

## Inhalative Exposition des Verbrauchers gegenüber Formaldehyd

Aktualisiertes Diskussionspapier\* des BfR vom 30. April 2005

In seiner Neubewertung von Formaldehyd kommt das BfR zu dem Schluss, dass die Substanz beim Menschen Tumoren des Nasen-Rachenraums auslösen kann, wenn sie über die Atemluft aufgenommen wird. Die Wirkung ist konzentrationsabhängig und kommt oberhalb eines als sicher angesehenen Wertes zum Tragen. Als „Safe Level“ wurde eine Konzentration von 0.1 parts per million (das entspricht 124 Mikrogramm pro Kubikmeter) Formaldehyd in der Luft abgeleitet.

Um abzuschätzen, wie hoch die inhalative Exposition von Verbrauchern gegenüber Formaldehyd tatsächlich ist, müssen die vielfältigen Quellen berücksichtigt werden. Das BfR hat die verfügbaren Daten und Informationen zusammengetragen und eine quantitative Vergleichsschätzung vorgenommen. Der Expositionsschätzung wurden neben Daten zur Emission von Formaldehyd aus verschiedenen Werkstoffen und Produkten auch Annahmen von Gehalten in Produkten zugrunde gelegt, die beim Ausschöpfen gesetzlicher Regelungen möglich sind.

Von besonderer Bedeutung für die vorliegende Expositionsschätzung sind Messungen von Raumluftkonzentrationen, die in verschiedenen Untersuchungen im Zeitraum 1985 bis 2004 gewonnen wurden. Die Messergebnisse bilden die Grundlage für die Bewertung. Allerdings liefern sie keine Informationen über die Quellen. Dafür ist eine möglichst differenzierte, quantitative Betrachtung der verschiedenen Expositionsszenarien erforderlich.

Eine Auswertung verschiedener Studien, in denen Raumluftmessungen durchgeführt wurden, hat ergeben, dass in 95 Prozent der deutschen Haushalte offenbar ein Wert von 147 Mikrogramm/m<sup>3</sup> (µg/m<sup>3</sup>) nicht überschritten wird. Als bedeutsame Quellen für eine Belastung der Raumluft wurden neben den bekannten Emissionen aus Pressspanplatten weitere Baustoffe identifiziert wie zum Beispiel Schimmelschutzfarben. Auch eine Reihe von Produkten (z.B. Reiniger und Nagelhärter) gibt in geringen Mengen Formaldehyd ab. Bedeutsam für eine dauerhaft hohe Konzentration in der Raumluft ist dabei eine stetige Emission in größeren Mengen. Daher können alle Quellen/Produkte vernachlässigt werden, die nur selten bzw. kurz angewendet werden.

Neue Ergebnisse deuten auf eine Abnahme der Formaldehydkonzentration in der Innenraumluft hin.

### 1 Einleitung

Die inhalative Exposition des Verbrauchers wurde auf der Basis folgender Analysen und Schätzungen betrachtet:

1. Analyse möglicher Quellen im Verbraucherbereich auf Grund von Emissionsmessungen,
2. Schätzung der Konzentrationen in der Raumluft (externe inhalative Exposition) mit Hilfe von Modellen,
3. Messwerte der Innenraumkonzentration von Formaldehyd im Wohnbereich.

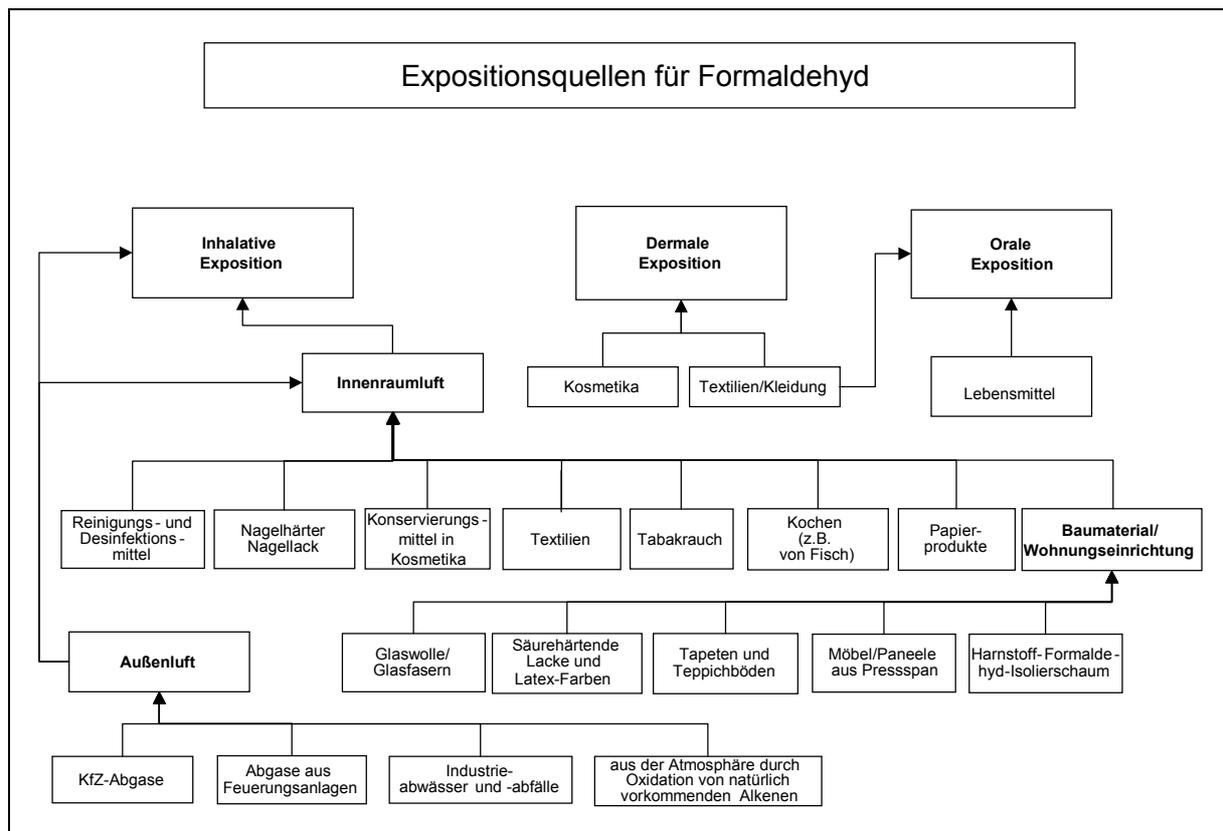
## 2 Quellen der Formaldehydfreisetzung

Wie in Abbildung 1 dargestellt, kann Formaldehyd aus den verschiedensten Quellen freigesetzt werden. Im weiteren Verlauf dieser Betrachtung wird analysiert, welche von diesen Quellen als bedeutsam und welche als weniger bedeutsam einzuschätzen sind.

