

UMWELTFORSCHUNGSPLAN DES
BUNDESMINISTERIUMS FÜR UMWELT,
NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT

Forschungsbericht 201 62 214/12
UBA-FB 000586

Umwelt-Survey 1998
Band VIII:

**PAK-Metabolite im Urin der Bevölkerung in Deutschland -
Belastungsquellen und -pfade**

von

Wolfgang Bernigau
Karl E. Lorber
Michael Wilken

unter Mitarbeit von

Frank Heidrich
Manfred Leiske

MWC - Michael Wilken Consulting
und
INDAST GmbH, Berlin

Zusammenfassung

Im Zeitraum von 1997 bis 1999 wurde in der Bundesrepublik Deutschland der 3. Umwelt-Survey (Umwelt-Survey 1998) durchgeführt. Wie seine Vorgänger (Umwelt-Survey 1985/86 und Umwelt-Survey 1990/92) ist der Umwelt-Survey 1998 eine umfassende Bevölkerungsstudie zur Ermittlung der Schadstoffbelastung der Allgemeinbevölkerung in Deutschland. Untersucht wurde eine repräsentative Querschnittsstichprobe der 18- bis 69-jährigen Wohnbevölkerung in der Bundesrepublik. Die Auswahl der untersuchten Querschnittsstichprobe erfolgte nach einem mehrfach geschichteten Auswahlverfahren, wobei die Merkmale Geschlecht, Lebensalter, Gemeindegröße und der Wohnort in den alten und neuen Ländern berücksichtigt wurde. Insgesamt nahmen 4822 Personen aus 120 Erhebungsorten an der Untersuchung teil.

Wie in den früheren Studien wurde eine Morgenurinprobe entnommen sowie mittels mehrerer Fragebögen eine Vielzahl an Informationen zu potenziellen Expositionsquellen und -bedingungen (Rauchen und Ernährungsgewohnheiten, Wohnsituation, Wohnungsumgebung) erfragt. Aus dem Gesamtkollektiv der Urinproben wurden 573 zufällig ausgewählte Proben für die Bestimmung der PAK-Metaboliten herangezogen.

Der vorliegende Berichtsband stellt die Ergebnisse statistischer (multivariater) Zusammenhangsanalysen dar, deren Ziel es ist, Einflussfaktoren der korporalen Belastung mit PAK-Metaboliten zu erfassen und deren Wirkung zu quantifizieren. Die dargestellten Ergebnisse beruhen auf multiplen linearen Regressionsanalysen, bei denen die Zielvariable die logarithmierten PAK-Metabolitkonzentrationen im Urin sind. Diese Regressionsanalysen wurden sowohl für alle Probanden des Umwelt-Survey 1998 gerechnet, bei denen Meßwerte der PAK-Metabolitkonzentrationen im Urin (N=573) vorlagen, als auch separat für die Teilstichprobe der Nichtraucher (N=389) erstellt. Mittels multipler Regressionsanalysen wurden die Effekte von Einflussfaktoren (Prädiktoren) sowohl auf die volumenbezogenen als auch auf die creatininbezogenen Gehalte an 1-Hydroxypyren, 1-Hydroxyphenanthren, 2/9-Hydroxyphenanthren, 3-Hydroxyphenanthren und $\Sigma(1-,2/9-,3-)$ Hydroxyphenanthren im Morgenurin geschätzt.

In allen Regressionsmodellen, in denen die volumenbezogenen Gehalte der PAK-Metaboliten die Kriteriumsvariable waren, dominiert der Prädiktor Creatiningehalt im Urin, der ein Maß für die Verdünnung des Urins ist. Dadurch ist die Varianzaufklärung in den Modellen für die creatininbezogenen Metaboliten-Gehalte generell niedriger als für die volumenbezogenen.

Mit 4 Prädiktoren konnten 55,7 % der Varianz der volumenbezogenen 1-Hydroxypyren-Gehalte im Urin der Probanden erklärt werden. Für die $\Sigma(1-,2/9-,3-)$ Hydroxyphenanthren-Gehalte wurde eine Varianzaufklärung von 48,8 % mit 5 Prädiktoren erreicht. Vergleicht man die Regressionsmodelle für die einzelnen Hydroxyphenanthrene, so weist das Modell für die volumenbezogenen 3-Hydroxyphenanthren-Gehalte mit 53,4 % die höchste Varianzaufklärungsrate auf, während für die 1-Hydroxyphenanthren-Gehalte 40,5 % und für die 2/9-Hydroxyphenanthren-Gehalte 38,5 % erreicht wurden.

