

**Länderuntersuchungsprogramm III
(LUPE III)**

**Gesundheitliche Bedeutung von Phthalaten in Kindertagesstätten
ein integrativer Ansatz zur Risikoabschätzung**



**Landesamt für Natur, Umwelt
und Verbraucherschutz NRW**



LAGeSo 

**Landeslabor Berlin-Brandenburg
Landesamt für Gesundheit und Soziales
Berlin**



**Bayerisches Landesamt für
Gesundheit und Lebensmittelsicherheit**

**H. Fromme¹, L. Fembacher¹, R. Schuster¹, S. Dietrich¹, M. Kiranoglu¹,
N. Meyer¹, M. Kohlhuber, W. Völkel¹**

T. Lahrz², R. Burghardt², P. Pfeiler²

**M. Kraft³, S. Sievering³, J. Braukmann³, M. Buss³, U. van Houten³,
S. Lorusso³, H. Haarmann³, C. Brinkmann³**

D. Kadler⁴

¹ Bayerisches Landesamt für Gesundheit und Lebensmittelsicherheit,
Sachgebiet Chemikaliensicherheit und Toxikologie
Pfarrstraße 3, 80538 München

² Landeslabor Berlin-Brandenburg
Abt IV - FB4 Umweltbezogener Gesundheitsschutz,
Landesmessstelle für Gefahrstoffrecht und Innenraumhygiene
Invalidenstraße 60, 10557 Berlin

³ Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz NRW
Fachbereich Umweltmedizin, Toxikologie, Epidemiologie
Leibnizstraße 10, 45659 Recklinghausen

⁴ Landesamt für Gesundheit und Soziales Berlin
Abteilung Gesundheit –Umweltbezogener Gesundheitsschutz –
Turmstraße 21, 10559 Berlin

Oktober 2012

Hintergrund

Aus Voruntersuchungen des BUND von Hausstaub aus Kindertagesstätten wurde geschlossen, dass rechnerisch die aus toxikologischer Sicht duldbare tägliche Aufnahme in Kitas überschritten werden könnte. Vor diesem Hintergrund wurde in den Länder Bayern, Berlin und Nordrhein-Westfalen ein gemeinsames Projekt im Rahmen der Länderuntersuchungsprogramme (LUPE) geplant und durchgeführt.

Ziel / Feldarbeiten

Zur validen Abschätzung möglicher Risiken sollte die aktuelle Expositionssituation von Kindern in Kindertagesstätten gegenüber Phthalaten, einer gesundheitlich bedenklichen Gruppe von Weichmachern, erhoben und im Vergleich mit den Kenntnissen zu gesundheitlichen Wirkungen beurteilt werden.

In der Zeit vom 28.11.2011 bis zum 3.5.2012 wurden in insgesamt 63 Kindertagesstätten Proben genommen. An einem Kita-Tag wurden dabei die in der Raumluft befindlichen Phthalate auf einem System für die personenbezogene Gas- und E-Staub-(einatembar) Probenahme gesammelt, die Feinstaubgehalte (PM₁₀ und PM_{2,5}) direkt gemessen und verschiedene Raumklimaparameter (Temperatur, relative Feuchte, Kohlendioxid) bestimmt. Außerdem wurde am Ende des Kita-Tages der Bodestaub des Gruppenraumes in dem sich die Kinder aufhielten mit einem speziellen Filteraufsatz abgesaugt. Darüber hinaus wurde bei insgesamt 663 Kindern im Alter von 20-80 Monaten am Abend nach dem Kita-Tag von den Eltern eine Urinprobe der Kinder gesammelt. Um im Hinblick auf die innere Belastung der Kinder die Einflüsse aus dem häuslichen Umfeld deutlich von denen in der Kindertagesstätte abzugrenzen, wurden Eltern von Kindertagesstätten die montags beprobt wurden, gebeten, zusätzlich den Morgenurin ihrer Kinder aufzufangen.

Untersuchungsparameter / Analytik

Zur Charakterisierung der allgemeinen Raumluftbedingungen wurden folgende Parameter untersucht: Kohlendioxid (CO₂), Temperatur, relative Feuchte und Feinstaub.