Eine wichtige Quelle der Formaldehydfreisetzung stellen Holz-Werkstoffe dar. Gemeint sind Holzspanplatten, in denen als ein wesentlicher Bestandteil Formaldehydharze enthalten sind. Aus diesen Spanplatten wird in Abhängigkeit von der Luftfeuchtigkeit und der Temperatur Formaldehyd freigesetzt. Darüber hinaus kann Formaldehyd als Bestandteil von Klebstoffen und in Papierprodukten vorkommen. In Reaktantharzen zur Knitterfrei- und Pflegeleichtausrüstung für Textilien kann Formaldehyd als Restmonomer enthalten sein ebenso im Binder für den Textildruck. Im Kosmetika-Bereich kann Formaldehyd als Konservierungsstoff eingesetzt werden. In Nagelhärtern stellt Formaldehyd einen essentiellen Bestandteil dar, da es durch die Vernetzung mit Proteinen zur Nagelhärtung führt. Daher wird in dieser Stellungnahme auf Nagelhärter Bezug genommen.

Das Rauchen und die damit verbundene Aufnahme von Formaldehyd tragen zur Gesamtbelastung bei, werden hier aber nicht im Einzelnen betrachtet.

Abbildung 1: Quellen der Emission und Exposition von Formaldehyd



## 3 Messergebnisse für die Emission von Formaldehyd aus Materialien und Produkten

Es liegen nur wenige Untersuchungen und Daten in der Literatur vor, aus denen eine vergleichende quantitative Schätzung der Emission und der daraus resultierenden Raumluft-

konzentrationen möglich ist. Kelly et al. [1] haben 1999 Ergebnisse zu Kammerversuchen mit 55 verschiedenen Materialien und Verbraucherprodukten veröffentlicht. Dabei wurde zwischen Trockenprodukten und Feuchtprodukten unterschieden. Die Größe der Testkammer betrug 1,43 m<sup>3</sup> und für die typische Emission wurden als Bedingungen eine Temperatur von 21,1°C und eine Luftfeuchtigkeit von 50 % gewählt. Alle Testresultate für Trockenprodukte sind steady-state-Emissionsraten nach 20-24 h in der Testkammer. Bei Feuchtprodukten wurde die initiale Emissionsrate und die Emissionsrate am Ende der Messung ermittelt.

Dieser Arbeit kommt aufgrund der sehr breit gestreuten untersuchten Formaldehydquellen und der einheitlichen Messmethodik eine Schlüsselrolle zu. Die Ergebnisse dieser Arbeit werden als Grundlage der Bewertung der Emission und der sich daraus ergebenden möglichen Raumluftkonzentration verwendet.

**Tabelle 1: Ergebnisse der Emissionsmessungen von Formaldehyd aus verschiedenen Materialien/Produkten und daraus geschätzte Raumluftkonzentrationen**

von Kelly et al. erhobene Daten		Annahmen zur Schätzung der Raumluftkonzentration		
Material	Emissionsrate	Raumvolumen	Fläche des emittierenden Materials	Geschätzte Raumluftkonzentration (mean event concentration)
	(µg/m <sup>2</sup> /h)	m <sup>3</sup>	m <sup>2</sup>	µg/m <sup>3</sup>
Pressspan auf Basis Harnstoff-Formaldehyd-Harz (nicht beschichtet)	1580 (max) 170 (mittl. Wert)	40	20	3900 432
Pressspan auf Basis Harnstoff-Formaldehyd-Harz (beschichtet)	460 (max) 16 (mittl. Wert)	40	20	1160 37
Knitterfreie Dekostoffe	215	20	30	1635
	215	40	20	545
Hemden	107 ungewaschen)	20	1	30
	42 (1x gewaschen)	20	1	15
Laminat	14	40	20	38
Glasfaserprodukte	32	40	20	61
Nicht beschichteter Pressspan auf Basis Phenol-Formaldehyd-Harz	8	40	20	23
Papierprodukte	0,6	40	20	1,5
Nagelhärter	178000*	20	0,002	1,2 (Non user)
Nagelhärter	178000*	5 **	0,002	4,9 (User)

\* Emissionsrate in der Initialphase

\*\* hier wird anstelle des Raumvolumens das „user personal volume“ – das den Anwender umgebene Volumen verwendet

Neben den Emissionsraten sind in Tabelle 1 die Ergebnisse der Raumluftkonzentrationen angegeben, die mit Hilfe des „Source and Ventilation“ Modells des Computerprogramms „CONSEXPO 3.0“, entwickelt vom holländischen Rijksinstituut voor Volksgezondheit en Milieu (RIVM), geschätzt wurden. Die Bildungsrate (generation rate), die für die Schätzung mit „Source and Ventilation“ erforderlich ist, wurde aus der Emissionsrate und der Freisetzungsfläche berechnet. Die in Tabelle 1 aufgeführten Freisetzungsflächen und Raumgrößen sind für die Schätzung getroffene Annahmen.

Die geschätzten Raumluftkonzentrationen auf der Basis der von Kelly et al. [1] mitgeteilten Emissionsraten machen deutlich, dass die höchsten Konzentrationen durch unbeschichtete Holzwerkstoffe mit Harnstoff-Formaldehydharzen verursacht werden, gefolgt von beschichteten Spanplatten und Glasfaserprodukten (siehe Tab. 1).

Für Tapeten haben Kelly et al. Emissionsraten von  $691 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$  für die Initialphase und für die Endphase von  $27 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$  ermittelt. Für Farben (Latex) erreichten die Werte in der Initialphase bis zu  $660 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$  und in der Endphase bis zu  $10 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$ . Besonders hohe Emissionsraten wurden für Fußbodenlacke (Grund- und Decklack) gemessen, die in der Initialphase bis zu  $1 \text{g}/\text{m}^2/\text{h}$  und in der Endphase bis zu  $11 \text{mg}/\text{m}^2/\text{h}$  erreichten. Diese Emissionsdaten sprechen für eine relativ kurz andauernde Emission und verursachen dementsprechend keine Dauerexposition.

Insgesamt trägt die Emission von Formaldehyd aus den oben aufgezeigten Innenraumquellen in unterschiedlichem Ausmaß zur Exposition des Verbrauchers bei. Einerseits gibt es Quellen aus denen substanzielle Mengen über lange Zeiträume von relativ großen Oberflächen emittieren, wie z.B. Holzwerkstoffe hergestellt mit Harnstoff-Formaldehyd-Kunstharzen, und damit dauerhaft eine erhöhte Formaldehyd-Konzentration in der Innenraumluft verursachen. Zum anderen gibt es Quellen, wie z.B. Haushaltsreiniger, Farben und Nagelhärter, die während der Anwendung vorübergehend zu erhöhten Formaldehydkonzentrationen führen können. Daher wird die Schätzung der Exposition

- einerseits auf der Basis von Anwendungsszenarien für ausgewählte Verbraucherprodukte vorgenommen,
- andererseits wird auf die gemessenen Raumluftkonzentrationen Bezug genommen.

