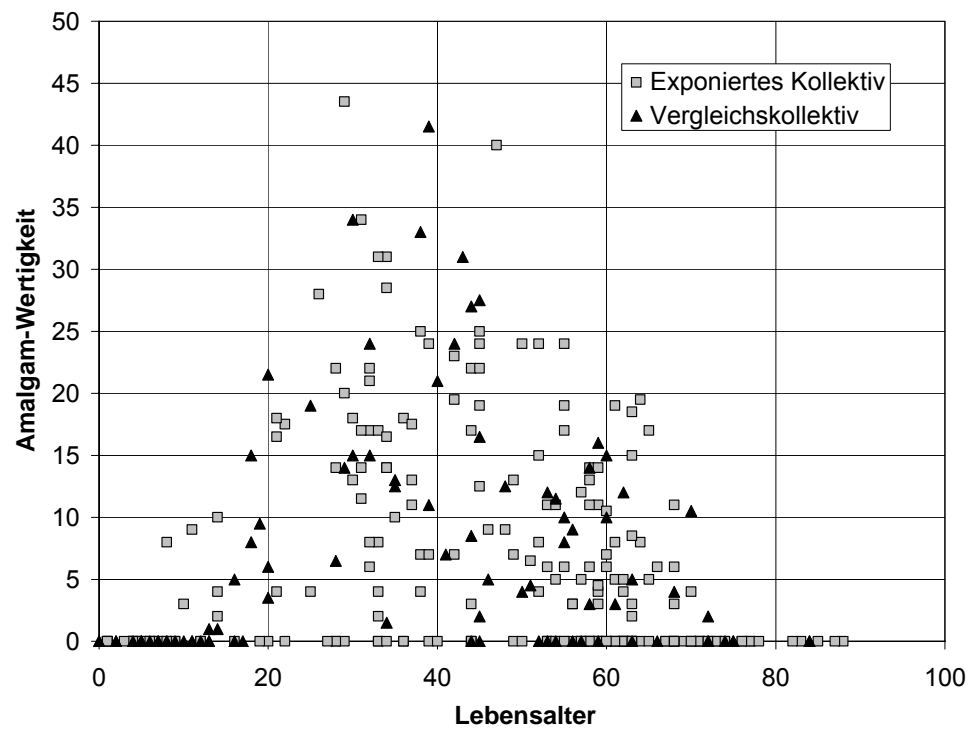
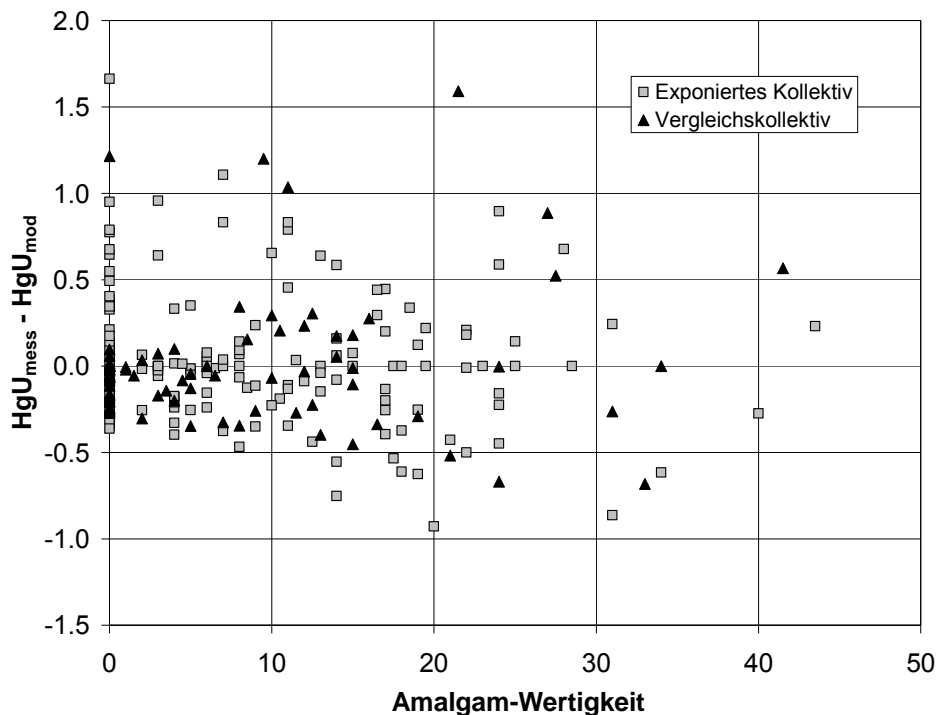
Abbildung 3.3 Differenz zwischen gemessener und modellierter Quecksilberausscheidung mit dem Urin in Abhängigkeit vom Lebensalter**Abbildung 3.4** Amalgamwertigkeit in Abhängigkeit vom Lebensalter

Abbildung 3.5 Differenz zwischen gemessener und modellierter Quecksilberausscheidung mit dem Urin in Abhängigkeit von der Wertigkeit der Amalgamfüllungen



3.4.8 Quecksilber-Exkretion im Urin der Nicht-Amalgamträger

106 (54 %) Probanden des exponierten Kollektivs und 39 (52 %) der Probanden des Vergleichskollektivs trugen zum Untersuchungszeitpunkt keine Amalgamfüllungen. Bei den Nicht-Amalgamträgern sind vorwiegend die Altersklassen bis etwa 17 Jahre (noch wenige Amalgamfüllungen) und ab etwa 55 Jahren (amalgamgefüllte Zähne oft durch (Teil-)Prothesen ersetzt) besetzt (Abbildung 3.6); unter den mittleren Jahrgängen befinden sich nur verhältnismäßig wenige Nicht-Amalgamträger. Die Streuung der Residuen (Differenz aus Mess- und Modellwert) der Quecksilberausscheidung mit dem Urin ist bei den Nicht-Amalgamträgern erwartungsgemäß deutlich geringer als bei den Amalgam-Trägern. Differenzen zwischen Mess- und Modellwert können für dieses Teilkollektiv nicht mehr durch Unsicherheiten bei der Abschätzung der Hg-Abgabe aus den Amalgamfüllungen erklärt werden. Daher wurde für die insgesamt 6 Nicht-Amalgam-Träger, deren gemessene Hg-Ausscheidung um mindestens $0,5 \mu\text{g}/24\text{h}$ vom Modellwert abweicht, die in den Fragebögen selbstangegebene Berufstätigkeit der letzten Jahre in Tabelle 3.8 zusammengestellt. Die von diesen 6 Probanden angegebenen Berufe und Tätigkeitsfelder lassen die Möglichkeit, dass sie einer berufsbedingten Quecksilber-Exposition ausgesetzt waren zumindest nicht unplausibel erscheinen. So wäre beispielsweise auch die erhöhte Belastung der beiden im Steinbruch beschäftigten Probanden nachvollziehbar,