In der Innenraumluft der Kindertagesstätten wurden folgende Untersuchungsparameter berücksichtigt: Dimethylphthalat (DMP), Diethylphthalat (DEP), Di-n-butylphthalat (DnBP), Di-iso-butylphthalat (DiBP), Di-n-pentylphthalat (DnPP), Butylbenzylphthalat (BBzP), Di(2-ethylhexyl)phthalat (DEHP), Dicyclohexylphthalat (DcHP), Di-iso-nonylphthalat (DiNP) und Di-iso-decylphthalat (DiDP).

Im Hausstaub der Kindertagesstätten wurden folgende Untersuchungsparameter berücksichtigt:

Dimethylphthalat (DMP), Diethylphthalat (DEP), Di-n-propylphthalat (DnPrP), Di-n-butylphthalat (DnBP), Di-iso-butylphthalat (DiBP), Di-n-pentylphthalat (DnPP), Butylbenzylphthalat (BBzP), Di(2-ethylhexyl)phthalat (DEHP), Dicyclohexylphthalat (DcHP), Di-isononylphthalat (DiNP), Di-iso-decylphthalat (DiDP), Diphenylphthalat (DPhP) und Di-n-octylphthalat (DnOP).

Die in der folgenden Tabelle aufgeführten Metabolite der Phthalatdiester wurden im Urin der Kinder analysiert.

Ausgangssubstanz	Kurzname	Metabolit	Kurzname
Diethylphthalat	DEP	Mono-ethylphthalat	MEP
Di-n-butylphthalat	DnBP	Mono-n-butylphthalat	MnBP
Di-isobutylphthalat	DiBP	Mono-isobutylphthalat	MiBP
Di-n-pentylphthalat	DnPP	Mono-(4-hydroxypentyl)phthalate	MHPP
Di-isopentylphthalat	DiPP	Mono-isopentylphthalat	MiPP
Benzylbutylphthalat	BBzP	Mono-benzylphthalat	MBzP
Di-2-ethylhexylphthalat	DEHP	Mono-(2-ethyl-5-oxohexyl)phthalat Mono-(2-ethyl-5-hydroxyhexyl)phthalat	5oxo-MEHP 5OH-MEHP
Di-n-octylphthalat	DnOP	Mono-n-octylphthalat	MnOP
Di-isononylphthalat	DiNP	Mono-4-methyl-7-oxo-octylphthalat	7oxo-MiNP
Di-isodecylphthalat	DiDP	6OH-Mono-propylheptylphthalat	OH-MiDP

Die Phthalate in den Luft- und Hausstaubproben wurden mittels gaschromatographischer Verfahren (GC/MS) und die Ausscheidungsprodukte der Phthalate (Metabolite) im Urin mittels LC-MS/MS bestimmt.

Ergebnisse

In den Kindertagesstätten bewegten sich die Tagesmediane der Kohlendioxidgehalte zwischen 670 ppm und 3958 ppm, die optisch ermittelten PM₁₀-Gehalte zwischen 48 und 368 µg/m³ und die PM_{2,5}-Konzentrationen zwischen 7 bis 60 µg/m³.

Raumluftuntersuchungen

DMP, DEP, DnBP, DiBP und DEHP konnten in 95 % bis 98 %, DiNP in 92 %, DiDP in 38 %, BBzP in 10 % und DcHP in 3 % der Proben oberhalb der Nachweisgrenze gefunden werden. DnPP ließ sich in keiner Probe quantifizieren. Unter Berücksichtigung aller Kitas lagen die medianen Gehalte bei 0,47 µg/m³ (DiBP), 0,23 µg/m³ (DnBP), 0,19 µg/m³ (DEHP), 0,18 µg/m³ (DEP), 0,10 µg/m³ (DiNP) und 0,08 µg/m³ (DMP). Kein signifikanter Unterschied bestand zwischen Einrichtungen mit einem PVC-Fußbodenbelag und Räumen ohne diesen Bodenbelag.