In die Betrachtungen nicht einbezogen wird die Exposition über den dermalen und den oralen Pfad, da diese für die Beantwortung der Frage nach der Krebs auslösenden Konzentration von Formaldehyd durch Einatmen nicht relevant ist.

#### **4 Inhalative Exposition durch ausgewählte Quellen**

Wie bereits erwähnt, sind für den Verbraucher neben der ständigen chronischen Exposition durch die Innenraumluft Quellen von Bedeutung, die vorübergehend zu erhöhten Formaldehydkonzentrationen in der Innenraumluft führen können.

Beispielhaft wurden 3 Produkttypen, Schimmelschutzfarbe und Fußbodenreiniger sowie die inhalative Exposition durch Nagelhärter untersucht.

Für Reinigungs- und Pflegemittel sind Formaldehyd (bis zu 0,2 % zulässig, bei Konzentrationen  $> 0,1 \%$  besteht Kennzeichnungspflicht) und Formaldehyd freisetzende Stoffe als Konservierungsmittel zugelassen.

Nagelhärter dürfen (nach der Kosmetik-Verordnung, Anlage 2, Nr. 13) max. 5 % Formaldehyd enthalten. Als Warnhinweis muss auf der Etikettierung vermerkt werden „Die Nagelhaut ist mit einem Fettkörper zu schützen“.

Die Schätzung der Exposition für nachfolgende Szenarien wurde mit Hilfe des „CONSEX-PO“-Programms durchgeführt. Die für die Modellierung getroffenen Annahmen/Festlegungen sind „Worst-Case“-Annahmen, d.h. es wurde z.B. für Nagelhärter die höchste laut KVO zulässige Konzentration gewählt.

Die chemisch-physikalischen Daten (Molmasse, Dampfdruck in Abhängigkeit von der Konzentration im Produkt und die Wasserlöslichkeit), die für die Modellierung getroffenen Annahmen und die Ergebnisse sind in Tab. 2 dargestellt. Für das Szenario Fußbodenreinigung wurde davon ausgegangen, dass das verdünnte Produkt auf einer Fläche aufgetragen wird und von dort das Formaldehyd verdampft. Daher wurde als Expositionsszenario das „Painting“ Modell ausgewählt.

**Tabelle 2: Schätzergebnisse für die inhalative Exposition durch Formaldehyd bei Anwendung einer Farbe, eines Fußbodenreinigers und von Nagelhärter**

Quelle	Schimmelschutzfarbe	Fußbodenreiniger	Nagelhärter	Dimension
Szenario	Malern eines Raumes	Reinigung des Küchenfußbodens	Bestreichen der Finger- und Fußnägel	
<b>CONSEXPO-Szenario</b>	Painting	Painting	Painting	
Anwendungsort	Innenraum	Küche	Bad	
Häufigkeit der Anwendung	1	52	365	1/Jahr
Dauer des Kontaktes	24	3	0,5	Stunden
Dauer des Gebrauchs	8	0,5	0,33	Stunden
Raumvolumen	50	25	20	m <sup>3</sup>
Freisetzungsfläche	46,2 ***	10	0,002	m <sup>2</sup>
Produktmasse	5600 ***	200	0,5	g
Luftwechselrate	10	5	4	m <sup>3</sup> /h
Produktdichte	1	1	1	g/cm <sup>3</sup>
Gewichtsanteil	0,1	0,001*	5****	%
fraction of upper layer	10	95	95	%
layer exchange rate	0,4	1	1	1/min
Molgewichtsmatrix	200	50	18	g/mol
<b>Substanzdaten</b>				
Dampfdruck **	7 für 0,1 %			31 Pa
Wasserlöslichkeit	500 bei 20 °C			g/l
Molmasse	30,03			g/mol
<b>Mean-event-Konzentration für „Non user“</b>	<b>486</b>	<b>1,2</b>	<b>1,7</b>	<b>µg/m<sup>3</sup></b>
<b>Mean-event-Konzentration für „User“</b>	<b>525</b>	<b>1,3</b>	<b>6,8</b>	<b>µg/m<sup>3</sup></b>

\* 50 g Produkt mit 0,1 % werden 100-fach verdünnt und zum Wischen verwendet

\*\* Dampfdruck wurde wie in Anhang 1 dargestellt, berechnet.

\*\*\* die Werte wurden für ein Raumvolumen von 50 m<sup>3</sup>, Fläche von 46 m<sup>2</sup> (entspricht nur Wänden), durch das WPEM-Computer Programm (Wall paint exposure model) geschätzt

\*\*\*\* gerechnet wurde mit nur 2,5 %, da davon ausgegangen wird, dass die Hälfte mit dem Keratin der Nägel reagiert

**Diskussion:**

- Die mit CONSEXPO geschätzten Konzentrationen sind die mittleren Event-Konzentrationen für den „User“ und den „Non user“. Sie beziehen sich auf die Kontaktzeit und charakterisieren die akute Exposition.
- Die durch Malern verursachte Konzentration kann eine zeitlich begrenzte erhebliche Belastung darstellen, da sie weit über der zulässigen Konzentration von 0,1 ppm liegt. So wird unter anderem von Horn, Roßkamp und Ullrich [2] bestätigt, dass während der Malerarbeiten, bei denen Formaldehyd oder Formaldehyd-Depotstoffe eingesetzt werden, in einem anschließenden Zeitraum von etwa 1 bis 2 Wochen mit Formaldehydkonzentrationen in der Raumluft gerechnet werden muss, die zu Schleimhautreizungen besonders an den Augen führen können und in den Tagen nach Renovierungsarbeiten eine geeignete Lüftung zwingend notwendig ist, damit der Orientierungswert von 0,1 ppm schnellstmöglich wieder erreicht und unterschritten wird.
- Die Anwendung von Fußbodenreiniger führt bei einer „Mean event Konzentration“ für den „User“ von 1,3 µg/m<sup>3</sup> zu keiner signifikanten Erhöhung der Formaldehydkonzentration in der Innenraumluft und kann vernachlässigt werden.
- Auch der durch Anwendung von Nagelhärter mögliche kurzzeitig auftretende Konzentrationsanstieg für den „User“ von 6,8 µg/m<sup>3</sup> kann unter Berücksichtigung der Tatsache,

dass sofort eine Verteilung in der Raumluft erfolgt, als vernachlässigbar angesehen werden.

## 5 Formaldehydmessungen in der Innenraumluft

### 5.1 Einleitung

Im vorhergehenden Teil der Darstellung wurde die Exposition durch Formaldehyd aus verschiedenen für den Verbraucher relevanten Quellen betrachtet. Da es sich um unterschiedliche methodische Herangehensweisen handelt, ist die Vergleichbarkeit nicht gegeben und die Unsicherheiten bei der Schätzung der Emissionen aus den einzelnen Quellen können erheblich sein. Es ist daher sinnvoll, eine Betrachtung der inhalativen Gesamtexposition vorzunehmen.

