

616-053.2:613.1

PŘÍJEM POLYCYKlickÝCH AROMATICKÝCH UHLOVODÍKŮ Z ŽIVOTNÍHO PROSTŘEDÍ¹Zdeněk FIALA, ²Adolf VYSKOČIL, ³Dana FIALOVÁ, ⁴Vladimír KRAJÁK¹Ústav hygieny a preventivního lékařství, Univerzita Karlova v Praze, Lékařská fakulta v Hradci Králové²Department of Occupational and Environmental Health, University of Montreal, Canada³Katedra tělesné výchovy a sportu, Pedagogická fakulta, Univerzita Hradec Králové⁴EMPLA, s. s. r. o., Ekologické laboratoře, Hradec Králové**Souhrn**

Cílem studie bylo sezónní zhodnocení příjmu (různými expozičními cestami) polycyklických aromatických uhlovodíků (PAU) u dětí žijících ve městě a zhodnocení vlivu tohoto příjmu na exkreci 1-hydroxypyrenu (1-OHP). Do studie byly vybrány dvě skupiny dětí (léto/zima) ve věku 3-6 let navštěvujících mateřskou školu v centru města s vyšší dopravní hustotou („kontaminovaná školka“) a dvě skupiny dětí (léto/zima) ve věku 3-6 let navštěvujících mateřskou školu v okrajové části města s nízkou dopravní hustotou („nekontaminovaná školka“). U všech dětí byl sledován objem a struktura konzumované potravy a byl vypočítáván denní perorální příjem pyrenu. Vzorky ovzduší byly odebírány uvnitř školek a na přilehlých dětských hřištích, z nichž byly odebírány rovněž vzorky půdy a písku. Ve dnech, kdy byly odebírány vzorky ovzduší, byly od všech dětí odebírány vzorky ranní a večerní moči.

V obou sezónách byly průměrné koncentrace celkových PAU (součet 12 individuálních PAU) ve venkovním ovzduší „kontaminované školky“ přibližně třikrát vyšší než u „školky nekontaminované“. Průměrné koncentrace PAU ve vnitřním ovzduší byly v „kontaminované školce“ vyšší více než šestkrát v létě a třikrát v zimě. Stejný trend jsme pozorovali i u koncentrací pyrenu a u sumy šesti karcinogenních PAU. Kalkulovaný potravinový příspěvek k celkové denní dávce pyrenu byl mnohonásobně vyšší než příspěvek inhalační a příspěvek z půdního prachu. U dětí z „kontaminované školky“ jsme v létě i v zimě našli ve večerních močích významně vyšší hladiny 1-OHP. Mezi denním příjmem pyrenu (z potravy a ovzduší) a exkrecí 1-OHP byl nalezen omezený počet významných korelací.

Klíčová slova: Polycyklické aromatické uhlovodíky; Environmentální expozice; Děti; 1-hydroxypyren.

Intake of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from an Environmental Setting**Summary**

The aim of the study was to assess the intake (by various routes of exposure) of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) by children living in a city and its effect on the excretion of 1-hydroxypyrene (1-OHP) during the summer and winter periods. Four groups of children (3-6 years old) were chosen: (1) two groups (summer/winter) from a kindergarten situated in the city center with a higher traffic density („polluted kindergarten“); (2) two groups (summer/winter) from a kindergarten situated in a green zone of the same city („non-polluted kindergarten“). Food consumption was recorded in all children and the pyrene intake from foodstuffs was estimated. Ambient air samples were collected on the playground and inside kindergartens. Soil samples were collected, too. Morning and evening urine samples were collected during sampling days. In both seasons, the mean outdoor total PAH concentration (sum of 12 individual PAH) in the „polluted kindergarten“ was approximately 3 times higher than that in the „non-polluted kindergarten“. Indoor concentration in the „polluted kindergarten“ was more than 6 times higher than that in the „non-polluted kindergarten“ in summer and almost 3 times higher in winter. The same trend was observed for pyrene and for the carcinogenic PAH sum. The contribution to the total pyrene absorbed dose from food consumption was much more important than that from inhalation and from ingestion of soil dust. Significantly higher urinary concentrations of 1-hydroxypyrene (evening samples) were found in children from the „polluted kindergarten“ in both seasons. The number of significant relationships between 1-OHP and the daily pyrene absorbed dose from food and air was weak.

