

## Blootstelling aan Polycyclische Aromatische Koolwaterstoffen (PAK) bij het verwerken van steenkoolteer-bevattende produkten in de wegenbouw

S.J. Veenstra, BGD Alkmaar  
P.T.J. Scheepers, BGD Haarlem  
F.J. Jongeneelen, Vakgroep  
Toxicologie, KU Nijmegen

### Summary

The exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) was studied on ten different paving sites at which paving material containing coal tar was handled. Activities studied included chipsealing, hot-mix-laying, repave and milling. Exposure was determined by personal air sampling, skin monitoring and by determination of a metabolite of pyrene (1-hydroxypyrene) in urine. Air concentrations were enhanced but lower than expected with a highest value for B(a)P of  $0,31 \mu/m^3$ . The hands were contaminated with considerable amounts of PAH (B(a)P levels up to  $100 \mu$ ). Urinary 1-hydroxypyrene levels were also enhanced. Workers involved in hot-mix-laying had a higher exposure to low-molecular-weight PAH and a lower exposure to high-molecular-weight PAH when compared to those involved in chipsealing. A positive significant relation was found between skin contamination with pyrene and 1-hydroxypyrene in urine.

### Inleiding

Polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK) ontstaan onder andere bij onvolledige verbranding van organisch materiaal.

Toxicologisch gezien staan de PAK sterk in de belangstelling aangezien van bepaalde PAK met vier of meer benzeenringen wordt aangenomen dat ze bij de mens kanker kunnen veroorzaken ofwel in aanwezigheid van andere chemische verbindingen het ontstaan van kanker kunnen bevorderen.

Van een aantal PAK is in proefdieronderzoek vastgesteld dat ze carcinogeen zijn. De mate van carcinogeniteit verschilt sterk. Een hoge carcinogene potentie vertonen benzo(a)pyreen en dibenzo(ah)anthraceen (IARC 1983).

Longkanker bij rokers en de beroepskanker bij schoorsteenvegers, zoals

die in het verleden werd vastgesteld, zijn vormen van kanker waarvan wordt verondersteld dat blootstelling aan PAK een belangrijke factor is bij het ontstaan ervan.

In een aantal epidemiologische onderzoeken is vastgesteld, dat bij beroepsmatige blootstelling aan koolteerdamp waarin een hoge concentratie PAK aanwezig is (o.a. in de gas- en cokesfabrieken en in de aluminiumindustrie), een verhoging van het aantal longkankergevallen wordt gevonden (IARC 1984).

Behalve carcinogene effecten zijn uit de literatuur ook andere effecten bekend, onder andere op de huid (dermatitis, wratten, acné) en op de ogen (voor reviewartikel zie IARC 1985).

De normstelling met betrekking tot de blootstelling aan PAK is in veel landen (inclusief Nederland) gebaseerd op koolteerdamp (de in benzeen oplosbare fractie). Meestal wordt een norm van  $200 \mu/m^3$  gehanteerd. Een aantal landen hanteert een aparte norm voor benzo(a)pyreen, onder andere Zweden ( $5 \mu/m^3$ ) en USSR ( $0,15 \mu/m^3$ ). Aangezien er bij het werken met teerprodukten ook vaak sprake is van blootstelling aan bitumen, is het van belang hier ook de norm voor asfaltrook te vermelden: TGG-waarde van  $5000 \mu/m^3$ .

In Nederland worden in de wegenbouw bindmiddelen toegepast, onder andere voor de bereiding van asfalt- of teermengsels en het aanbrengen van afwerkklagen (slijtlagen) op het wegdek. Als bindmiddel worden veelal (ca. 95%) produkten op basis van aardoliebitumen gebruikt. Soms worden echter ook bindmiddelen op steenkoolteerbasis of combinaties van teer en bitumen (teerbitumen) als bindmiddel verwerkt.

Het steenkoolteerprodukt dat in de wegenbouw wordt toegepast is meestal een combinatie van pek (het residu dat overblijft na destillatie van de

ruwe teer) en teeroliën (ontwijken tijdens destillatie). Door toevoeging van teeroliën wordt de juiste viscositeit verkregen.

Bekende teerbevatende bindmiddelen die in Nederland worden gebruikt zijn het zogenaamde wegenteer (bevat alleen steenkoolteer) en teerbitumen.