Die Betrachtung der inhalativen Gesamtexposition kann durch die Aggregation verschiedener Modellierungen oder die Analyse von Messwerten in der Innenraumluft erfolgen. Der Vorteil von Messungen der Konzentrationen in der Innenraumluft liegt in der realistischeren Abschätzung der Gesamtexposition. Es kann davon ausgegangen werden, dass Messwerte in der Innenraumluft alle über längere Zeiträume relevanten Quellen widerspiegeln. Eine Modellierung der Konzentration aus bestimmten Quellen führt dagegen in der Regel zu einer deutlichen Überschätzung der tatsächlichen Exposition. Grund hierfür sind Worst-Case-Annahmen zu einer Reihe unzureichend bekannter Parameter der Modelle sowie die Kumulation vieler nicht zwingend gleichzeitig emittierender Quellen. Neben der Betrachtung der Innenraumluft müsste auch die Exposition über die Außenluft berücksichtigt werden. Da für die Außenluft mit einer niedrigeren Belastung zu rechnen ist als für den Innenraum, kann eine ganztägige Exposition über die Innenraumluft als Worst-Case-Annahme getroffen werden. Kurzzeitige Belastungen lassen sich jedoch nicht über Monitoring-Daten zur Raumluftkonzentration darstellen, hier muss eine getrennte Modellierung der Emission über die einzelnen Szenarien erfolgen.

Im Folgenden werden die Daten dargestellt, welche die Konzentration von Formaldehyd in der Innenraumluft beschreiben und in Hinblick auf ihre Aussagekraft diskutiert. Zudem werden mögliche Einflussgrößen auf die Innenraumluftkonzentration betrachtet.

### 5.2. Überblick vorhandener Studien

Untersuchungen zur Konzentration der Innenraumluft mit Formaldehyd in Deutschland sind im Anhang 2 dargestellt. Die Studientypen reichen von Querschnittsuntersuchungen (Umwelt-Survey), Messungen im Rahmen von Fall-Kontroll-Studien (Ullrich u.a.) bis zu Verdachtsstichproben (AGÖF, ARGUK). Mögliche Einflussgrößen auf die Konzentration in der Innenraumluft sind die Anzahl der Raucher im Haushalt, die Temperatur, Luftfeuchtigkeit und Belüftung, Größe und Art des Raumes und Art der Möbel. Im folgenden Abschnitt werden die Studien kurz dargestellt, die Verfügbarkeit dieser Informationen diskutiert und die Messwerte verglichen.

#### 5.2.1 Umweltsurvey

Der Umwelt-Survey ist eine repräsentative Erhebung von Daten zur Belastung deutscher Haushalte. Die Daten wurden in den Jahren 1985-86 erhoben und beinhalten somit nur Haushalte in den alten Bundesländern. Es liegen deskriptive statistische Angaben zu 329 Messwerten von Formaldehyd in der Innenraumluft vor. Die Probennahme erfolgte über einen Zeitraum von 48h, nach Möglichkeit im Wohnzimmer. Die Belüftung der bemessenen

Räume ist nicht standardisiert und unbekannt. Zur Ermittlung der Konzentrationen wurde das Pararosanilin-Verfahren mit einer Nachweisgrenze von  $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$  angewendet. Diese Nachweisgrenze ist im Vergleich zu anderen Untersuchungen (Bsp. ARGUK:  $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  Bestimmungsgrenze) sehr hoch, Angaben zur Bestimmungsgrenze wurden nicht gemacht. Alle Werte unterhalb der Nachweisgrenze wurden numerisch auf die halbe Nachweisgrenze ( $= 15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) gesetzt.

Zu den Konzentrationsangaben von Formaldehyd in der Innenraumluft liegen zahlreiche Informationen über die Haushalte vor, für die ebenfalls statistische Maßzahlen der Formaldehyd-Konzentrationen in den Untergruppen vorliegen. Angaben hinsichtlich der Werte unter der Nachweisgrenze und Bestimmungsgrenze in den Untergruppen fehlen.

Die Werte im Umwelt-Survey liegen im Bereich von  $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (halbe Nachweisgrenze) und  $309 \mu\text{g}/\text{m}^3$  mit einem Mittelwert von  $59 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

### 5.2.2 AGÖF

Die Arbeitsgemeinschaft ökologischer Forschungsinstitute e.V. (AGÖF) hat in den Jahren 1993 bis 1998 1050 Messungen von Formaldehyd in deutschen Haushalten vorgenommen. Darunter befinden sich 27 Messungen in KITAS und Wohnanhängern. Diese Messungen sind nicht repräsentativ erhoben, sondern stellen unzusammenhängende Verdachts- und Auftragsmessungen dar.

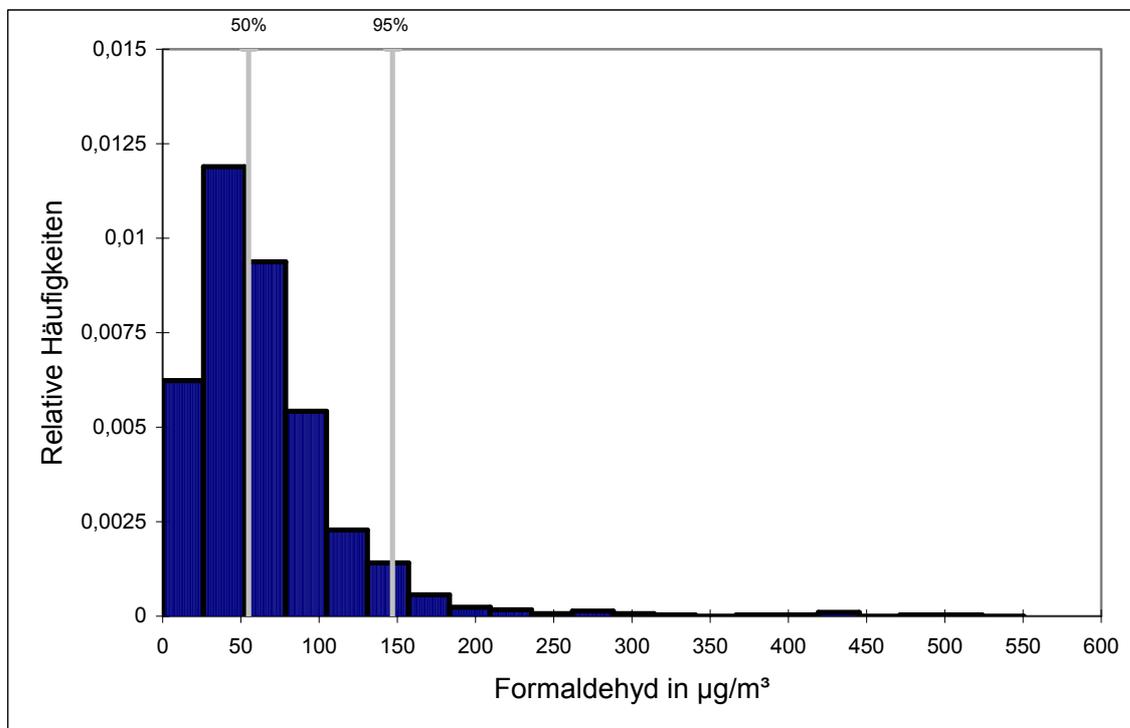
Die Messwerte liegen im Bereich von  $9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  bis  $2145 \mu\text{g}/\text{m}^3$  mit einem Mittelwert von  $74 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