Key words: Polycyclic aromatic hydrocarbons; Environmental exposure; Children; 1-hydroxypyrene.

Úvod

Polycyklické aromatické uhlovodíky (PAU) představují skupinu chemických látek vznikajících v procesu nedokonalého spalování organické matrice zastoupené velmi různorodými materiály, jako jsou např. uhlí, dřevo, tabák, ropné produkty a průmyslový odpad (1).

Největší množství PAU je do složek životního prostředí uvolňováno ze spalování fosilních a ropných paliv, z používání spalovacích motorů v dopravě a z volného nakládání s nebezpečnými odpady obsahujícími PAU. Významnými zdroji PAU jsou pro obecnou populaci rovněž tabákový kouř a některé způsoby úpravy jídel, zejména grilování na dřevěném uhlí, opékání na otevřeném ohni, uzení, smažení a pečení (1, 2, 12).

Obecně lze konstatovat, že PAU jsou látky v životním prostředí všudypřítomné a lze je identifikovat v ovzduší, půdě, vodě, potravinách a řadě dalších materiálů, se kterými přichází obecná populace do denního kontaktu. Údaje o odhadech globálních emisí PAU, které uvádějí literární prameny, hovoří řádově o desetitisících až statisících tun PAU znečišťujících každoročně ovzduší a hydrosféru (1).

Existuje řada experimentálních i epidemiologických důkazů o karcinogenních účincích některých PAU. Informace o karcinogenních účincích PAU u lidské populace přicházejí primárně z pracovního prostředí, od osob exponovaných směsím obsahujícím tyto látky. Karcinogenní účinky směsí se projevují zejména v respiračním traktu a na kůži. Účinky nekarcinogenního charakteru byly pozorovány většinou v experimentech. U exponovaných osob byly registrovány pouze v omezené míře a týkaly se nálezů dermálních a hematologických. Experimentální studie rovněž potvrdily, že PAU jsou schopny ovlivňovat tkáň s vysokým stupněm proliferace, např. kostní dřev, lymfoidní orgány, gonády a intestinální epitel (3).

Metabolit pyrenu 1-hydroxypyren bývá často užíván jako biologický ukazatel míry expozice PAU v pracovním prostředí (7). V současné době je pozornost soustředěna na možnost využití tohoto indikátoru i v oblasti mimopracovní, kde se setkáváme s podstatně nižšími expozičními hladinami pyrenu v ovzduší (4, 6, 8, 9). Dětská populace může v tomto smyslu představovat vhodné „zrcadlo“ neprofesionální (environmentální) expoziční situace, neboť děti tráví značnou část dne v prostředí venkovního ovzduší a půdního (pískového) prachu, které mohou

být kontaminovány PAU (10, 11). Při posuzování celkového příjmu PAU je potom nutno brát v úvahu všechny expoziční cesty, tj. ovzduší, potravu, vodu a půdní prach.

Cíle studie

Prvním dílčím cílem studie bylo zhodnocení příspěvku jednotlivých forem expozice pyrenu (PAU) u dětí navštěvujících mateřské školky ve dvou odlišných částech Hradce Králové. Druhým dílčím cílem bylo zhodnocení vlivu nízkých dávek pyrenu ze životního prostředí na exkreci 1-hydroxypyrenu (1-OHP) a zhodnocení použitelnosti 1-OHP jako biologického indikátoru environmentální inhalační expozice pyrenu (PAU).

Metody

Sledované skupiny osob

Do studie byly vybrány dvě skupiny dětí (léto $n = 15$, zima $n = 10$) ve věku 3-6 let navštěvujících mateřskou školu v centrální části Hradce Králové vyznačující se vyšší dopravní hustotou (zhruba 18 tisíc automobilů za den). Tato lokalita byla ve studii označena jako „kontaminovaná školka“. Další dvě skupiny dětí (léto $n = 15$, zima $n = 17$) ve stejném věkovém rozmezí jako skupiny předchozí byly vybrány z mateřské školky v okrajové části Hradce Králové vyznačující se nízkou dopravní hustotou (zhruba 80 automobilů za den). Tato lokalita byla označena jako „nekontaminovaná školka“.