Van bitumen en steenkoolteer is bekend dat ze PAK bevatten. Het PAK-gehalte in teer ligt in het algemeen aanzienlijk hoger (factor 100 à 1000) dan in bitumen (IARC 1985). Door het hoge PAK-gehalte in teer is de kans aanwezig dat werknemers bij de verwerking ervan aan PAK worden blootgesteld. In de literatuur (Lindstedt 1982) wordt het aanbrengen van teerproducten in de wegenbouw beschouwd als een activiteit waarbij sprake is van een hoge blootstelling aan PAK (benzo(a)pyreenconcentraties > 1 µ/m<sup>3</sup>).

Blootstelling aan PAK kan tot stand komen door:

- huidcontact met producten of verontreinigd gereedschap en opname van PAK in het lichaam via de huid of via de mond,
- inhalatie van PAK-damp of aerosol die kan ontstaan door condensatie van uit het warme (ca. 100-160°C) mengsel of bindmiddel ontwijkende dampen; verder kunnen PAK-bevatende deeltjes in de lucht komen door verwaaien van sproeinevel en bewerken (o.a. frezen) van teerhoudend materiaal.

De hoofddoelstelling van het hier beschreven onderzoek was inzicht te krijgen in de blootstelling aan PAK tijdens het aanbrengen of bewerken van steenkoolteer-bevatende producten in de wegenbouw. Nevendoelstellingen waren het testen van een aantal methoden van huidmonitoring ten behoeve van het kwalificeren/kwantificeren van de blootstelling aan PAK en het valideren van de 1-hydroxypyreenbepaling als indicator voor de blootstelling aan PAK.

## Werkzaamheden

### Slijtlagen

De belangrijkste toepassing van teerproducten in de wegenbouw is als bindmiddel in slijtlagen. Deze worden als toplaag op nieuwe of reeds bestaande wegdekken aangebracht. Men sproeit met een tankwagen voorzien van een sproeiinstallatie (of indien noodzakelijk met een hand-sproeier) het bindmiddel dat een temperatuur heeft van ca. 160°C op het wegdek. Vervolgens wordt split gestrooid dat met een wals wordt vastgereden. Slijtlagen worden aangebracht door

een ploeg, bestaande uit een chauffeur van de sproeiwagen en een assistent die meestal in dienst zijn van een daarin gespecialiseerd bedrijf en verder personeel van het wegenbouwbedrijf, bestaande uit één of twee splitstrooiers, vrachtwagenchauffeurs die het split aanvoeren, walsmachinist(en) en vegers.

### Mengsels met teer of teerbitumen

Onder mengsels worden in de wegenbouw verstaan producten op basis van een bindmiddel (bitumen, teer of teerbitumen) in een gehalte van ca. 5% (gewichtspcent) en een minerale fractie (grind en/of steenslag, zand en vulstof).

Mengsels met teer of teerbitumen worden in vergelijking met mengsels op bitumenbasis relatief weinig toegepast. Ze worden meestal gebruikt in de vorm van koudasfaltmengsels. Deze zijn lang houdbaar en daarom geschikt voor reparatiewerk. Soms wordt dit type mengsels koud aangebracht, maar vaak ook warm met een temperatuur van ca. 90 tot 140°C. Mengsels worden meestal door een spreidploeg aangebracht met behulp van een spreidmachine. Op de spreidmachine werken een machinist (chauffeur) en een balkman die de voortgang van het spreidproces controleert. Verder zijn er meestal twee afwerkers bezig met het bijwerken van de randen. De aanvoer van het mengsel gebeurt met vrachtwagens en één of meer walsmachinisten zorgen met walsen voor de verdichting van de aangebrachte laag.

### Frezen

Behalve bij het aanbrengen van teerbevatende producten kunnen de werknemers ook bij het verwijderen ervan aan teer en dus aan PAK worden blootgesteld. Verwijdering vindt onder andere plaats door frezen. Daarbij wordt met een freesmachine

de bovenlaag van het wegdek verwijderd.

### Repave

Bij het repaven wordt eerst de bovenlaag van een bestaande weg verwijderd, waarna het wegdek wordt verwarmd met infraroodstraling en/of gasbranders. Vervolgens wordt het losgewoeld en na toevoeging van nieuw mengsel weer verdicht door walsen.