da die Steinbrüche in einer potenziell geogen mit Quecksilber belasteten Region liegen. Eine erhöhte Quecksilber-Exposition bei Zahnarzthelferinnen wurde schon in einer Studie von Nilson et al. (1990) aufgezeigt. Der Vollständigkeit halber sei erwähnt, dass zum exponierten Kollektiv eine weitere Zahnarzthelferin gehört, die nicht aufgeführt ist, da sie Amalgam-Trägerin ist. Für diese Probandin beträgt die Differenz aus gemessener und modellierter Hg-Ausscheidung $0,65 \mu\text{g}/24\text{h}$.

Insgesamt könnten die deutlich erhöhten, vom Modell aber nicht abgebildeten Quecksilberausscheidungen einiger Probanden durchaus durch die berufliche Exposition bedingt sein.

Abbildung 3.6 Differenz zwischen gemessener und modellierter Quecksilberausscheidung mit dem Urin in Abhängigkeit vom Lebensalter für die Teilgruppe der Nicht-Amalgamträger

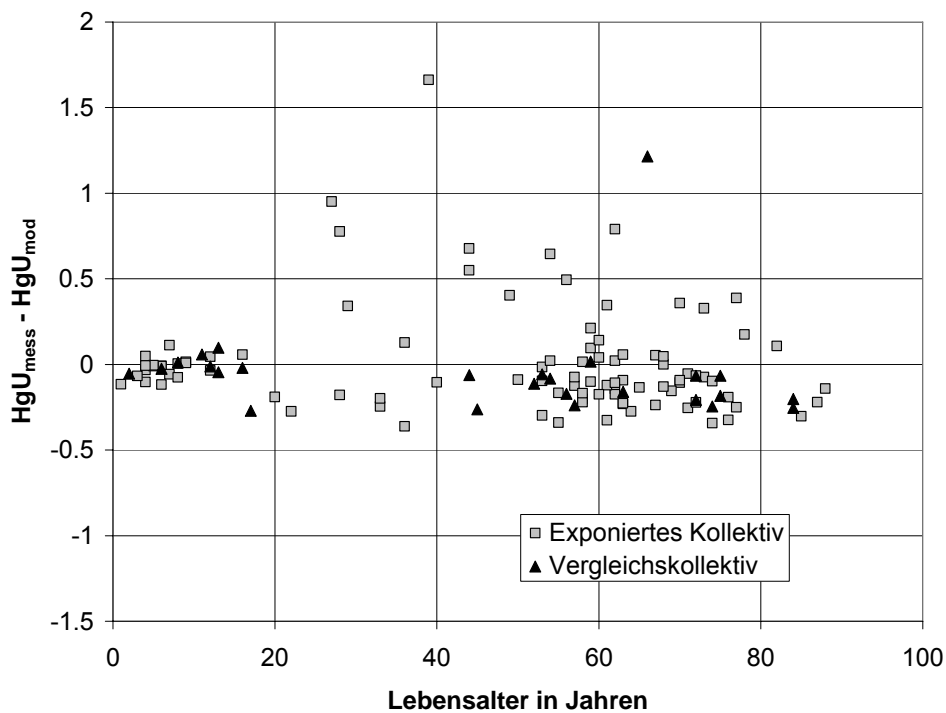


Tabelle 3.8 Nicht-Amalgamträger mit gemessenen Quecksilber-Ausscheidungen, die um mehr als 0,5 µg/24h vom Modellwert abweichen

Kollektiv	Beruf (Eigenangaben FB)	HgU _{mess} – HgU _{mod}
Exponiert	Schlosser im Steinbruch	1,59 µg/24h
Vergleich	Medizintechniker	1,23 µg/24h
Exponiert	Biologisch technische Assistentin	0,96 µg/24h
Exponiert	Gleisbau, Steinbruch	0,84 µg/24h
Exponiert	Arzt	0,62 µg/24h
Exponiert	Zahnarzthelferin	0,60 µg/24h

3.5 Fazit

In der Anwendungsstudie wurde je ein Expositionsmodell für die Arsen- und Quecksilberausscheidung mit dem Urin für die Bewohner einer Altlast entwickelt. Im Falle des Arsen-Modells konnten die relevanten Expositionspfade weitgehend auf der Basis von Literaturauswertungen und unter Verwendung der in der Xprob-Datenbank RefXP enthaltenen Expositionsfaktoren formuliert und mathematisch gefasst werden. Dabei konnten beispielsweise bei der Modellierung der Arsenaufnahme mit dem Trinkwasser deutliche Modellverbesserungen durch die Berücksichtigung der Alters- und Geschlechtsabhängigkeit der Trinkwasserverzehrmenge aus der Xprob-Datenbank RefXP erzielt werden. Ein weiteres Beispiel für die Anwendung der Xprob-Datenbank RefXP ist die Übernahme der täglichen Fischverzehrsmengen bei der Abschätzung dieses Expositionspades.

Die Quecksilber-Exposition der Probanden der Ausgangsstudie wird deutlich durch die Amalgamfüllungen und teilweise durch Kauen von Kaugummis dominiert. Grenzwertig ist ein Einfluss der Art der beruflichen Tätigkeit zu erkennen. Zu erwartende Einflüsse des Fischverzehrs sind – zumindest teilweise auch bedingt durch die Art der eingesetzten Analytik – mit den experimentellen Daten nicht zu belegen. Damit sind die Möglichkeiten zur Verwendung der im Xprob-Projekt aufbereiteten Expositionsfaktoren im Quecksilber-Modell stark eingegrenzt bzw. nicht gegeben.