Stanovení PAU v ovzduší

Vzorky ovzduší byly odebírány z vnějšího prostředí mateřských školek a uvnitř mateřských školek v průběhu tří po sobě následujících dnů v červnu 1997 a v únoru 1998. Odběry a analýzy vzorků ovzduší byly prováděny podle metody EPA TO-13. Pro odběry bylo použito velkokapacitního stacionárního odběrového zařízení firmy Graseby (doba odběru 8-14 hodin; průtoková rychlost $20 \text{ m}^3/\text{h}$). Vzorky ovzduší byly odebírány na „tandem“ tvořený filtrem ze skelných mikrovláken a filtrem z polyuretanové pěny. Analýzy byly provedeny metodou gradientové vysokoúčinné kapalinové chromatografie s fluorescenční detekcí. V každém vzorku byly stanoveny koncentrace 12 vybraných PAU: fenantrenu, anthracenu, fluoranthenu, pyrenu,

benz[a]anthracenu, chrysenu, bezo[b]fluoranthenu, benzo[k]fluoranthenu, benzo[a]pyrenu, dibenz[a,h]anthracenu, benzo[g,h,i]perylenu a indeno[1,2,3-cd]pyrenu. Celková koncentrace PAU byla počítána jako suma koncentrací uvedených 12 PAU.

Celková koncentrace karcinogenních PAU byla počítána jako suma koncentrací benz[a]anthracenu, benzo[b]fluoranthenu, benzo[k]fluoranthenu, benzo[a]pyrenu, dibenz[a,h]anthracenu a indeno[1,2,3-cd]pyrenu (5, 13).

Stanovení PAU v půdě a písku

Vzorky půdy a písku z dětských hřišť byly odebrány z horních vrstev (okolo 20 cm do hloubky). Každý reprezentativní vzorek byl připraven ze směsi vzorků odebraných z pěti různých míst dětského hřiště v každé mateřské škole. Analýzy obsahu PAU byly provedeny pomocí výše popsaného chromatografického systému (5).

Stanovení příjmu pyrenu z ovzduší, potravy, nápojů a půdního prachu

Jak již bylo uvedeno, všechny sledované děti měly svá stálá bydliště v blízkosti odpovídajících školek. Při výpočtu inhalační expoziční dávky jsme proto předpokládali, že koncentrace pyrenu vně i uvnitř jejich domovů by měly být podobné jako koncentrace pyrenu ve venkovním ovzduší odpovídající školky. Tato úvaha se opírala o následující skutečnosti: a) pro studii byly vybrány pouze rodiny nekuřáků a rodiny, v nichž rodiče kouřili zásadně mimo domov; b) jak vyplynulo z dotazníkového šetření, v domovech sledovaných rodin nebyly zjištěny žádné další potenciální zdroje kontaminace ovzduší PAU.

Po tři dny odběrů vzorků ovzduší byla sledována i celodenní úroveň fyzické aktivity dětí. Za použití snímačů tepové frekvence a spiroergometrického měření jsme u 10 náhodně vybraných dětí z obou školek sledovali v paralelní studii (rukopis je zpracováván) vztah mezi jejich tepovou frekvencí a plicní ventilací při různých denních aktivitách. Pro zjednodušení výpočtů odhadu denního inhalačního příjmu pyrenu jsme aktivity dětí rozdělili do tří hlavních skupin. První zahrnovala spánek s průměrnou plicní ventilací 10,1 l/min, druhá aktivity uvnitř školek a domovů s průměrnou plicní ventilací 12,3 l/min a třetí aktivity ve venkovním prostředí s průměrnou plicní ventilací 13,6 l/min (5, 13).