## Onderzoekopzet

Om geschikte onderzoeksprojecten te selecteren zijn een groot aantal wegenbouwbedrijven in Nederland benaderd met het verzoek medewerking te verlenen aan het onderzoek. Van de 64 (schriftelijk) benaderde bedrijven reageerden er 38. Daarvan zijn er 7 in het onderzoek betrokken. Er zijn 10 onderzoeksprojecten geselecteerd. Het onderzoek nam per project 1 tot 5 dagen in beslag. De meerdaagse onderzoeksprojecten werden onder andere uitgevoerd om inzicht te krijgen in verschillen van dag tot dag in de blootstellingsniveaus in relatie tot de uitscheiding van 1-OH-pyreen.

Per project werd van elke functie ten minste 1 werknemer bij het onderzoek betrokken en maximaal 5 personen per dag.

Van de projecten hadden er 4 betrekking op het aanbrengen van slijtlagen en 3 op het aanbrengen van koudasfaltmengsels (op teerbitumenbasis). Ook is gemeten bij het frezen (1 project) en bij het repaven (1 project).

Ter vergelijking is er 1 onderzoeksproject geselecteerd waarbij met een spreidmachine zogenaamd warmasfalt op bitumenbasis werd verwerkt en er dus geen sprake was van blootstelling aan teer.

De belangrijkste kenmerken van de projecten zijn weergegeven in tabel 1. ►

Tabel 1. Kenmerken van de 10 onderzoeksprojecten

project nummer	type activiteit	grondstof/materiaal	aantal meetdagen	aantal* personen
A	aanbrengen slijtlaag	teerbitumen	3	3
B	aanbrengen slijtlaag	teerbitumen	6	5
D	aanbrengen slijtlaag	teer	1	2
F	aanbrengen slijtlaag	teerbitumen	3	4
G	aanbrengen mengsel	mengsel**	2	3
I	aanbrengen mengsel	mengsel**	1	3
K	aanbrengen mengsel	mengsel***	1	2
C	frezen	wegdek***	1	2
E	repave	bitumenmengsel	1	4
H	aanbrengen mengsel	bitumenmengsel	1	3

\* per dag

\*\* mengsels op teerbitumen basis

\*\*\* ten dele voorzien van een waarschijnlijk teer bevattende slijtlaag

De uitwendige blootstelling is bepaald door meting van het PAK-gehalte in de lucht en de hoeveelheid PAK op de huid en de inwendige blootstelling is vastgesteld door meting van een afbraakproduct (1-hydroxypyreen) van één van de PAK (pyreen) in de urine.

Meting van deeltjesvormige PAK in de lucht vond plaats met een filterkop voorzien van conische aanzuigopening (DEHA-1) en een aanzuig-snelheid van ca. 1,25 m/s. Wat filtermateriaal betreft is aangesloten bij reeds bestaande methodes en gebruik gemaakt van glasvezelfilters in combinatie met een zilvermembraan. Van alle monsters (52) is de hoeveelheid stof op het filter bepaald. In 12 van de monsters is van 12 verschillende PAK het gehalte vastgesteld (fluorantheen, pyreen, benzo(a)anthracen, chryseen, benzo(e)pyreen, benzo(b)fluorantheen, benzo(k)fluorantheen, benzo(a)pyreen, benzo(g,h,i)peryleen, indeno(1,2,3 c-d)pyreen, anthracen, coroneen). Van de overige monsters de cyclohexaanoplosbare fractie.

Bij de meting van de hoeveelheid PAK op de huid is gebruik gemaakt van twee methodes: meting van de hoeveelheid PAK op de handen en meting daarvan op pads die op diverse plaatsen op het lichaam werden aangebracht.

De handmeting werd uitgevoerd door wrijven van de handen met plantaardige olie en afvegen met een tissue. Deze procedure werd twee keer uitgevoerd. Voor en na werktijd werd een monster verkregen. In het totaal werden 105 monsters van de handen verzameld.

De pads bestonden uit een laagje absorberend polypropyleen (1,8 cm<sup>2</sup>) aangebracht op een hechtmateriaal (zie figuur 1). Ze werden op 5 plaatsen op het lichaam bevestigd: binnenkant pols, onderarm, nek, schouder en enkel en gedurende de gehele werkdag gedragen. In het totaal werd 60 maal een persoon met pads uitgerust.