### 5.2.3 ARGUK

Die im Umweltlabor ARGUK erhobenen Daten zur Formaldehyd-Konzentration in deutschen Haushalten sind ebenfalls Verdachtsstichproben aus den Jahren 1993-2004. Die Einzelmesswerte wurden dem BfR von ARGUK für Verteilungsanpassungen zur Verfügung gestellt. Nähere Angaben zu den Haushalten und Beprobungsbedingungen liegen nicht vor. Um den Einfluss unterschiedlicher Messverfahren auszuschließen, wurden nur die Werte in die Analyse einbezogen, die nach dem Pararosanilin-Verfahren gemessen wurden.

Es lässt sich anhand dieser Daten kein abnehmender Trend über die Jahre feststellen. Damit werden die Messwerte aus allen Jahren berücksichtigt. Diese liegen im Bereich von  $0 \mu\text{g}/\text{m}^3$  bis  $1003 \mu\text{g}/\text{m}^3$  mit einem Mittelwert von  $67 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Das Histogramm über die gemessenen Werte ist in Abb. 2 dargestellt.

**Abbildung 2: Messwerte aus Untersuchungen von ARGUK über die Formaldehyd-Konzentration in der Innenraumluft deutscher Haushalte der Jahre 1993-2004 (oberste Kategorie >550 mit Maximalwert 1003)**



#### 5.2.4 Universität Jena

Aus einer Untersuchung von Brasche u.a. an der Universität Jena „Der Einfluss von Formaldehyd in der Raumluft auf Asthma und atopische Symptome“ liegen 311 Messwerte aus den Jahren 1996-1998 vor. Diese unterteilen sich in eine Fall- und eine Kontrollgruppe. Die Messwerte beschränken sich auf Sachsen-Anhalt und bilden einen Wohnungsdurchschnitt (Wohnzimmer, Kinderschlafzimmer) ab. Die Proben wurden über einen Zeitraum von einer Woche gesammelt und nach dem DNPH-Verfahren analysiert.

Die Werte liegen nicht einzeln und ohne zusätzliche Angaben zu Untergruppen oder Einflussfaktoren vor. Der maximale Wert liegt bei 116 µg/m³ und der Median bei 19 µg/m³.

#### 5.2.5 Ullrich et al.

Über eine Fall-Kontroll-Studie über den Zusammenhang von Aldehyden in der Raumluft von Wohnung und Asthma und Allergien von Kindern berichten Ullrich et al. Die Studie wurde von 1997-1998 in Dresden und München durchgeführt. Dabei erfolgte eine Probensammlung über eine Woche, und die Analyse auf Formaldehyd wurde mit der DNPH-Methode vorgenommen. Die Konzentrationswerte beziehen sich dabei auf den vom Kind am meisten genutzten Wohnraum. Für die Formaldehyd-Konzentration des Gesamtkollektivs liegen 72 Messungen vor. Es wurde eine maximale Konzentration von 120 µg/m³ gemessen. Der Mittelwert lag bei 44 µg/m³. Angaben über die Differenzierung der 90. Perzentile nach Sommer-/ Wintermonats-Unterschieden (Sommer: 75 µg/m³, Winter: 62 µg/m³), den beiden Städten (Dresden: 75 µg/m³, München: 62 µg/m³) sowie dem Fall- und Kontrollkollektiv liegen vor. Daraus können jedoch aufgrund unzureichender Beschreibung der Auswahl der Haushalte in

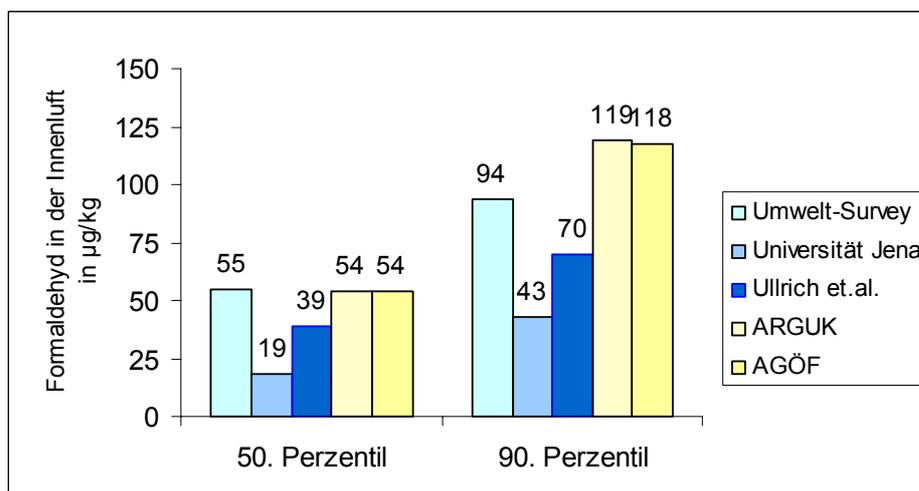
diesen Untergruppen und der geringen Stichprobenzahl keine weiteren Schlussfolgerungen abgeleitet werden.

### 5.2.6 Vergleich der Untersuchungen und Messergebnisse

Der Umwelt-Survey kann als einzige der beschriebenen Untersuchungen als repräsentativ für die deutschen Haushalte angesehen werden. Aufgrund des Alters der Daten, der damit verbundenen Einschränkung auf die alten Bundesländer sind diese nicht ausreichend zur Ableitung eines oberen Perzentils für die gesamte deutsche Bevölkerung. Durch die Verwendung der Messreihen aus Verdachtsstichproben erhält man eine Überschätzung der oberen Perzentile. Dies lässt sich in Abb. 3 erkennen, in der die 50. und 90. Perzentile aller 5 Untersuchungen gegenübergestellt sind. Die 50. Perzentile des Umwelt-Survey unterscheidet sich nicht von denen der Verdachtsstichproben. Dagegen zeigen sich deutliche Unterschiede an der 90. Perzentile.