Denní příjem pyrenu z potravy a nápojů byl u dětí zjišťován pomocí podrobného potravinového dotazníku, s ohledem na data získaná v České republice v rámci Systému monitorování zdravotního stavu obyvatelstva ve vztahu k životnímu prostředí. Za použití literárních údajů byl připraven hypotetický potravinový stůl, na němž byly potraviny rozděleny do čtyř skupin podle jejich předpokládaného průměrného obsahu pyrenu: nízký (< 1 µg/kg, bráno jako 0,5 µg/kg), střední (1-5 µg/kg, bráno jako 3 µg/kg), vysoký (5-25 µg/kg, bráno jako 15 µg/kg) a velmi vysoký (> 25 µg/kg, bráno jako 75 µg/kg). Denní příjem pyrenu z potravy byl vypočítáván na základě těchto údajů v kombinaci s informacemi z potravinových dotazníků (z mateřských školek a domovů) o skladbě a množství jídel. Každá potravinová komponenta byla ohodnocena příslušným faktorem (0,5; 3; 15; 75) a její množství jím bylo vynásobeno. Následně sečtené položky pak reprezentovaly odhad denního příjmu pyrenu z potravy (5, 13).

Odhad příjmu pyrenu z půdního prachu byl prováděn na základě znalosti koncentrací pyrenu ve vzorcích zeminy a písku z dětských hřišť v kombinaci s literárně udávanou průměrnou denní perorální dávkou zemního prachu v hodnotě 80 mg (5).

Odběry vzorků moči a stanovení 1-OHP

V průběhu všech tří dnů odběrů vzorků ovzduší byly od sledovaných dětí odebrány vzorky ranních a večerních močí. Do doby analýzy byly odebrané vzorky udržovány ve zmrazeném stavu při -20 °C. Pro kvantitativní analýzu byla použita metoda gradientové vysokoúčinné kapalinové chromatografie s fluorescenční detekcí. Z důvodů kolísající diurézy byly koncentrace 1-OHP vztaženy ke koncentraci kreatininu v moči.

Statistické metody

Pro zjištění normality distribuce dat byl použit Kolmogorov-Smirnovův test. Pro zhodnocení rozdílů mezi soubory dat bylo použito nepárového t-testu, neparametrického nepárového Mann-Whitneyova testu a neparametrického párového Wilcoxonova testu. Hladina statistické významnosti byla zvolena pro $p < 0,05$. Hodnocení závislosti sledovaných parametrů bylo provedeno pomocí korelačního koeficientu (r), jehož významnost byla testována testem

nulovosti korelačního koeficientu. Hladina statistické významnosti byla zvolena pro $p < 0,05$.

Výsledky

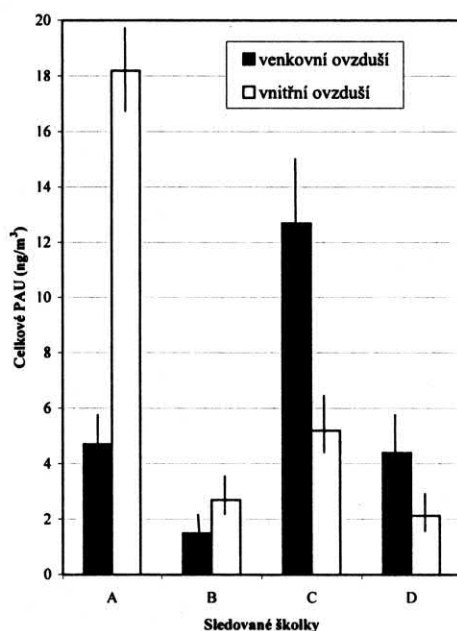
V ovzduší „kontaminované školky“ byly v obou sezónách nalezeny významně vyšší vnější i vnitřní koncentrace celkových PAU, karcinogenních PAU a pyrenu (graf 1).

Odhad potravinového příspěvku k celkové denní dávce pyrenu byl u sledovaných dětí mnohonásobně vyšší (85-97 %) než odhad příspěvku inhalačního (graf 2).

Odhad perorálního příspěvku z půdního prachu se z hlediska celkové denní dávky pyrenu jevil jako zanedbatelný (0,003-0,473 %) (graf 2). Koncentrace pyrenu (PAU) v zemině přitom výrazně převyšovaly koncentrace v písku.