Van de huidmonsters is met HPLC (met fluorescentiedetectie) het gehalte van vier PAK bepaald: fluoreen, pyreen, B(a)A en B(a)P.

PAK worden na opname in het lichaam voor een deel afgebroken en uitgescheiden via de urine. Eén van de metabolieten is 1-OH-pyreen. Uit onderzoek is gebleken dat 1-OH-pyreen in de urine een indicator is voor de blootstelling aan PAK in koolteerproducten (Jongeneelen 1985). Er zijn 131 urinemonsters

verzameld. De urinemonsters werden verkregen voor aanvang en na beëindiging van het werk. In de urine is met HPLC (met fluorescentiedetectie) het gehalte 1-hydroxypyreen gemeten.

Bij een aantal onderzoeksprojecten zijn grondstofmonsters verzameld waarin van een aantal PAK (fluoreen, pyreen, B(a)A en B(a)P) het gehalte is vastgesteld.

De meetmethoden die in dit onderzoek werden gebruikt, zijn elders uitvoerig beschreven (Jongeneelen, e.a., 1988).

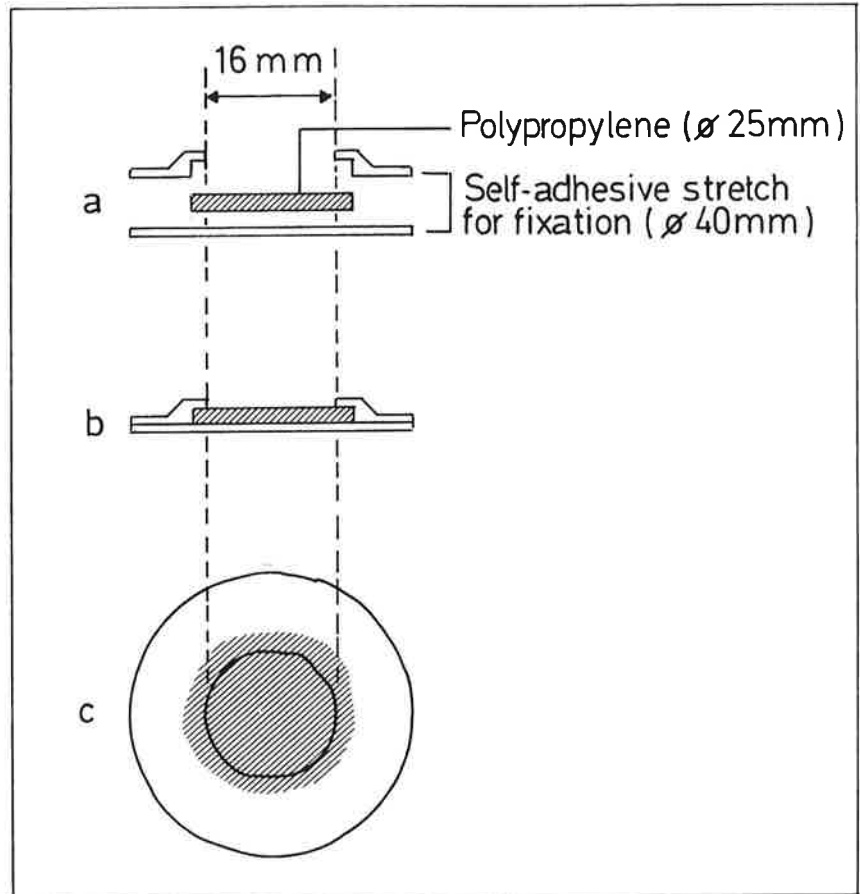
chinist: 10,4 mg/m<sup>3</sup>. De overige waarden waren kleiner of gelijk aan 1,5 mg/m<sup>3</sup>.

Bij het frezen werd een gemiddelde concentratie vastgesteld van 1 mg/m<sup>3</sup> en bij de machinist van de repavemachines 13,5 mg/m<sup>3</sup>.

#### PAK in de lucht

Bij het aanbrengen van slijtlagen (5 monsters) werden in één monster duidelijk verhoogde waarden gevonden: Pyreen 1,2 µ/m<sup>3</sup> en B(a)P 0,16 µ/m<sup>3</sup>. In de overige monsters was het pyreengehalte ≤ 0,16 µ/m<sup>3</sup> en was het B(a)P-gehalte vergelijkbaar met wat

**Figuur 1. Ontwerp van de pad; dwarsdoorsnedes en bovenaanzicht**



## Resultaten

### Stofconcentraties

De concentraties lagen tussen 0,1 en ca. 13 mg/m<sup>3</sup>.