Literatur Kapitel 3

1. AUH / Ausschuss für Umwelthygiene (1995): Standards zur Expositionsabschätzung. Bericht des Ausschusses für Umwelthygiene. Hrsg.: Behörde für Arbeit, Gesundheit und Soziales, Hamburg.
2. Becker K, Seiwert M, Bernigau W, Hoffmann K, Krause C, Nöllke P, Schulz C, Schwabe R (1997): Umwelt-Survey 1990/92: Band VII: Quecksilber-Zusammenhangsanalyse. WaBoLu-Hefte 6/96. Umweltbundesamt, Berlin.
3. Bozdogan H (1987): Model selection and Akaike's information criterion (AIC): The general theory and its analytical extensions. *Psychometrika* 52: 345-370.
4. EU (2004): Assessment of the dietary exposure to arsenic, cadmium, lead and mercury of the population of the EU Member States. Report on Task 3.2.11 for scientific cooperation. Directorate-General Health and Consumer Production.
5. Gebel T, Suchenwirth R, Dunkelberg H (1997): Abschlussbericht zum Forschungsprojekt „Biomonitoring-Untersuchungen bei Personen aus Wohngebieten mit erhöhten Bodenwerten an Quecksilber, Arsen und Antimon“, Göttingen.
6. Gebel T, Suchenwirth R, Bolten C, Dunkelberg H (1998): Human Biomonitoring of Arsenic and Antimony in Case of an Elevated Geogenic Exposure. *Environ. Health Perspectives* 106(1): 33-39.
7. Herrmann M, Schweinsberg F (1993): Biomonitoring zur Beurteilung einer Quecksilberbelastung aus Amalgamfüllungen; Quecksilberbestimmung in Urin vor und nach oraler Gabe von 2,3-DMPs und in Haaren. *Zentralblatt für Hygiene und Umweltmedizin* 194: 271-291.
8. Hocking RR (1976): The analysis and selection of variables in linear regression. *Biometrics* 32: 1-49.
9. Nilson B, Gerhardsson L, Nordberg, GF (1990): Urine mercury levels and associated symptoms in dental personnel. *Sci. Total Environ.* 94: 179-185.
10. Schweinsberg (2002): Metalle/Quecksilber. In: Wichmann HE, Schlipkötter HW, Fülgraff G: *Handbuch der Umweltmedizin*. Ecomed-Verlag, Landsberg/Lech.
11. Seiwert M, Becker K, Friedrich C, Helm D, Hoffmann K, Krause C, Nöllke P, Schulz C, Seifert B (1999): Arsen-Zusammenhangsanalyse. Umwelt-Survey 1990/92, Band VIII. Umweltbundesamt, Berlin.
12. UBA / Umweltbundesamt (2003): Stoffmonographie Arsen – Referenzwert im Urin. Stellungnahme der Kommission „Human-Biomonitoring“ des Umweltbundesamtes. *Bundesgesundheitsbl.* 46: 1098-1106.

4 Zur Bedeutung von Expositionsfaktoren für eine nationale und europäische Chemikalienpolitik

Odile Mekel

In 2001 wurde die neue Europäische Chemikalienpolitik als ein so genanntes Weißbuch durch die Europäische Kommission (EC 2001) vorgestellt, seit 2003 ist sie unter dem Kürzel REACH bekannt (EC 2003). Die Abkürzung REACH steht für **R**egistration, **E**valuation and **A**uthorisation of **C**hemicals oder auf deutsch Registrierung, Bewertung und Zulassung chemischer Stoffe. Am 17.11.2005 fand die erste Lesung des REACH-Entwurfs im Europäischen Parlament statt. Während das Verfahren der Registrierung eine qualifizierte Mehrheit gefunden hat, ist bezüglich der Bewertung und Zulassung (Autorisierung) von Chemikalien ein differenziertes Meinungsbild erkennbar (siehe auch SRU 2005).

Mit der neuen Chemikalienverordnung sollen existierende chemische Stoffe schneller bewertet, Kosten für das Gesundheitssystem reduziert, Innovationen zur Substitution und Vermeidung von gefährlichen Stoffen stimuliert sowie eine Verbesserung des Umwelt- und Gesundheitsschutzes erreicht werden.

Alle Stoffe, die in Mengen von über 1 t pro Jahr und Hersteller produziert oder importiert werden, fallen unter REACH. Dies sind etwa 30.000 Stoffe. Sie müssen nach einem verbindlichen Zeitplan bei einer zentralen EU-Behörde (Chemikalienagentur) mit einem definierten Satz von Informationen registriert werden (vgl. Abbildung 4.1).

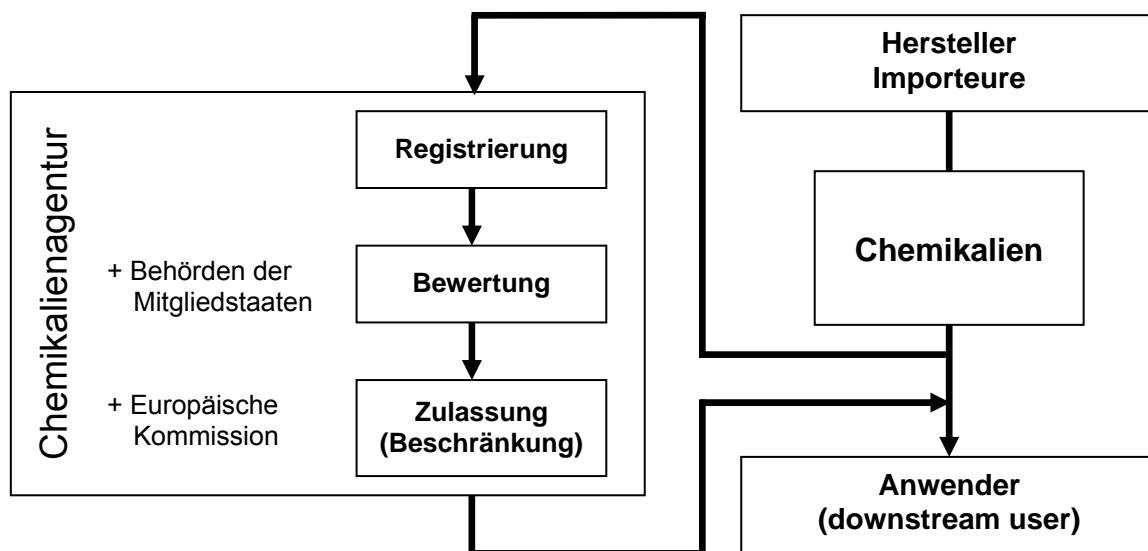
Eine wesentliche Änderung in der neuen Chemikalienpolitik ist die Umkehr der Beweislast. Im gegenwärtigen Regelungssystem liegt die Prüfung der Sicherheit von chemischen Stoffen bei den Behörden. Im neuen Verfahren ist vorgesehen, dass Unternehmen, die Chemikalien herstellen oder importieren, verpflichtet werden, die mit ihrer Verwendung verbundenen Risiken zu bewerten und Maßnahmen zur Beherrschung der von Ihnen erkannten Risiken zu treffen.