Herausragender Prädiktor für die Konzentration der PAK-Metaboliten im Harn der Probanden ist das Rauchen. Außer beim 2/9-Hydroxyphenanthren hat das Rauchen den größten Einfluss. Die Konzentration aller Metaboliten im Harn ist dabei abhängig von der Zahl der pro Tag gerauchten Zigaretten.

Als weiterer Prädiktor konnte für alle Phenanthren-Metaboliten sowohl für das Gesamtkollektiv als auch für das Teilkollektiv der Nichtraucher der Alkoholkonsum ermittelt werden. Bei erhöhtem Alkoholkonsum treten erhöhte Phenanthren-Metabolitenkonzentrationen auf. Eine Abhängigkeit der 1-Hydroxypyren-Konzentration vom Alkoholkonsum konnte hingegen jedoch nicht konstatiert werden.

Das Heizungssystem und der Wohnort (alte/neue Bundesländer) stehen in Zusammenhang mit den Gehalten der PAK-Metaboliten im Urin. Der Einfluss dieser Faktoren wird sowohl durch Ergebnisse der Regressionsberechnungen für das Gesamtkollektiv als auch für das Teilkollektiv der Nichtraucher belegt. Bei Probanden, deren Wohnung nicht zentral, sondern dezentral beheizt wird, lassen sich sowohl signifikant höhere 1-Hydroxypyren- als auch Hydroxyphenanthren-Gehalte im Urin feststellen, als bei jenen, die in zentral beheizten Wohnanlagen leben. Bei Probanden mit Wohnsitz in den neuen Bundesländern ist ein im Vergleich zu Probanden mit Wohnsitz in den alten Bundesländern signifikant höherer Gehalt an 1-Hydroxypyren und Hydroxyphenanthrenen im Urin zu erwarten.

Die separate Auswertung für die Teilstichprobe der Nichtraucher ergab bis auf den Body Mass Index (BMI) keine zusätzlichen Erkenntnisse gegenüber der Gesamtstichprobe.

Der Body Mass Index (BMI) konnte nur im Modell für die 2/9-Hydroxyphenanthren-Gehalte im Urin in der Teilstichprobe der Nichtraucher als Prädiktor ermittelt werden. Mit steigendem BMI

kann eine Zunahme der 2/9-Hydroxyphenanthren-Konzentration im Urin konstatiert werden. Für das 1-Hydroxyphenanthren und $\Sigma(1-,2/9-,3-)$ -Hydroxyphenanthren im Teil- und Gesamtkollektiv deutete sich ein schwacher positiver Einfluss des Body Mass Index bei den Berechnungen der Regressionsmodelle an, der jedoch nicht stabil ist.

Neben diesen starken Prädiktoren konnten eine Reihe von Prädiktoren mit schwachen Effekten ermittelt werden. Dazu zählen im Modell für das 1-Hydroxypyren in der Nichtraucher-Teilstichprobe das Passivrauchen und für die Hydroxyphenanthren-Gehalte im Urin das Geschlecht, das Lebensalter des Probanden, der Konsum von Kaffee, das Wohnen in städtischen gegenüber ländlichen Wohngebieten, die Entfernung der Wohnung zu Metall verarbeitenden Betrieben, die Verwendung von Holzschutzmitteln sowie die Tätigkeit als Kraftfahrer.

Die in der Literatur vielfach aufgeführten Zusammenhänge mit dem Straßenverkehr, dem Verzehr von gegrillten und geräucherten Speisen sowie sonstiger beruflicher Exposition konnten hier nicht gefunden werden. Das könnte darauf zurückgeführt werden, dass die in dieser sehr breit angelegten Studie zur Verfügung stehenden Informationen nicht spezifisch genug bzw. der Anteil Exponierter in der Stichprobe zu gering waren.

Summary

From 1997 through 1999, the 3rd German Environmental Survey (GerES III) was conducted in the Federal Republic of Germany. Like its predecessors (Environmental Survey 1985/86 and Environmental Survey 1990/92), the German Environmental Survey 1998 (GerES III) is a comprehensive population study to determine the exposure of the population to contaminants in Germany. The basis was a representative sample of adults (18 to 69 years of age) of the general population. A stratified random sampling-procedure was used to select the cross-sectional population sample, considering the parameters gender, age, community size and place of residence (West- or East-Germany). A total of 4822 subjects from 120 locations participated in GerES III.