Bij het aanbrengen van slijtlagen werden de hoogste stofconcentraties gemeten bij de splitstrooiers. Vooral het verspreiden van droog split met een schep veroorzaakt veel stof. Overigens bevatte dit stof weinig PAK.

Bij de vegers werden relatief lage (≤ 0,5 mg/m<sup>3</sup>) stofconcentraties gemeten.

Bij het aanbrengen van mengsels met de spreidmachine werd de hoogste concentratie gemeten bij de ma-

volgens de literatuur in stedelijk gebied te verwachten is: ≤ 0,03 µ/m<sup>3</sup> (IARC 1983).

Bij het aanbrengen van teerbevattende mengsels (3 monsters) werd bij 1 project een verhoogde waarde gemeten waarbij een concentratie pyreen van 7,4 en B(a)P van 0,31 µ/m<sup>3</sup> werd vastgesteld.

Verhoogde waarden werden eveneens gevonden bij het frezen van een wegdek waarop mogelijk in het verleden teerbevattende slijtlagen zijn aangebracht: pyreen 0,22 en B(a)P eveneens 0,22 µ/m<sup>3</sup>.

Om na te gaan of er tussen de projecten verschillen zijn wat de onderlinge verhouding betreft waarin de ver-

schillende PAK in het PAK-mengsel voorkomen, (het PAK-profiel) zijn van 3 projecten waar duidelijk verhoogde B(a)P-concentraties werden vastgesteld, de profielen vergeleken (zie tabel 2). Om de profielen vergelijkbaar te maken zijn de concentraties van de PAK genormeerd op het gehalte B(a)P.

Uit de profielen blijkt dat het freestof relatief veel zware PAK bevat en het monster verkregen bij het aanbrengen van mengsel relatief veel lichte PAK.

#### Cyclohexaan-oplosbare fractie

Bij de slijtlaagprojecten werden waarden gevonden tussen 0,1 en 1,4 mg/m<sup>3</sup>; gemiddeld 0,3 mg/m<sup>3</sup> (29 monsters).

Bij de koudasfaltprojecten werden wat hogere niveaus gevonden: 0,2 tot 1,3 mg/m<sup>3</sup> en een gemiddelde van 0,6 mg/m<sup>3</sup> (9 monsters). Een aanzienlijk deel van de concentraties lag in de buurt van de detectiegrens: 0,1 tot 0,3 mg/m<sup>3</sup>.

#### 1-Hydroxypyreengehaltes in de urine

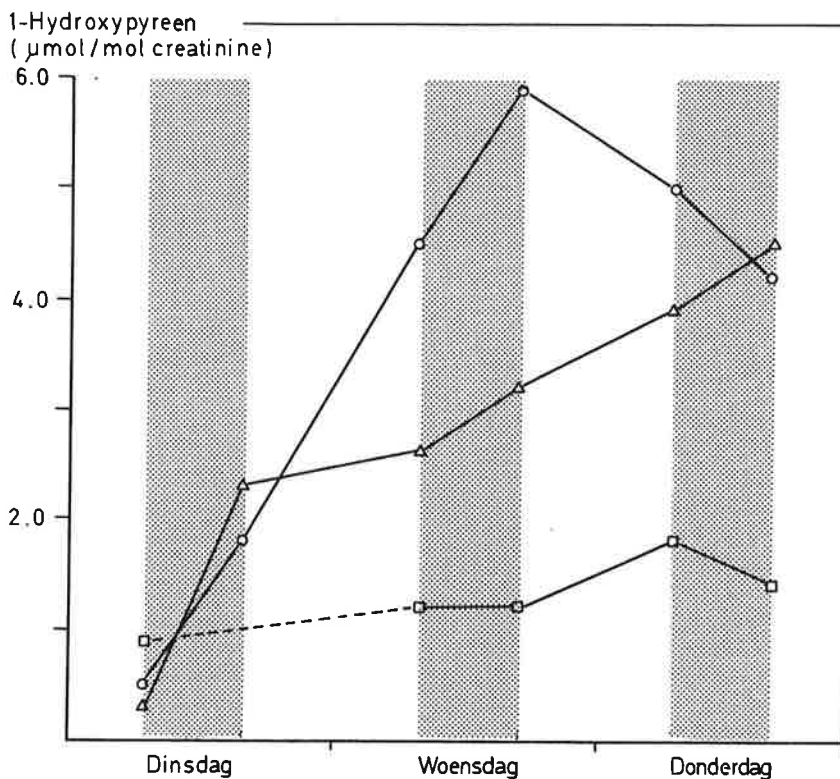
Er zijn in het totaal 131 urinemonsters geanalyseerd. Het 1-hydroxypyreengehalte is berekend in  $\mu\text{mol/mol}$  creatinine. Het merendeel van de waarden lag tussen 0 en 5 met een enkele hogere waarde (maximum 8,5). Van niet blootgestelde populaties is bekend dat het gehalte 1-hydroxypyreen in de urine ( $\mu\text{mol/mol}$  creatinine) bijna altijd lager is dan 1: rokers: mediaan = 0,28;  $p_5 = 0,09$ ;  $p_{95} = 1,31$  en niet rokers: mediaan = 0,26;  $p_5 = 0,02$ ;  $p_{95} = 0,66$ .