Einige wichtige Merkmale des Paradigmenwechsels durch REACH (vgl. Lahl 2005) sind:

- Beweislastumkehr;
- Berücksichtigung der gesamten Stoff- und Produktkette;
- einheitliches System für Alt- und Neustoffe;
- mehr Transparenz bzgl. Stoffeigenschaften und damit sichere Verwendungen.

Eine weitere Neuheit in der REACH-Verordnung liegt in der Einbeziehung der so genannten *downstream user* (DU) - gemeint sind die in der Lieferkette nachgeschalteten Anwender - in die Regelung. Auch diese tragen Verantwortung dafür, dass die vorgesehene Anwendung des Stoffes im jeweiligen Produkt sicher für Mensch und Umwelt ist. Es gilt immer der Grundsatz, dass zunächst der Hersteller für alles verantwortlich ist. Der downstream user kann ihn unterstützen (und sollte dies tun), z. B. bei der Entwicklung von Expositionsszenarien bzw. bei der Kommunikation der Verwendungsbedingungen. Die einzige Pflicht des Anwenders nach REACH ist dann zu prüfen, ob das an ihn kommunizierte Expositionsszenario mit seinen eigenen Verwendungsbedingungen übereinstimmt. Zwischen nachgeschaltetem Anwender und Produzenten muss ein wechselseitiger Kommunikationsfluss aufgebaut werden, damit die Hersteller die notwendigen Informationen für die Expositionsszenarien bekommen und die nachgeschalteten Anwender die (chemisch-physikalischen bzw. toxikologischen) Stoffinformationen kennen. REACH regelt den Informationsfluss: Der konkrete Aufbau dieser Kommunikationsstrukturen stellt dabei eine neue und große Herausforderung dar.

Abbildung 4.1 Akteure und Prozessablauf in REACH
(nach Lahl 2005)



Während das wesentliche Gerüst der Verordnung fest steht, gibt es zu einigen Details noch Meinungsverschiedenheiten. Ein wesentlicher Diskussionspunkt ist die von der Industrie geforderte Vereinfachung und Praktikabilität der Verordnung. Speziell in Wirtschaftskreisen wird ein zu großer Umfang an zu liefernden toxikologischen Informationen, dies sind insbesondere geforderte Tests, befürchtet.

REACH sieht vor, dass proportional zum Umfang von Produktion oder Import die Anforderungen an die Prüfung steigen. Aus der derzeitigen Regelungspraxis sind aber auch Sonderfälle bekannt, in denen bestimmte Stoffe, die nur in geringen Mengen produziert werden - beispielsweise Duftstoffe mit einer Produktion von unter 1 t pro Jahr - ebenfalls ein Risiko für Mensch und Umwelt darstellen können. Solche Fälle würden unter den derzeitigen REACH-Vorschlägen ebenfalls nicht reguliert werden.

4.1 Stellenwert von Expositionsabschätzungen in REACH

4.1.1 Expositionsbeurteilung im Rahmen des Stoffsicherheitsberichts

Wie im bisherigen Regelungssystem nimmt die Toxizitätsprüfung eines Stoffes eine prominente Rolle im Zulassungsverfahren ein. Darüber hinaus sieht REACH aber vor, dass auch Expositionsabschätzungen Teil des Verfahrens sind (Abbildung 4.2). Im derzeitigen REACH-Entwurf wird eine Expositionsbeurteilung (exposure assessment) als Bestandteil des Stoffsicherheitsberichts gefordert, wenn der Stoff mit mehr als 10 t pro Jahr produziert oder importiert und als gefährlich eingestuft wird oder CMR-, PBT- und vPvB²⁵-Stoffe bzw. Stoffe mit "similar concern" sind.

Damit folgt REACH den Prinzipien der quantitativen Risikoabschätzung, in der sowohl die Toxizität als auch die Exposition Informationen zur Charakterisierung der bestehenden bzw. möglichen Risiken liefern. Explizit sieht REACH die Möglichkeit von *Risikominderungsmaßnahmen* (RMM) zur Verringerung potentieller Risiken vor. Diese RMM stehen im direkten Zusammenhang mit der Expositionsbeurteilung. Die Expositionsbeurteilung soll Informationen darüber geben, unter welchen Konditionen der Stoff in der Produktkette angewandt und wie er verbreitet wird. Hierdurch werden Informationen bereitgestellt, die Hinweise auf effektive Risikominderungsmaßnahmen (z. B. Einsatz persönlicher Schutzausrüstung am Arbeitsplatz) liefern.