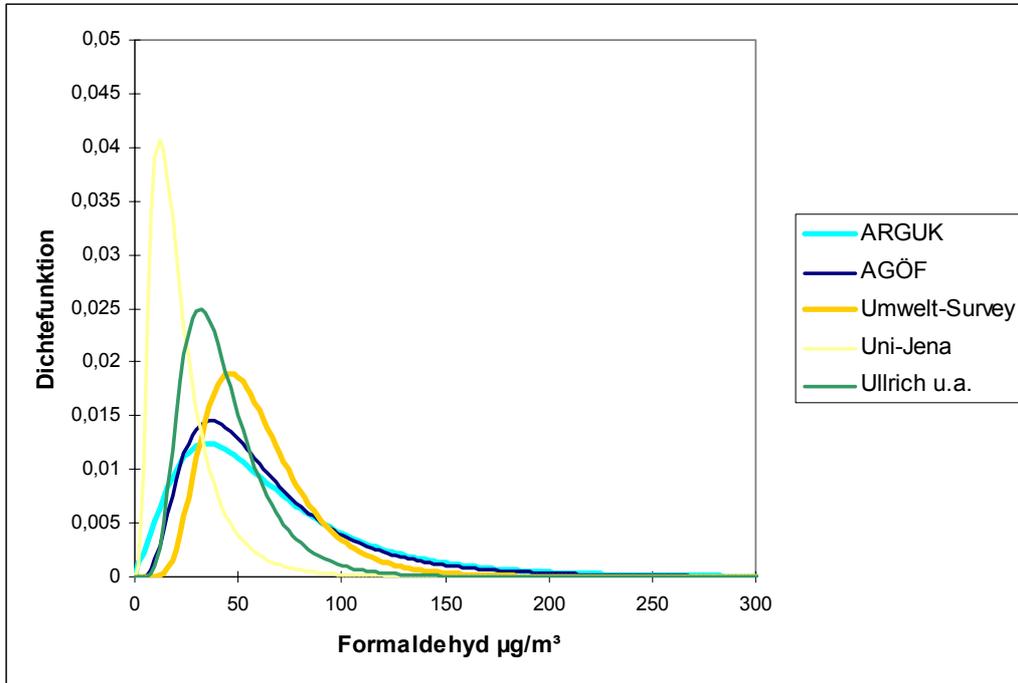
Neben dem Vergleich der berichteten Werte soll an diese Werte auch eine Verteilung angepasst werden. Damit erhält man die Möglichkeit, aus den berichteten statistischen Kennzahlen auf andere Bereiche der Verteilung zu extrapolieren. Für Schadstoff-Verteilungen wird zumeist eine Lognormal-Verteilung angenommen. Begründet ist dies in der typischen rechts-schiefen Form und der Annahme, dass viele Einflussfaktoren sich multiplikativ auf die Verteilungsform auswirken. Für die gegebenen Untersuchungen wurde deshalb aus den Perzentilen eine Lognormal-Verteilung geschätzt. Für die Verteilungsanpassung der Werte des Umweltlabors ARGUK wurden dem BfR die Einzelwerte zur Verfügung gestellt, die als Grundlage für die Anpassung verwendet wurden.

**Abbildung 3: Vergleich der Untersuchungen zur Formaldehyd-Konzentration in deutschen Haushalten anhand des Medians und des 90. Perzentils**



Die unterschiedlichen Verteilungen sind in der folgenden Abb. 4 dargestellt. Die beiden Verteilungskurven mit Verdachtsstichproben weisen beide die höchste Masse in den rechten Rändern der Verteilung auf. Die Verteilung des Umwelt-Surveys, die am ehesten als repräsentative Abschätzung bezeichnet werden kann, liegt im Mittel weiter rechts, aber in den Rändern unterhalb der Verdachtsstichproben. Alle anderen Verteilungen scheinen eher eine Unterschätzung der tatsächlichen Formaldehyd-Konzentrationen darzustellen.

Abbildung 4: Vergleich der Untersuchungen zur Formaldehyd-Konzentration anhand der abgeleiteten Verteilungen (Lognormal-Verteilung)



Aufgrund der oben dargestellten Verteilungen wird als Schätzwert für eine hohe Konzentration  $147 \mu\text{g}/\text{m}^3$  aus den ARGUK-Daten abgeleitet. Mit einer Unsicherheit darüber, dass dies nicht repräsentativ für die deutsche Bevölkerung ist, kann dennoch davon ausgegangen werden, dass mit einer hohen Wahrscheinlichkeit mindestens 95 % der Gesamtbevölkerung geringeren Konzentrationen in der Innenraumluft ausgesetzt sind. Die Werte des Umwelt-Surveys geben aufgrund der Stichprobenauswahl eine genauere Schätzung des 95. Perzentils der Gesamtbevölkerung wieder. Es kann jedoch nicht sicher ausgeschlossen werden, dass aufgrund der oben beschriebenen Aktualität und regionalen Einschränkungen eine Unterschätzung erfolgt. Für die Beschreibung der durchschnittlichen Exposition des Verbrauchers ergeben sich keine Unterschiede bei der 50. Perzentile des Umwelt-Surveys, der ARGUK-Daten und der AGÖF-Untersuchung, so dass der Median der ARGUK-Daten mit  $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$  als Schätzer für die durchschnittliche Exposition genutzt werden kann.

### 5.3 Diskussion von Einflussfaktoren anhand des Umwelt-Surveys

Obwohl der Umwelt-Survey aufgrund der Aktualität und damit der Regionalität (ausschließlich Westdeutschland) nicht als Basis zur Ableitung eines Worst-Case-Schätzers für Gesamtdeutschland genutzt werden kann, soll er herangezogen werden, um mögliche Einflussfaktoren auf die Formaldehyd-Belastung in der Innenraumluft zu untersuchen. Im Umwelt-Survey sind eine Reihe von Angaben zu möglichen Einflussgrößen in Bezug auf die Exposition enthalten. Für die Überprüfung der Einflussvariablen auf die Innenraum-Konzentration von Formaldehyd kann nicht auf die Einzelmessungen der Untersuchungen zurückgegriffen, sondern ausschließlich auf die publizierten deskriptiven Statistiken Bezug genommen werden. Das hat zur Folge, dass keine Zusammenhangsmaße zwischen unterschiedlichen Einflussgrößen ermittelt werden können (z.B. Heizungsart, Baujahr, Art des Hauses und Gemeindetyp), so dass eine abschließende Interpretation der Daten nicht möglich ist.

Den Daten des Umwelt-Surveys ist zu entnehmen, dass die Größe der Wohnfläche eine signifikante Rolle spielt. Wohnungen bis 59 m<sup>2</sup> weisen eine signifikant höhere Belastung auf. Dies korrespondiert mit der Angabe zu den Werten über die Haushaltsgröße, wonach in kleineren Haushalten höhere Belastungen festzustellen sind. Dies ist unter Umständen auf den höheren Anteil von Wohnraum für Küche und Bad an der Gesamtwohnfläche zurückzuführen.