De door ons gevonden waarden (zie tabel 3) zijn in vergelijking met wat is gevonden bij niet blootgestelde populaties duidelijk verhoogd. Dat geldt zowel voor de voor-werk als voor de na-werk monsters. Alleen bij het controleproject (H) waar men alleen met bitumen en niet met steenkoolteerprodukten in aanraking kwam, waren de urinegehalten niet of nauwelijks verhoogd.

De werknemers die betrokken waren bij het aanbrengen van teermengsels bleken significant ( $p = 0,018$ ) hogere gehalten 1-hydroxypyreen in de urine te hebben dan de werknemers bij de slijtlaagprojecten: geometrische gemiddelden resp. 2,64 en 1,60. Bij sommige projecten/personen was er sprake van een duidelijke stijging over de dag.

In figuur 2 is het verloop van de uitscheiding van 1-hydroxypyreen tegen de tijd weergegeven voor één van de projecten. ►

**Figuur 2. De uitscheiding van 1-hydroxypyreen in de urine bij 3 werknemers bij het aanbrengen van slijtlagen (project a) op drie opeenvolgende dagen voor- en na-werk bemonsterd**



**Tabel 2. PAK-profielen van 3 luchtmonsters genormeerd op het gehalte benzo(a) pyreen\***

PAK	project C (frozen)	project F (slijtlaag)	project I (mengsel)
benzo(a)anthraceen	0,3	2,8	111
chryseen	0,4	4,0	57
benzo(e)pyreen	< 0,3	3,8	13
benzo(b)fluorantheen	1,6	1,9	18
benzo(k)fluorantheen	0,6	1,2	10
benzo(a)pyreen	1	1	1

\* De concentratie B(a)P op de projecten C, F en I was resp. 0,22, 0,16 en 0,31  $\mu\text{m}^3$ .

**Tabel 3. Pyrenehoeveelheden op de handen (na-werk), 1-hydroxypyreengehaltes in de urine (voor- en na-werk) en pyrenehoeveelheden op de polspads op 10 verschillende onderzoeksprojecten. Geometrische gemiddelden met aantallen vermeld tussen haakjes**

project nummer	1-OH-pyreen in urine		pyreen op handen na-werk**	pyreen op polspads***
	voor-werk*	na-werk*		
A	1,8 (9)	2,8 (8)	— (0)	< 10 (2)
B	1,2 (23)	1,5 (23)	96 (22)	24 (23)
D	0,7 (3)	0,9 (4)	37 (5)	< 10 (5)
F	1,5 (8)	1,9 (8)	201 (8)	24 (9)
G	1,4 (6)	2,8 (6)	124 (6)	91 (6)
I	1,9 (3)	2,7 (3)	64 (3)	12 (3)
K	1,2 (2)	1,5 (1)	33 (1)	24 (1)
C	1,5 (2)	2,8 (1)	33 (1)	19 (1)
E	3,1 (2)	3,2 (1)	14 (1)	13 (1)
H	0,5 (2)	0,5 (3)	6 (3)	21 (3)

\* 1-OH-pyreenwaarden in  $\mu\text{mol/mol}$  creatinine

\*\* pyrenehoeveelheid op de handen in microgrammen per monster

\*\*\* pyrenehoeveelheid op de pads in nanogrammen per pad

### PAK op de handen

Bij in het totaal 55 werknemers zijn voor- en na-werk monsters genomen van de verontreiniging van handen. In de monsters is het gehalte fluoreen, pyreen, B(a)A en B(a)P bepaald. In de na-werk monsters werden aanzienlijke hoeveelheden PAK gevonden. In tabel 3 zijn de meetresultaten voor pyreen weergegeven per project.