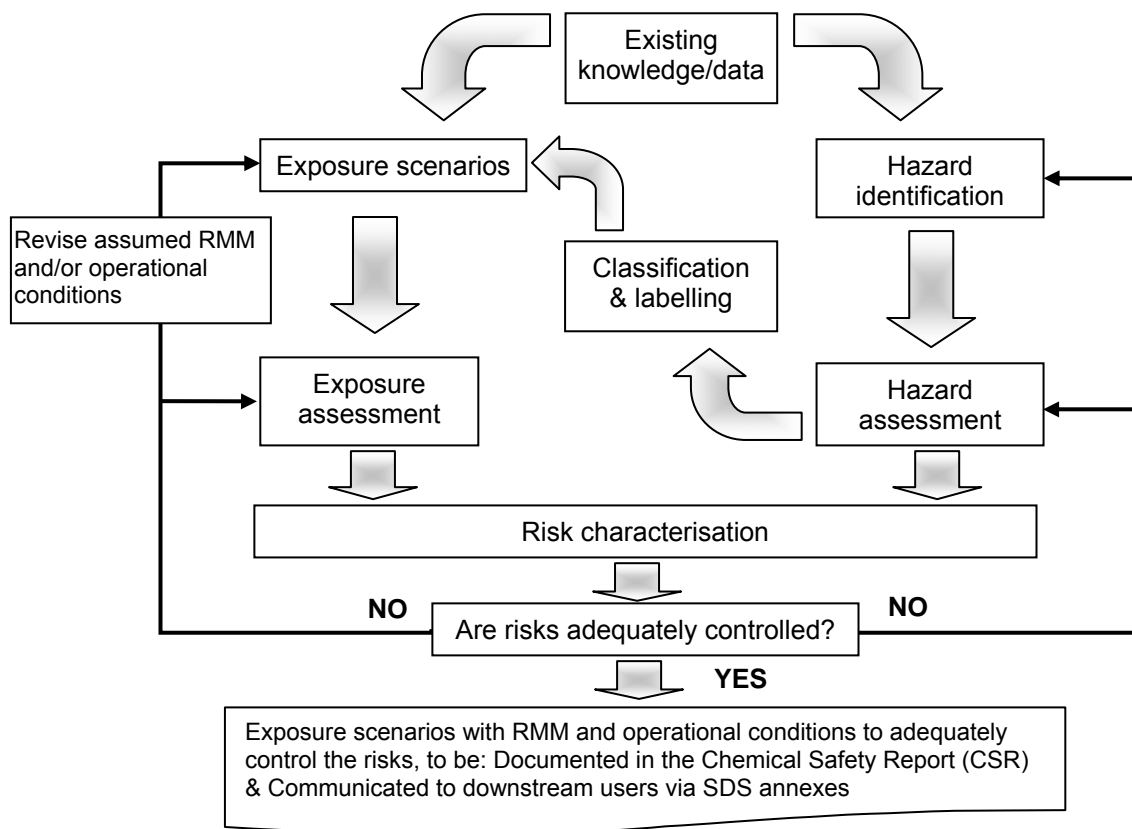
Die Expositionsbeurteilung umfasst zwei Schritte, die im Stoffsicherheitsbericht klar als solche gekennzeichnet werden: Schritt 1: Entwicklung von Expositionsszenarios; Schritt 2: Expositionsabschätzung.

Ein Expositionsszenario nach REACH (EC 2003) ist

„die Zusammenstellung von Bedingungen, mit denen dargestellt wird, wie der Stoff hergestellt oder während seines Lebenszyklus verwendet wird und wie der Hersteller / Importeur die Exposition von Mensch und Umwelt beherrscht oder den nachgeschalteten Anwendern zu beherrschen empfiehlt“.

²⁵ CMR: carcinogenic, mutagenic and reproduction toxic; PBT: persistent, bioaccumulative and toxic; vPvB very persistent, very bioaccumulative;

Abbildung 4.2 Stellung der Expositionsabschätzung in REACH
(nach de Bruijn 2005)



RMM = Risikominderungsmaßnahmen (risk management measures)

SDS = Safety Data Sheet

Ein Expositionsszenario in REACH enthält unter anderem folgende Elemente:

- Beschreibung der Prozesse und Verfahren in der Produktion und in der nachgeschalteten Anwendung inkl. Mengen-Quantifizierung;
- Beschreibung der Betriebsbedingungen, inkl. Häufigkeit und Dauer einzelner Prozess- und Arbeitsschritte in der Produktion und in der nachgeschalteten Anwendung;
- Angewandte Risikominderungsverfahren bei der Produktion und bei der nachgeschalteten Anwendung, inkl. Prozess- und Emissionskontrolle, Schutzmaßnahmen am Arbeitsplatz etc.;
- Maßnahmen zur Abfallentsorgung und -verwertung;
- Aktivitäten und Tätigkeiten der Arbeitnehmer in Produktions- bzw. Anwendungsprozessen, die im Zusammenhang mit der Exposition gegenüber dem Stoff relevant sind, wie Expositionsdauer und -häufigkeit;
- Verbraucherverhalten, welches die Expositionsdauer und -häufigkeit bestimmt;

Die Expositionsabschätzung soll nach REACH für jedes Expositionsszenario folgende Aspekte umfassen:

- Abschätzung der Emission;
- Verbleib und Verhalten in der Umwelt;
- Abschätzung der Expositionshöhe.

Die Expositionsabschätzung soll für alle Bevölkerungsgruppen, wie die Arbeitnehmer, die Verbraucher, die indirekt über die Umwelt exponierte Bevölkerung sowie für alle Umweltkompartimente durchgeführt werden, für die eine Exposition gegenüber dem Stoff bekannt oder realistischerweise vorhersehbar ist. Alle Expositionspfade, wie orale, inhalative und dermale Exposition, sind zu betrachten. Ebenfalls ist den realistisch anzunehmenden temporären und räumlichen Schwankungen der Exposition Rechnung zu tragen.

Die Verpflichtung zur Erarbeitung von Expositionsbeurteilungen gilt in erster Linie für Hersteller und Importeure. Die Anwender müssen prüfen, ob das Expositionsszenario des Herstellers für die eigene Anwendung gültig ist und ob die vorgegebenen Anwendungsbedingungen alle zutreffen. Ist dies nicht der Fall, so kann der Hersteller bzw. Importeur aufgefordert werden, das Expositionsszenario mit den Informationen des Anwenders zu erweitern. Der Anwender kann aber auch selbst ein Expositionsszenario aufstellen. Dieses System setzt einen Kommunikationsfluss voraus, den REACH neu regelt, der jedoch in der Praxis durch Einrichtung geeigneter Kommunikationsstrukturen erst entwickelt werden muss.

4.1.2 Waiving

Die verbindliche Forderung, Expositionsbeurteilungen durchzuführen, beinhaltet eine eingehende Vorprüfung der Art und der voraussichtlichen Form der Exposition, sowie im Ansatz auch eine Möglichkeit, auf bestimmte Prüfanforderungen zu verzichten. Im Rahmen von REACH werden drei Möglichkeiten für den Verzicht auf Durchführung von Prüfungen (sogenanntes "*Waiving*") diskutiert. Eine Möglichkeit besteht im Nachweis einer fehlenden Exposition des Menschen. In diesem Fall könnte beispielsweise auf den 28-Tage-Toxizitätstest verzichtet werden. Da jedoch bislang keine rechtssichere Definition und keine ausreichenden Merkmale existieren, wann eine relevante Exposition des Menschen ausgeschlossen werden kann, werden zurzeit entsprechende Kriterien aufgestellt. Anhand konkreter Stoffbeispiele wurde dies in einem von Bundesumweltministerium (BMU) und dem Verband der Chemischen Industrie (VCI) geförderten Forschungsprojekt untersucht, dessen Ergebnisse kürzlich veröffentlicht wurden (BMU 2005).