Wenn nur Ergebnisse oberhalb der Bestimmungsgrenze berücksichtigt werden, ergeben sich zwischen den Gehalten in der Raumluft und im Hausstaub statistisch signifikante Korrelationen für das DMP (r: 0,759; p< 0,001), DiDP (r: 0,618; p= 0,001), DEHP (r: 0,590; p< 0,001), DiBP (r: 0,581; p= 0,009) und DnBP (r: 0,536; p< 0,001). Kein Zusammenhang ergab sich für DEP und DiNP. Für alle anderen Phthalate liegen zu wenig quantifizierbare Ergebnisse in der Raumluft vor.

Hausstaubuntersuchungen

DiBP, DEHP und DiNP konnten in 100 %, DiDP in 98 % und DnBP in 97 % aller Hausstaubproben nachgewiesen werden. BBzP konnte nur in 78 % der Proben oberhalb der Nachweisgrenze gefunden werden. Die medianen Gehalte lagen bei 888 mg/kg (DEHP), 302 mg/kg (DiNP), 34 mg/kg (DiDP), 21 mg/kg (DnBP), 20 mg/kg (DiBP) und 6 mg/kg (BBzP). Insbesondere für das DEHP und DiNP wurden Maximalgehalte von 10086 mg/kg bzw. 7091 mg/kg beobachtet. Kein signifikanter Unterschied bestand zwischen Einrichtungen mit einem PVC-Fußbodenbelag und Räumen ohne diesen Bodenbelag.

Untersuchung der Urinproben nach dem Aufenthalt in der Kindertagesstätte

Die Metabolite MnBP, MiBP, 5OH-MEHP, 5oxo-MEHP konnten in 100 %, 7oxo-MiNP in 98 %, MBzP in 82 %, MEP in 67 % und OH-MiDP in 30 % aller Urinproben nachgewiesen werden. Demgegenüber wurden MnOP und MiPP nur in 6 bzw. 2 Proben oberhalb der Nachweisgrenze gefunden, der sekundäre Metabolit (MHPP) des DnPP in keiner Probe. Die höchsten medianen Gehalte ergaben sich für MiBP (44,7 µg/l), MnBP (32,4 µg/l) und die beiden sekundären Metabolite des DEHP mit 16,5 µg/l (5OH-MEHP) und 17,9 µg/l (5oxo-MEHP). Insgesamt zeigen einige Metabolitenkonzentrationen eine erhebliche Schwankungsbreite. Der Fußbodenbelag in den Einrichtungen (PVC, Teppich, Holz) hatte keinen Einfluss auf die Höhe der im Urin ausgeschiedenen Metabolitenkonzentrationen.

Urinuntersuchungen vor und nach dem Kindertagesstättenaufenthalt

Für insgesamt 150 Kinder lagen sowohl Urinproben am Montagmorgen des Untersuchungstages als auch am Abend nach dem Kita-Aufenthalt vor. Die medianen Konzentrationen fast

aller Metabolite in den Morgenurinproben lagen höher als in denen nach dem Kitatag. Für MEP waren die medianen Gehalte um den Faktor 1,7 höher, für MnBP um 1,6, für MiBP um 1,5, für MBzP um 1,5, für 5OH-MEHP um 1,2, für 5oxo-MEHP um 1,3 und für 7oxo-MiNP um 0,9.

Vergleich der 10 am höchsten und am geringsten belasteten Einrichtungen

Für die Phthalate DEHP, DiBP, DnBP, BBzP und DiNP wurden jeweils getrennt die zehn im Hausstaub am höchsten belasteten Einrichtungen mit den zehn am geringsten belasteten verglichen. Es ergibt sich für DnBP und BBzP und geringer auch für das DEHP ein statistisch signifikanter Unterschied in der Höhe der Metaboliten-Ausscheidung zwischen diesen beiden Untergruppen mit einer höheren Belastung in der Gruppe der Kinder aus höher belasteten Kitas. Dieser Vergleich legt den Schluss nahe, dass der Aufenthalt in den höher belasteten Kitas (bezogen auf den Hausstaub) mit einer höheren internen Belastung der Kinder im Vergleich zu denen in geringer belasteten Kitas verbunden ist. Hierbei ist allerdings zu berücksichtigen, dass bei den Kindern aus höher belasteten Kitas – wie auch bei den Kindern aus weniger stark belasteten Kitas - schon ihre Morgenurine deutlich höhere Metabolitenkonzentrationen aufweisen als die Urinproben, die nach dem Aufenthalt gewonnen wurden. Vor diesem Hintergrund lässt sich kein kausaler Zusammenhang belegen, dass der Aufenthalt in der Kita mit einer Zusatzbelastung verbunden ist, die einen messbaren und relevanten Beitrag zur bestehenden Grundbelastung aus anderen Quellen liefert.