De voor-werk monsters bleken in vergelijking met een controle-groep (laboratoriumpersoneel; 7 personen; <math>1 \mu\text{ pyreen per monster}</math>) verhoogd: mediaan  $5,5 \mu\text{ pyreen}$  en een hoogste waarde van  $185 \mu\text{ pyreen per monster}$ .

Bij vergelijking van de slijtlaagprojecten met de projecten waarbij teermengsels werden aangebracht, blijkt dat het personeel bij het aanbrengen van teermengsels significant meer laagmoleculaire PAK (fluoreen;  $p = 0,0001$ ) op de handen heeft dan bij het aanbrengen van slijtlagen maar minder hoogmoleculaire PAK (B(a)P;  $p = 0,068$ ).

### PAK op het lichaam

Van 1 project (project B) zijn alle pads onderzocht (gehalte fluoreen, pyreen, B(a)A en B(a)P). Daaruit bleek dat het gehalte op de schouder-, enkel- en onderarmpad meestal onder de detectiegrens lag. Op grond daarvan is besloten van de overige projecten alleen de pols- en nekpads te analyseren.

De polspads bleken het sterkst verontreinigd te zijn. Ook op een aantal nekpads werden meetbare hoeveelheden PAK aangetroffen. Op 50 tot 70% van de polspads was PAK aantoonbaar (percentage afhankelijk van het type PAK). Het PAK-gehalte varieerde van enkele nanogrammen tot enkele tientallen nanogrammen per pad voor de verschillende PAK. Op enkele pads werden grotere hoeveelheden aangetroffen. In tabel 3 zijn per project de pyreengehaltes vermeld.

### PAK-gehalte in de grondstof

Op een aantal projecten zijn monsters genomen van de grondstoffen die werden toegepast. In deze monsters is het gehalte van een aantal PAK bepaald.

Aangezien het bij een aantal grondstoffen gaat om mengsels en bij de overige om bindmiddel, is een vergelijking tussen de projecten niet goed mogelijk.

Het gehalte benzo(a)pyreen in de grondstoffen is globaal in overeenstemming met wat op grond van de literatuur verwacht mocht worden. In de bindmiddelen (op teer- of teer-

bitumenbasis) werden gehalten benzo(a)pyreen tot  $0,75\%$  gemeten.

In een freesmonster afkomstig van een wegdek dat behandeld was met slijtlagen (project C), werd een sterk verhoogd benzo(a)pyreengehalte gevonden in vergelijking met een freesmonster afkomstig van een niet met slijtlagen behandeld wegdek. Dat houdt in dat in het verleden waarschijnlijk slijtlagen op basis van teer of teerbitumen zijn aangebracht.

### Discussie

#### PAK in de lucht

Wat betreft de 12 PAK-analyses van de luchtmonsters moet worden opgemerkt dat van de door ons gehanteerde meetmethode bekend is dat een deel van de relatief vluchtige PAK (pyreen en fluoranthen) niet wordt gemeten, aangezien dat in dampvorm door het filter gaat, waardoor voor deze twee PAK de geregistreerde concentraties het werkelijke niveau onderschatten (Bjorseth, 1986; Leinster, 1986; Lesage, 1987). Bij 3 van de 12 monsters was duidelijk sprake van verhoogde concentraties. Bij de overige monsters lagen de concentraties B(a)P op een niveau dat ook door verkeer of door het werken met bitumenprodukten kan zijn veroorzaakt (IARC, 1983, 1984, 1985).

De hoogste B(a)P-concentraties ( $0,16$  tot  $0,31 \mu\text{m}^3$ ) waren lager dan de niveaus die in de literatuur worden vermeld (Lindstedt 1982) bij het werken met teerprodukten in de wegenbouw en liggen ook onder de Zweedse norm voor blootstelling aan B(a)P:  $5 \mu\text{m}^3$ .