Ein Einfluss lässt sich für die Ausstattung der Wohnung erkennen. Für Möbel, welche in den letzten 5-6 Jahren gekauft wurden, lässt sich eine höhere Belastung (62 µg/m<sup>3</sup> gegenüber 52 µg/m<sup>3</sup>) feststellen. Darüber hinaus führt das Vorhandensein von Spanplatten im Haushalt zu einer im Mittel signifikant höheren Konzentration, welche sich aber nicht für die oberen Ränder der Verteilung bestätigt. Zudem lässt sich in der Tendenz sagen, dass mit zunehmendem Alter des Bodenbelages die Konzentration in der Innenraumluft abnimmt.

Die Differenzierung nach den Variablen Gemeindegröße, Industrie und Art der Bebauung deuten auf eine geringere Belastung in stärker besiedelten Industriegebieten hin.

Die Unterschiede hinsichtlich der Unterscheidungsmerkmale Temperatur, Rauchen, Baujahr, Heizungsart und Energieträger sind nicht konsistent oder aufgrund zu kleiner Stichproben und zu vieler Werte unterhalb der Nachweisgrenze nicht eindeutig interpretierbar.

#### 5.4 Ergänzende Informationen

Bei der BfR-Fachveranstaltung am 29. Mai 2006 wurden neben den deutschen Messungen in Innenräumen auch zwei Studien aus Schweden und Finnland präsentiert. In beiden Studien wurde auch die individuelle Exposition gemessen, indem die Versuchspersonen persönliche Sammler trugen. In 65 zufällig ausgesuchten schwedischen Haushalten wurden von Gustafson et al. [9] vergleichende Messungen von Formaldehyd in der Innenraum- und in der Außenluft vorgenommen. Die in zwei schwedischen Städten (Borås und Göteborg) durchgeführten Messungen ergaben im Mittel 26 bzw. 29 µg/m<sup>3</sup>. Die Werte lagen in einem Bereich zwischen 9,9 und 58 (Borås) und 8,6-120 µg/m<sup>3</sup>, jeweils im Schlafzimmer verschiedener Wohnungstypen gemessen. Die Außenluftkonzentration lag bei < 0,6 bis 5,2 µg/m<sup>3</sup>. In dieser Studie ergab die Messung der individuellen Konzentration, dass auch in Einzelfällen kurzfristig hohe Expositionen möglich sind.

In einer weiteren Studie von Jurvelin et al. [10] wurden bei 15 Probanden in Helsinki Innenraumkonzentrationen zwischen 6,5 und 62,3 ppb (=7,9 – 76,4 µg/m<sup>3</sup>) gemessen. Die individuelle Konzentration dieser Probanden war im Mittel um 35 % niedriger.

Beide Studien arbeiten nur mit geringen Fallzahlen, sie sind in Teilen auch widersprüchlich und daher noch nicht geeignet, Trends aufzuzeichnen. Sie sind aufgrund möglicher regionaler Unterschiede mit der Situation in Deutschland nur bedingt vergleichbar.

Bisher unveröffentlichte und während der BfR-Veranstaltung erstmalig vom UBA (Beitrag Seifert) präsentierte Daten des Kinder-Umweltsurveys (KUS) zeigen, dass bei insgesamt 582 Messungen, über eine Woche mit Passivsammlern gewonnen und gemittelt, der Median der Formaldehydkonzentration in Innenräumen 25 µg/m<sup>3</sup> betrug. Die höchste Konzentration betrug 71 µg/m<sup>3</sup>. Auch wenn bei diesem Vorgehen kurzfristig höhere Konzentrationen möglich sind (vergl. Gustafson et al. [9]), so kann man aufgrund dieser Untersuchung davon ausgehen, dass im Vergleich zum Umweltsurvey 1985/86 ein Rückgang der Formaldehydexposition zu verzeichnen ist.

## 6 Zusammenfassung

Die ARGUK-Daten sind zur Ableitung eines Worst-Case-Schätzers geeignet. Damit ergibt sich, dass weniger als 5% der Bevölkerung einer Raumluftkonzentration von Formaldehyd von mehr als 147  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  ausgesetzt sind.

Als relevante Einflussfaktoren auf die Innenraumluftkonzentration von Formaldehyd können aus dem Umwelt-Survey die Größe der Wohnfläche, die Ausstattung der Wohnung und die Lage der Wohnung abgeleitet werden.

Während die im Rahmen dieser Analyse verwendeten Messungen der Innenraumbelastung mit Formaldehyd zunächst keinen Trend erkennen lassen, geben neue Daten Anlass zur Annahme, dass inzwischen eine Tendenz zur Abnahme der Konzentration von Formaldehyd in deutschen Haushalten verzeichnet werden kann. Die Ergebnisse müssen allerdings durch weitere Untersuchungen bestätigt werden.

Ein quantitativer Vergleich von Expositionsschätzungen auf der Grundlage experimenteller Emissionsmessungen zeigt, dass wichtige Quellen der Formaldehydbelastung Spanplatten auf der Basis von Harnstoff-Formaldehyd-Harzen und dekorative Textilien (Tab. 1) darstellen. Auch Baustoffe (Rauhputze und Schimmelschutzfarben) können in einem nicht unerheblichen Maße zur Belastung beitragen. Nagelhärter und Reiniger spielen bei der inhalativen Exposition gegenüber Formaldehyd keine bzw. nur eine unerhebliche Rolle (Tab. 2).

## 7 Referenzen

1. Kelly, T.J., Smith, D.L., and Satola, J. (1999) Emission rates of formaldehyde from materials and consumer products found in California homes. *Environmental Science & Technology* 33, 81-88
2. Horn, W., Roßkamp, E., Ullrich, D. (2002) Biozidemissionen aus Dispersionsfarben. *WaBoLu-Hefte* 2
3. Schadstoffberatung Tübingen (2005) Formaldehyd: In der häuslichen Umwelt in Deutschland gefundene Werte. *Schadstoffberatung Tübingen*. 4-7-2001
4. Krause, C., Chutsch, M., Henke, M., Huber, M., Kliem, C., Leiske, M., Mailahn, W., Schulz, C., Schwarz, E., Seifert, E., and Ullrich, D. (1991) Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Bundesgesundheitsamtes: Umwelt-Survey Band IIIc: Wohn-Innenraum: Raumluft. Berlin
5. Scholz, H. (1998) Ergebnisse des 4. Fachkongresses der Arbeitsgemeinschaft ökologischer Forschungsinstitute am 25. und 26. September 1998 in Nürnberg: Vorkommen von Formaldehyd in Innenräumen. 215-219. Arbeitsgemeinschaft ökologischer Forschungsinstitute (AGÖF). *Gebäudestandard 2000: Energie & Raumluftqualität*
6. ARGUK-Umweltlabor GmbH (2004) Untersuchung von Formaldehyd in der Raumluft. [info@arguk.de](mailto:info@arguk.de)
7. Brasche, S., Witthauer, J., Bischof, W., and INGA-Studiengruppe (2003) Der Einfluss von Formaldehyd in der Raumluft auf Asthma und atopische Symptome