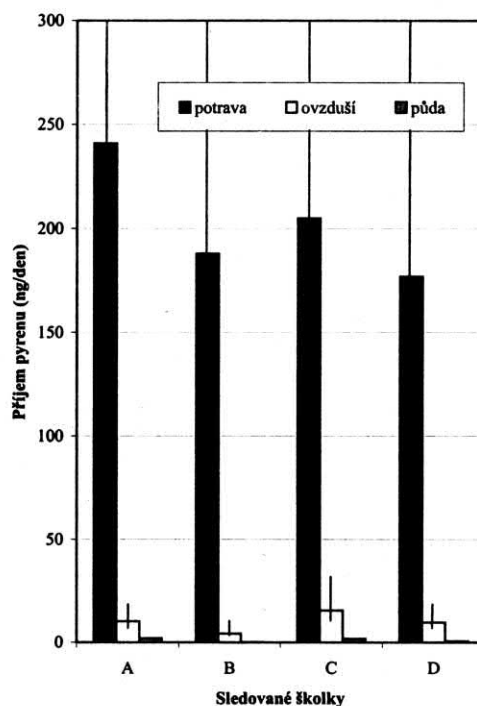
Odhad příjmu pyrenu z potravy i ovzduší byl u „kontaminované školky“ (v porovnání se „školkou nekontaminovanou“) v obou sezónách významně vyšší (graf 2).

Rozdíly v odhadech příjmu pyrenu z potravy mezi létem a zimou u dětí z téže školky nebyly významné. Významné však byly rozdíly v odhadech příjmu inhalačního (graf 2).



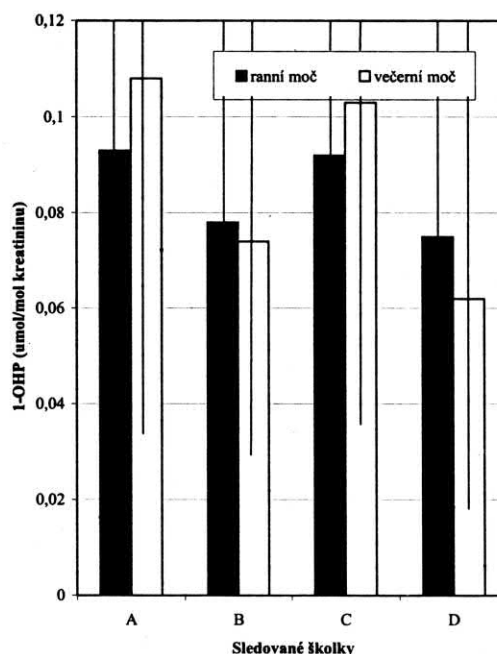
A = „kontaminovaná školka“ léto
B = „nekontaminovaná školka“ léto
C = „kontaminovaná školka“ zima
D = „nekontaminovaná školka“ zima

Graf 1: Koncentrace celkových PAU v ovzduší školek (aritmické průměry a SD)



A = „kontaminovaná školka“ léto
B = „nekontaminovaná školka“ léto
C = „kontaminovaná školka“ zima
D = „nekontaminovaná školka“ zima

Graf 2: Koncentrace celkových PAU v ovzduší školek (aritmické průměry a SD)



A = „kontaminovaná školka“ léto
B = „nekontaminovaná školka“ léto
C = „kontaminovaná školka“ zima
D = „nekontaminovaná školka“ zima

Graf 3: Koncentrace 1-hydroxypyrenu v moči (geometrické průměry a rozsahy)

Průměrná hladina 1-OHP ve večerní moči dětí z „kontaminované školky“ byla v obou sezónách významně vyšší oproti hladině 1-OHP ve večerní moči dětí ze „školky nekontaminované“ (graf 3).

Nebyly nalezeny významné rozdíly hladin urinárního 1-OHP mezi létem a zimou u dětí z téže školky (graf 3).

Byl nalezen omezený počet (22 %) statisticky významných korelací mezi příjmem pyrenu a exkrecí 1-OHP.

Počet významných korelací mezi perorálním příjmem pyrenu a exkrecí 1-OHP byl téměř dvojnásobný v porovnání s počtem významných korelací mezi exkrecí 1-OHP a příjmem inhalačním.

Závěry

Pro děti z obou odlišných městských částí představovala potrava pravděpodobně hlavní zdroj příjmu pyrenu i celkových PAU.