Vergleich der Urinuntersuchungen mit bestehenden Referenzwerten

Ein Vergleich unserer Ergebnisse der Belastungen der Abendurine ist mit dem Kinder-Umwelt-Survey (KUS), bei dem es sich um eine repräsentative Querschnittsstichprobe aus den Jahren 2003 bis 2006 von 599 Kindern in Deutschland im Alter von 3 bis 14 Jahren handelt, möglich. Bezogen auf die aus dieser Untersuchung abgeleiteten Vergleichswerte (95. Perzentil) für die Altersgruppe der 3-5 Jahre alten Kinder findet sich in unserer Studie eine um 51 bis 70 % niedrigere Ausscheidung der DEHP-, DnBP- und DiBP-Metabolite im Urin. Für DiNP liegt der Rückgang nur bei 5 %. Lediglich für das MBzP wurde in unserer Studie ein um 9 % höheres 95. Perzentil als im Umwelt-Survey beobachtet.

Vergleich der errechneten täglichen Zufuhr mit duldbaren Aufnahmewerten

Die tägliche Gesamt-Zufuhr kann aus den Daten des Human-Bionitorings zurückgerechnet und mit den zurzeit vorliegenden duldbaren Aufnahmemengen, sogenannte TDI-Werte (tolerable daily intake), verglichen werden. Der TDI-Wert beschreibt die Menge einer Substanz, die täglich lebenslang zu sich genommen werden kann, ohne dass nach derzeitigem Kenntnisstand negative gesundheitliche Wirkungen befürchtet werden müssen.

Für die Gruppe der 633 Kindern lag die Auslastung des jeweiligen TDI-Wertes unter Betrachtung des Medians und des 95. Perzentils bei 8,5 % bzw. 31 % für DEHP, 15 % bzw. 58 % für DnBP, 21 % bzw. 72 % für DiBP und 2 % bzw. 3 % für DiNP. Von den insgesamt 663 untersuchten Urinproben der Kinder überschreiten beim DiBP 18 Proben, beim DiNP 4 Proben und beim DEHP und DNBP jeweils 1 Probe den TDI-Wert.

Schlussfolgerungen

In den Kindertagesstätten wurde ein mit der BUND-Studie vergleichbares Belastungsniveau der Phthalate im Hausstaub ermittelt. Im Vergleich zu repräsentativen Voruntersuchungen in Deutschland ergaben sich deutlich niedrigere Gehalte der mit den Abendurinen der Kinder ausgeschiedenen Metaboliten. Lediglich bei DiNP und BBzP blieb die Belastungssituation gleich oder stieg leicht an. Insgesamt wurde bei den 663 untersuchten Kindern nur in wenigen Fällen die duldbare täglich Aufnahmemenge überschritten.

Ein Vergleich der Metabolitenkonzentrationen in den Morgenurinproben und den nach dem Aufenthalt in der Kindertagesstätte erhobenen Befunden ergibt keinen Hinweis, dass die Hausstaubbelastung in der Einrichtung eine wesentliche Zusatzbelastung darstellt. Die vorgelegte Untersuchung bestätigt Einschätzungen, dass sich die Ergebnisse von Hausstaubuntersuchungen nicht unmittelbar zur Abschätzung der Aufnahme von Schadstoffen und damit von gesundheitlichen Risiken eignen. Vor diesem Hintergrund wären Untersuchungen erforderlich, die einerseits die Menge der täglichen Staubaufnahme besser abschätzen und andererseits die Resorptionsverfügbarkeit nach oraler Aufnahme prüfen.