8. Ullrich, D., Gleue, C., Weiland, S., and Seifert, B. (1999) Indoor Air Concentrations of Aldehydes. A Field Study using DNPH Diffusive Sampling. *Indoor Air '99*.
9. Gustafson P, Barregård L, Lindahl R, Sällsten G (2005) Formaldehyde levels in Sweden: personal exposure, indoor, and outdoor concentrations. *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology* 15; 252-260
10. Jurvelin J, Vartiainen M, Jantunen M, Pasanen (2001) Personal exposure levels and microenvironmental concentrations of formaldehyde and acetaldehyde in the Helsinki metropolitan area, Finland. *Journal of the Air & Waste Management Association* 51, 17-24

## 8 Anhang 1:

### Ermittlung der Dampfdrücke für Formaldehyd-Konzentrationen unter 1 %

Ein so genannter „Evaporation calculator“ ermöglicht die Schätzung des Dampfdruckes im Bereich von 1 – 40 %. Um auch für Konzentrationen unter 1 % Dampfdrücke schätzen zu können, wurden aus Daten für Konzentrationen zwischen 1 und 37 % und den dafür ermittelten Dampfdrücken ein Polynom 2. Grades mit Excel angepasst.

Die sich daraus ergebende Gleichung

$$y = - 0,0391 x^2 + 4,747x + 6,5449$$

wurde zur Schätzung der entsprechenden Dampfdrücke genutzt.

[1] Evaporation Calculator: Formaldehyde. 2005. Office of Response and Restoration, National Ocean Service, National Oceanic and Atmospheric Administration. 12-11-2004.

## 8 Anhang 2

**Tabelle 7: Übersicht über die vorliegenden Daten für Deutschland zur Konzentration von Formaldehyd in der Innenraumluft und Parameter zur Charakterisierung der Untersuchungen**

Bezeichnung der Untersuchung	Publikation	Zeitliche Aspekte der Studie		Auswahl der Haushalte			Angabe zu den Messwerten			Analytik	
		Untersuchungszeitraum	Saisonale Aspekte	Regional	Rauchverhalten	Stichprobendesign	Art des Hauses	Art des Raumes	Temperatur, Lüftung, Luftfeuchte etc.	Messverfahren	Nachweisgrenze/Bestimmungsgrenze
Umwelt-Survey	Band III c, WohnInnenraum: Raumluft, WaBoLu Hefte, 4/1991	22.06.1985 - 23.04.1986	Fall-Gewichtung in Bezug zur Außentemperatur vorhanden	Westdeutschland/Westberlin	aufgesplittete Werte bzgl. Anzahl d. Raucher im HH vorhanden	Mehrfach geschichtete zweistufige Zufallsstichprobe; Formaldehyd wurde aus einer Unterstichprobe von 358 zufällig ausgewählten Personen bestimmt; in 329 Fällen konnten die Diffusions-Probenahmeröhrchen untersucht werden.	aufgesplittete Werte vorhanden	aufgesplittete Werte vorhanden	Keinerlei Vorschriften hinsichtlich Lüftungsgeohnheiten	48 Stunden Probennahme, möglichst im Wohnzimmer; Pararosanilin-Verfahren	Nachweisgrenze 30 µg/m <sup>3</sup>
AGÖF	Scholz, H.: Vorkommen von Formaldehyd in Innenräumen. In: Arbeitsgemeinschaft ökologischer Forschungsinstitute (AGÖF): Gebäudestandard 2000: Energie & Raumluftqualität - Ergebnisse des 4. Fachkongresses der Arbeitsgemeinschaft ökologischer Forschungsinstitute (AGÖF) am 25. und 26. September 1998 in Nürnberg; 215-19	1993 - Mai 1998	k. A.	k.A.	k. A.	Verdachtsstichproben (Wohnungen, sowie 27 Kitas und 15 Wohnanhänger/Caravans)	k. A.	k. A.	Angaben zu Temperatur u. rel. Luftfeuchte vorhanden. In Kitas Messung m. Nutzungssimulation durch Lüften.	8h-iger Verschluss der Verdachtsräume, Acetylaceton-Ammoniumacetat-Methode/DNPH-Methode; Bestimmung erfolgte nach VDI 4300 / 3 (1995)	k. A.

Fortsetzung Tabelle 7:

Bezeichnung der Untersuchung	Publikation	Zeitliche Aspekte der Studie		Auswahl der Haushalte			Angabe zu den Messwerten			Analytik	
		Untersuchungszeitraum	Saisonale Aspekte	Regional	Rauchverhalten	Stichprobendesign	Art des Hauses	Art des Raumes	Temperatur, Lüftung, Luftfeuchte etc.	Messverfahren	Nachweisgrenze/Bestimmungsgrenze
ARGUK	ARGUK e-mail (info@arguk.de) Messdaten Untersuchung von Formaldehyd in der Raumluft; unveröffentlicht	1993 - 2004	k. A.	Deutschland	k. A.	Verdachtsstichproben	k. A.	k. A.	k. A.	Photometrische Best. mit dem Pararosanilin-Verfahren VDI 3484	Bestimmungsgrenze 3µg/m <sup>3</sup>
Universität Jena	S. Brasche, J. Wittbauer, W. Bischof et al. Unveröffentl. Bericht: Der Einfluss von Formaldehyd in der Raumluft auf Asthma und atopische Symptome	1996 - 1998	k.A.	Reg. Bitterfeld, Hettstedt, Zerbst (Sachsen-Anhalt)	k.A.	Zufallsstichprobe aus zwei Cross-Sectional-Surveys. Fall- u. Kontrollkollektiv	k. A.	Wohnungsdurchschnitt (Zu 1 Teil Wohnzimmer, zu 3 Teilen Kinder-schlafzimmer)	k. A.	1 Woche Probennahme; DNPH-Methode	k. A.
Ullrich et al	Indoor air concentrations of aldehydes. A field study using DNPH diffusive sampling. Beitrag zum Kongress "Indoor Air '99", abgedruckt im Proceedings-Band	Juni 1997 - Januar 1998	Vergleich der 90. Perzentile Sommer/ Winter vorhanden	Dresden und München	k. A.	"case-control-study" innerhalb der ISAAC-Studie über Aldehyde in Wohnungen von Kindern mit Asthma und Allergien. Fall- und Kontrollkollektiv	k. A.	Probennahme in dem vom Kind meist genutzten Raum	k.A.	1 Woche Probennahme ; DNPH-Methode	k. A.