Zdá se, že v případech běžné environmentální kontaminace ovzduší pyrenem (PAU), kdy cesta potravní expozice výrazně převyšuje expozici inhalační, není 1-OHP vhodným (dostatečně citlivým) indikátorem inhalační expozice pyrenu (celkovým PAU).

Zdůrazňujeme potřebu dalších studií zaměřených na posouzení vhodnosti použití urinárního 1-OHP pro odhad celkové environmentální expozice pyrenu (PAU) (5, 13).

Literatura

1. FIALA, Z. - VYSKOČIL, A. - KRAJÁK, V., aj.: Polycyklické aromatické uhlovodíky I. Kontaminace prostředí a osob. Acta Med. (Hradec Králové) Suppl., 1999, roč. 42, č. 2, s. 77-89.
2. FIALA, Z. - VYSKOČIL, A. - FIALOVÁ, D., aj.: Environmentální expozice polycyklickým aromatickým uhlovodíkům. Hygiena, 1999, roč. 44, č. 4, s. 187-197.
3. FIALA, Z. - BORSKÁ, L. - VYSKOČIL, A., aj.: Polycyklické aromatické uhlovodíky II. Toxické účinky. Acta Med. (Hradec Králové) Suppl., 2000, roč. 43, č. 3, s. 37-61.
4. FIALA, Z. - VYSKOČIL, A. - BORSKÁ, L., aj.: Polycyklické aromatické uhlovodíky III. Biologické ukazatele expozice a možnosti prevence. Acta Med. (Hradec Králové) Suppl., 2000, roč. 43, č. 3, s. 63-72.
5. FIALA, Z. - VYSKOČIL, A. - KRAJÁK, V., et al.: Environmental exposure of small children to polycyclic aromatic hydrocarbons. Int. Arch. Occup. Env. Health, 2000, in press.
6. GÜNDEL, J. - MANNSCHRECK, C. - BÜTTNER, K., et al.: Urinary levels of 1-hydroxypyrene, 1-, 2-, 3- and 4-hydroxyphenanthrene in females living in an industrial area of Germany. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 1996, vol. 31, p. 585-590.
7. JONGENELEN, FJ.: Biological monitoring of environmental exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons; 1-Hydroxypyrene in urine of people. Toxicol. Lett., 1994, vol. 72, p. 205-211.
8. KANO, T. - FUKUDA, M. - ONOZUKA, H., et al.: Urinary 1-hydroxypyrene as a marker of exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in environment. Environ. Res., 1993, vol. 62, p. 230-241.
9. SEIWERT, M. - BECKER, K. - KAUS, S., et al.: German Environmental Survey 1998 (GerES III): PAH in the urine of adults and children. Federal Environmental Agency (Umweltbundesamt), 1998, Berlin.
10. VAN ROOIJ, JG. - VEEGER, MM. - BODELIER-BADE, MM., et al.: Smoking and dietary intake of polycyclic aromatic hydrocarbons as sources of interindividual variability in the baseline excretion of 1-hydroxypyrene in urine. Int. Arch. Occup. Environ. Health, 1994, vol. 66, p. 55-65.
11. VAN WIJNEN, JP. - SLOB, R. - JONGMANS-LIEDEKERKEN, G., et al.: Exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons among Dutch children. Environ. Health Perspect., 1996, vol. 104, p. 530-534.
12. VYSKOČIL, A. - FIALA, Z. - FIALOVÁ, D., et al.: Environmental exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in Czech Republic. Human. Exp. Toxicol., 1997, vol. 16, p. 589-595.
13. VYSKOČIL, A. - FIALA, Z. - CHENIÉR, V., et al.: Assessment of multipathway exposure of small children to PAH. Environ. Toxicol. Pharmacol., 2000, vol. 8, p. 111-118.

Studie byla součástí česko-kanadského výzkumného projektu ENVIR.CRG 970418, finančně podporovaného agenturou „Scientific and Environmental Affairs Division of NATO“ se sídlem v Bruselu.

Korespondence: Ing. Zdeněk Fiala, CSc.
Univerzita Karlova v Praze
Lékařská fakulta v Hradci Králové
Šimkova 870
500 01 Hradec Králové
e-mail: fiala@lfhk.cuni.cz

Do redakce došlo 12. 4. 2001