4.2 Technische Ausarbeitung der Anforderungen an die Expositionsbeurteilung

Insgesamt baut REACH auf bisherige Regelwerke und Prüfverfahren auf. Insbesondere die Toxizitätsprüfung stand im bisherigen Regelungssystem im Mittelpunkt. Die Ausarbeitung von Richtlinien für die Toxizitätsprüfung ist weitgehend ausgereift. Von verschiedenen Kreisen wird dagegen kritisiert, dass die Festlegung derartiger Richtlinien für die Expositionsbeurteilung deutlich weniger fortgeschritten ist.

Inhaltlich haben drei deutsche Bundesoberbehörden (BAuA, BfR, UBA) gemeinsam einen Vorschlag zur technischen Umsetzung der Expositionsbeurteilung in die Diskussion eingebracht, die die Exposition im Rahmen der Chemikalienprüfung nach so genannten *Verwendungs- und Expositions-kategorien* (VEK) einteilt (Anonym 2004). Diese werden wie folgt definiert:

„Verwendungs- und Expositions-kategorien (VEK) fassen die Expositionssituationen zusammen, die durch vergleichbare Verwendungsarten / -tätigkeiten und einen bestimmten Satz von Parametern charakterisiert sind. VEK stellen damit eine Zusammenfassung von vergleichbaren einzelfallspezifischen Expositionsszenarien dar. Dadurch soll die Gesamtheit der Bedingungen beschrieben werden, welche die Exposition des Stoffes bestimmen.“

Dem Prinzip der VEK liegt bei der Betrachtung der Exposition gegenüber einem Stoff eine Kategorisierung, d. h. Zusammenfassung einer Vielzahl von Verwendungsarten, zugrunde. Auf diese Weise können ähnliche Expositionssituationen zu einer Expositions-kategorie zusammengefasst und aufwändige Einzelfallbetrachtungen vermieden werden. Eine solche Kategorisierung von Verwendungsarten in VEK soll jedoch spezifisch genug sein, damit die Sicherheit für Mensch und Umwelt gewährleistet werden kann. Mit der Bildung von VEK wird beabsichtigt, den Stoffanwendern ein einfach zu handhabendes Instrument für die Expositionsbeurteilung zur Verfügung zu stellen. Unberührt hiervon können weiterhin Einzelfallbetrachtungen durchgeführt werden.

Folgende Anforderungen werden u. a. an das System gestellt (Anonym 2004):

- VEK müssen Angaben zur Verfügung stellen, welche die quantitative Schätzung der Expositionshöhe ermöglichen.
- Die Modelle, die zur quantitativen Schätzung verwendet werden, müssen so einfach wie möglich sein und flexible Verfahren zur Emissions- und Expositionsminderung für den Stoffanwender bereitstellen.
- Die Schätzung der Expositionshöhe innerhalb von VEK erfolgt auf der Basis von Standardexpositionsszenarien.
- VEK müssen für den gesamten Lebenszyklus sowie für alle relevanten Eintragspfade eines Stoffes erstellt werden.

- Das System der Expositionsbeurteilung muss für Hersteller, Importeure und nachgeschaltete Anwender identisch sein (d. h. kein Systemwechsel entlang der Wertschöpfungskette).
- Durch die Expositionsbeurteilung soll das aktuelle Schutzniveau für Mensch und Umwelt zumindest erhalten, ggf. verbessert werden.

Die weitere Ausarbeitung dieser Standardszenarien bzw. Verwendungs- und Expositions-kategorien soll im Rahmen von so genannten *REACH-Implementation-Projects* (RIP) (Tabelle 4.1) geschehen. Speziell in RIP 3 wird unter anderem die technische Umsetzung der Stoffsicherheitsbeurteilung ausgearbeitet und die Anforderungen an Expositionsabschätzungen festgelegt (RIP 3.2: Technical Guidance Document (TGD) on preparing the Chemical Safety Report). Das VEK-Konzept wurde in RIP 3.2-1 eingebracht und findet sich im RIP 3.2-1-Bericht als Konzept der "determinants of exposure" wieder.

Wie für die Toxizitätsprüfung soll auch für die Expositions beurteilung auf bisherige Richtlinien und Verfahren aufgebaut werden. Insbesondere wird hierzu auf die derzeitigen *Technical Guidance Documents* (TGD) hingewiesen, die an die REACH-Anforderungen zur Expositionsabschätzung angepasst werden müssen. Erste Ansätze wurden bereits im RIP 3.2 (Anonym 2005a) gemacht und im so genannten *preliminary TGD* (pTGD) (Anonym 2005b) ausgearbeitet. Die Ergebnisse des RIP 3.2 (Anonym 2005a) wurden dabei erst kürzlich auf den Internetseiten des Europäischen Chemikalienbüros (<http://ecb.jrc.it>) veröffentlicht.

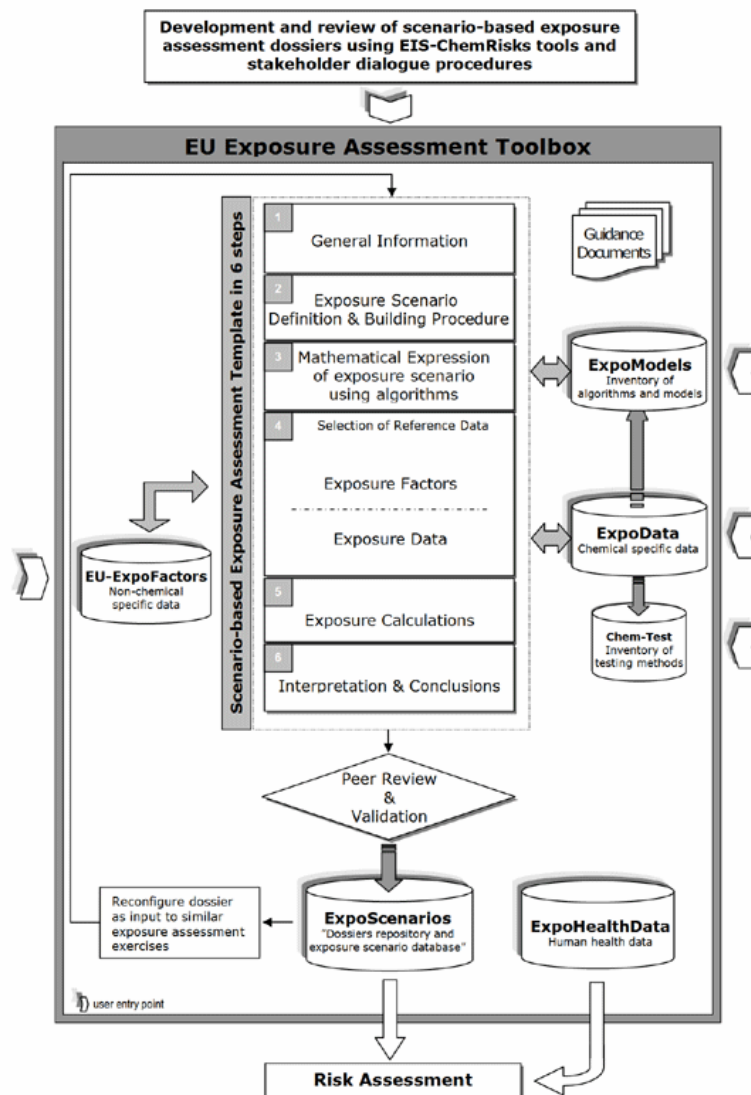
Zusätzlich soll ein elektronisches System entwickelt werden, welches die Verwaltung der Informationsströme erleichtert und die Durchführung bzw. Zusammenstellung von Expositionsszenarien bzw. -schätzungen ermöglicht.