Like in the previous surveys, samples of urine (morning urine) were used, and information about potential sources and conditions of exposure were collected by questionnaire-based interviews (smoking and eating habits, living situation, residential environment). 573 randomly chosen urine samples out of all samples were taken for the determination of the PAH-metabolites.

The present report describes the results of multivariate statistical analyses carried out in order to determine the main factors influencing the levels of metabolite concentration of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in urine and to quantify their effects. The results are based on multiple linear regression analyses, with the criterion variable being the logarithm of the PAH-metabolites concentration in urine. These regression analyses were calculated for all subjects of the Survey 1998, whose measured values of the PAH-metabolite concentrations in urine (N=573) were available as well as separately for the non-smokers (N=389). The impact of influencing factors (predictors) on the volume related values as well as on the creatinine related values of 1-hydroxypyrene, 1-hydroxyphenanthrene, 2/9-hydroxyphenanthrene, 3-hydroxyphenanthrene and $\Sigma(1-,2/9-,3-)$ hydroxyphenanthrene in urine was estimated with multiple regression analyses.

In all regression models, in which the volume-related concentrations of the PAH-metabolites were used as criterion variables, the predictor creatinine content in urine, which is a common parameter for the dilution of the urine, was most dominant.

Therefore the proportion of variance explained by the models is in general lower for the creatinine related than for the volume related metabolite contents.

With 4 predictors, 55,7 % of the variance of the volume related 1-hydroxypyrene values in the urine could be explained. For the $\Sigma(1-,2/9-,3-)$ hydroxyphenanthrene values, an explanation of 48,8 % of the variance could be obtained with 5 predictors.

A comparison of the regression models for the hydroxyphenanthrenes shows that the model for the volume related 3-hydroxyphenanthrenes has the highest rate of explained variance with 53,4 %, while for 1-hydroxyphenanthrene 40,5 % and for 2/9-hydroxyphenanthrene 38,5 % could be achieved.

Predominant predictor for the concentration of the PAH-metabolites in the urine of the subjects is smoking. Except for 2/9-hydroxyphenanthrene, smoking has the greatest effect. The concentration of all metabolites in urine actually depends on the number of cigarettes smoked per day.

Another predictor that was determined for all phenanthrene metabolites was the consumption of alcohol, for the total sample as well as for the sub-sample of non-smokers. With an increase in drinking of alcohol, increasing concentrations of phenanthrene metabolites can be found. However, it could not be shown that the 1-hydroxypyrene concentrations depend on the consumption of alcohol.

Heating systems and place of living (East/West-Germany) are related to the concentrations of PAH-metabolites in urine. The influence of these factors is confirmed by the results of the regression analyses for the total sample as well as for the sub-sample of non-smokers. Subjects, who live in homes with decentral heating systems, show significantly higher 1-hydroxypyrene as well as hydroxyphenanthrene concentrations in urine compared to those living in homes with central heating. Furthermore subjects living in East-Germany have significantly higher concentrations of 1-hydroxypyrene and hydroxyphenanthrene in urine compared to those living in West-Germany.

The separate evaluation for the sub sample of the non-smokers resulted in no additional findings compared with the total sample, except for the body mass index (BMI).

The body mass index (BMI) could be determined as predictor only in the model for the 2/9-hydroxyphenanthrene concentration in urine in the sub-sample of the non-smokers. With increasing BMI, an increase in the 2/9-hydroxyphenanthrene concentration in urine was observed. The calculations of the regression models indicate a slightly positive but not very stable influence of

the body mass index on the 1-hydroxyphenanthrene and $\Sigma(1-,2/9-,3-)$ hydroxyphenanthrene for the total and the sub-sample.

Besides these predictors, a lot of predictors with less strong or stable effects were determined. Among them are passive smoking in the model for 1-hydroxypyrene in the sub sample of the non-smokers and gender, age of the subject, consumption of coffee, living in urban versus rural areas, distance of home from metal processing factories, use of timber preservatives and occupation as driver in the models for the hydroxyphenanthrene concentrations in urine.

The relations with traffic, consumption of grilled and smoked food and other occupational exposure reported by several other studies could not be found here. This could be due to the fact that the available information was not specific enough or that the number of exposed people in the sample was too small.