Tabelle 4.1 Übersicht über REACH-Implementation-Projects (RIP)
mit Detaillierung für RIP 3

RIP 1	Beschreibung des REACH-Prozesses:	Entwicklung einer detaillierten Beschreibung des REACH-Prozesses	
RIP 2	REACH-IT:	Entwicklung eines IT-Systems zur Unterstützung der REACH-Einführung	
RIP 3	Leitfäden:	Entwicklung von Leitfäden und Software-Tools für die Industrie	
	Einzelprojekte:		
	3.1	Leitfaden zur Erstellung des Technischen Dossiers für die Registrierung	<i>Guidance Document on Preparing the Technical Dossier for Registration</i>
	3.2	TGD zur Erstellung des Stoffsicherheitsberichts	<i>TGD on preparing the Chemical Safety Report</i>
	3.3	TGD zu Anforderungen an Informationen über intrinsische Stoffeigenschaften	<i>TGD on Information Requirements on Intrinsic Properties of substances</i>
	3.4	Leitfaden zur gemeinsamen Datennutzung (Vor-Registrierung)	<i>Guidance Document on Data sharing (Pre-registration).</i>
	3.5	Leitfaden der Anforderungen für nachgeschaltete Anwender	<i>Guidance Document on Downstream-User Requirements</i>
	3.6	Leitfaden zur Einstufung und Kennzeichnung nach dem Global Harmonised System (GHS)	<i>Guidance on Classification and Labeling under Global Harmonised System</i>
	3.7	Anleitung zur Erstellung eines Anwendungsdossiers für die Zulassung	<i>Guidance on preparing an Application Dossier for Authorisation</i>
	3.8	Anleitung zur Erfüllung von Anforderungen an Gegenständen	<i>Guidance on fulfilling the Requirements for articles</i>
	3.9	TGD zur Durchführung einer sozio-ökonomischen Analyse bzw. zu entsprechenden Eingangsdaten	<i>Technical Guidance Document on carrying out a Socio-Economic Analysis or input for one</i>
	3.10	TGD zur Charakterisierung und Prüfung der Stoffidentifikation	<i>Technical Guidance Document for characterisation and checking of Substance Identity</i>
RIP 4	Leitfäden:	Entwicklung von Leitfäden und Software-Tools für Behörden	
RIP 5	Einrichtung der Vorläufereinrichtung der EU Chemikalienagentur (Pre-Agentur)		
RIP 6	Einrichtung der EU Chemikalienagentur		
RIP 7	Vorbereitung der Kommission auf REACH		

(nach Anonym 2005a, 2005c)

Abbildung 4.3 Der European Exposure Assessment Werkzeugkasten in EIS-ChemRisks



(Papameletiou et al. 2005)

Ein System mit derartiger Ausrichtung wurde bereits vom Joint Research Centre (JRC) in Ispra, Italien, entwickelt. Das so genannte *European Information System on Chemical Risks* (EIS-ChemRisks) sieht vor, dass Informationen zur Verbraucherexposition in einem Datenbanksystem gespeichert und verwaltet werden. Eine Erweiterung mit Expositionsinformation über Umwelt und Arbeitsplatz ist ebenfalls vom JRC vorgesehen. Das System sieht des Weiteren vor, verschiedene Standardszenarien mit entsprechenden Werkzeugen zur Bewertung dieser Szenarien bereitzustellen (Papameletiou et al. 2005). Eine schematische Darstellung zeigt Abbildung 4.3. Es ist jedoch noch offen, ob dieses System sich als Lösung in REACH durchsetzt.

4.3 Anwendung von Xprob-Ergebnissen in REACH

Die derzeitigen Überlegungen zur Ausgestaltung der Anforderungen an die Expositionsbeurteilung im Rahmen von REACH sehen ein gestuftes Vorgehen bei der Entwicklung von Expositionsszenarien und der Schätzung der Expositionshöhe vor. Die Expositionsbeurteilung wird vermutlich einem iterativen Prozess unterliegen.

Es ist zu erwarten, dass so genannte Standardszenarien bzw. ein Kanon verschiedener Szenarien aufgestellt werden. Die in Xprob formulierten Ansätze der Guten Praxis (vgl. Kapitel 1 in Teil 1 des Berichts) der Expositionsmodellierung können bei der Entwicklung von Modellen im Rahmen dieser Szenarien Eingang finden.

In der ersten Stufe der Szenarienbildung und Expositionsabschätzung werden in der Regel sehr vereinfachte Annahmen getroffen. Verteilungsbasierte Modelle sollen hier nicht zum Einsatz kommen. Gleichwohl können in Expositionsszenarien und Expositionsabschätzungen Ergebnisse des Xprob-Projekts genutzt werden, wenn Kenngrößen der abgeleiteten Verteilungen als Punktschätzer interpretiert und eingesetzt werden. Die in Xprob vorgelegten qualitätsgesicherten Auswertungen betreffen jedoch nur eine Auswahl expositionsrelevanter Eingangsgrößen. Für REACH sind über diese Daten hinaus weitere Expositionsfaktoren auszuwerten. Neben dem gesundheitsbezogenen Umweltschutz werden auch Angaben aus dem Arbeits- und Verbraucherschutz benötigt, die nach der Xprob-Methodik ausgewertet werden sollten.

In die höheren, detaillierten Stufen der Entwicklung und Abschätzung von Expositionsszenarien werden zunehmend Methoden der verteilungsbasierten Modellierung eingehen. Dies betrifft insbesondere Szenarien, in denen zeitliche und räumliche Schwankungen in der Exposition angemessen zu berücksichtigen sind und die Unsicherheit in der Schätzung zu beurteilen ist. Entsprechende Vorschläge finden sich in den vorläufigen (*preliminary*) *Technical Guidance Documents* (pTGD) (Anonym 2005b). Bei der Ausarbeitung von Expositionsszenarien sollten diese Aspekte inkl. der Validierungsgrenzen der Szenarien frühzeitig dargestellt werden, damit allgemeine Leitlinien für die Erstellung verteilungsbasierter Modelle in Einzelfallprüfungen vorliegen.

Das Projekt Xprob kann sowohl Bausteine als auch Gerüste für die Entwicklung von verteilungsbasierten REACH-Expositionsszenarien liefern.

Insgesamt werden die Xprob-Ergebnisse zur Ausgestaltung der technischen Umsetzung der Expositionsbeurteilung beitragen können. Insbesondere der vorliegende Bericht bietet hierzu Anknüpfungspunkte, die als REACH-spezifische Anforderungen angepasst und übernommen werden können.

Durch das Xprob-Projekt wurde in Deutschland auf dem Gebiet der verteilungsbasierten Expositionsabschätzung besondere Kompetenz aufgebaut, die einem europäischen Vergleich standhalten kann. Das Joint Research Centre (JRC)

der EU zeigt aktuell großes Interesse an einer engen Kooperation mit dem Xprob-Projekt, um insbesondere den Bereich der Expositionsfaktoren mit aktuellen und validen Daten zu untermauern. Zukünftige Entwicklungen sollen daraufhin ausgerichtet sein, diese Kompetenz gewinnbringend im nationalen Bereich (z. B. für anlassbezogene Expositionsabschätzungen, Health Impact Assessment), aber auch im internationalen Bereich, wie im REACh-Verfahren, einzubringen. Zum letzteren sind die kürzlich veröffentlichten umfänglich dokumentierten Ergebnisse der so genannten REACh-Implementation-Projects (RIP) auf die deutschen Interessen hin zu sichten und bedarfsorientierte Entwicklungsstränge und -bedarfe zu formulieren.

Darüber hinaus müssen die Szenarien für die Expositionsschätzung mit expositionsrelevanten Eingangsgrößen gefüllt werden. Hierzu bieten die von Xprob abgeleiteten Expositionsfaktoren qualitätsgesicherte Eingangsgrößen.

Nicht nur die bereitgestellten Daten, sondern auch die entwickelte Methodik für eine einheitliche Auswertung werden bei Expositionsbeurteilungen im Rahmen von REACh von Bedeutung sein. Die Methodik der verteilungsbasierten Schätzung kann damit die in REACh geforderten Aspekte von temporären und räumlichen Schwankungen der Expositionsbedingungen angemessen Rechnung tragen.

Literatur Kapitel 4

1. Anonym (2004): Das Konzept „Verwendungs- und Expositions-kategorien“ - Standpunkt der deutschen Bewertungsbehörden. Dortmund und Berlin: Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin, Umweltbundesamt und Bundesinstitut für Risikobewertung, 20. September 2004.
2. Anonym (2005a): Development of the concept of exposure scenarios. General framework of exposure scenarios. Scoping Study for Technical Guidance Document on preparing the Chemical Safety Report under REACH – Scoping Study – Phase 1 A (REACH Implementation Project 3.2-1A). Internet: ecb.jrc.it/DOCUMENTS/REACH/RIP_FINAL_REPORTS/RIP_3.2-1_CSA-CSR/EXPOSURE_SCENARIOS/, 26.09.2005.
3. Anonym (2005b): Technical Guidance Document on preparing the Chemical Safety Report under REACH – Preliminary Guidance Document on preparing the Chemical Safety Assessment under REACH – Phase 1B (REACH Implementation Project 3.2-1B). Internet: ecb.jrc.it/DOCUMENTS/REACH/RIP_FINAL_REPORTS/RIP_3.2-1_CSA-CSR/PRELIMINARY_TGD/, 26.09.2005.
4. Anonym (2005c): REACH-Internetportal des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Umweltbundesamtes. Internet: www.reach-info.de, 12.12.2005.
5. BMU / Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) (2005): Prüfanforderungen an Stoffe im Rahmen von REACH. Internet: www.bmu.de/chemikalien/reach/doc/35659.php, 22.09.05.
6. Bruijn de J (2005): REACH and the protection of consumers. In: BfR (Hrsg.): EU-Chemikalienrecht und Verbraucherschutz. Proceedings zum ersten BfR-Forum Verbraucherschutz am 23. und 24. Juni 2005. Berlin. Berlin: BfR, 25-30.
7. EC / Europäische Kommission (EC) (2001): Weißbuch - Strategie für eine zukünftige Chemikalienpolitik [COM (2001) 88]: http://europa.eu.int/eurlex/de/com/wpr/2001/com2001_0088de01.pdf
8. EC / Europäische Kommission (EC) (2003): Vorschlag für eine Verordnung des Europäischen Parlaments und des Rates zur Registrierung, Bewertung, Zulassung und Beschränkung chemischer Stoffe (REACH), zur Schaffung einer Europäischen Agentur für chemische Stoffe sowie zur Änderung der Richtlinie 1999/45/EG und der Verordnung (EG) (über persistente organische Schadstoffe). Brüssel: KOM(2003) 644 endgültig.
9. Lahl U (2005): Schafft REACH den „informierten Verbraucher“? Vortrag auf dem Ersten BfR-Forum Verbraucherschutz 24.06.2005 inkl. Vortragsfolien "REACH für Anwender". Internet: www.bfr.bund.de/cm/232/reach_fuer_anwender.pdf, 14.09.2005.
10. Papameletiou D, Hakkinen PJ, Kephelopoulos S et al. (2005): The EU Exposure Assessment Toolbox. Outline and Status June 2005. European Commission, Joint Research Centre, Institute for Health and Consumer Protection, Ispra, Italy.
11. SRU / Sachverständigenrat für Umweltfragen (SRU) (2005): Die Registrierung von Chemikalien unter dem REACH-Regime - Prioritätensetzung und Untersuchungstiefe. Berlin: Stellungnahme Nr. 8, Oktober 2005.