Dat de door ons gevonden concentraties lager liggen dan de in de literatuur vermelde waarden kan een gevolg zijn van verschillen in verwerkingstemperatuur van bindmiddelen en/of mengsels. Bij hogere temperaturen treedt een sterkere verdamping van PAK op. Van een aantal toepassingen die in de literatuur worden vermeld en waarbij hoge PAK-concentraties werden gemeten, is bekend dat ze bij een temperatuur hoger dan  $200^\circ\text{C}$  worden uitgevoerd terwijl bij ons onderzoek de temperatuur meestal lag tussen  $100$  en  $160^\circ\text{C}$ .

#### Cyclohexaanoplosbare fractie

De resultaten van de metingen van de cyclohexaanoplosbare fractie mogen niet zonder meer aan de norm voor steenkoolteerdamp ( $200 \mu\text{m}^3$ ) worden getoetst. Er is namelijk meestal sprake van een bindmiddel-mengsel waarin ook bitumen aanwezig zijn. Een deel van de damp die wordt gevormd, bestaat dus uit as-

faltrook waarvoor een norm geldt van  $5000 \mu\text{m}^3$ . Bij het controle-project waarbij geen sprake was van blootstelling aan teerdampen maar wel aan asfaltrook, werd één CTPV-waarde onder de detectiegrens en één van  $500 \mu\text{m}^3$  vastgesteld.

De gemeten cyclohexaanoplosbare fracties kunnen dus ten dele veroorzaakt zijn door asfaltrook. Dat houdt in dat de CTPV-waarde minder geschikt is voor de beoordeling van situaties waarbij sprake is van gelijktijdige blootstelling aan koolteerdamp en asfaltrook.

#### PAK-profielen

Er zijn grote verschillen tussen de profielen van de drie projecten waar verhoogde B(a)P-concentraties in de lucht zijn gemeten (zie tabel 2). De herkomst en de ontstaanswijze van de PAK bepalen in sterke mate het profiel.

Uit het freesstof zijn waarschijnlijk door verdamping en uitloging de meest-vluchtige PAK verdwenen. In het PAK-aerosol bij het aanbrengen van teer-bitumenmengsels worden relatief gezien juist extra veel meer-vluchtige PAK aangetroffen wat waarschijnlijk een gevolg is van verdamping en daarop volgende condensatie. Ook bij het huidonderzoek werden verschillen in profiel gevonden tussen de koudasfaltwerkers en de slijtlaagwerkers. Op de handen van de koudasfaltwerkers werden relatief meer vluchtige PAK (fluoreen) aangetroffen. De verhouding fluoreen : B(a)P was bij de slijtlaagwerkers  $0,7$  (mediaan) tegen  $17$  bij de koudasfaltprojecten.

De verhouding tussen B(a)A en B(a)P bij de huidmonsters is evenals bij de bindmiddel- en/of grondstofmonsters ca.  $1,5$ . Dat is een aanwijzing dat de verontreiniging van de huid vooral een gevolg is van direct of indirect contact met de grondstof en niet met gecondenseerde PAK. De verhouding B(a)A : B(a)P in het luchtmonster van project I (aanbrengen mengsels) was ca.  $110$ .

Een belangrijke conclusie die kan worden getrokken uit de verschillen in profielen is dat men erg voorzichtig moet zijn bij het gebruik van één PAK (pyreen) als indicator voor de blootstelling aan de overige PAK. Indien men daarvan gebruik maakt zal men inzicht moeten hebben in de PAK-profielen en men zal er rekening mee moeten houden dat er bij een groep blootgestelden sprake kan zijn van verschillende profielen afhankelijk van de herkomst/ontstaanswijze van de PAK.

### Urineonderzoek

De 1-hydroxypyreengehaltes liggen bij de koudasfaltwerkers (teer-bitumenmengsels) significant hoger dan bij de slijtlaagwerkers. In vergelijking met voorgaand onderzoek (creosootwerkers; patiënten behandeld met teerzalf) is de door ons gevonden verhoging gering, wat overigens over de blootstelling aan PAK nog weinig zegt gezien mogelijke verschillen in PAK-profiel.

Gemiddeld was het 1-hydroxypyreengehalte in het na-werk monster hoger dan in het voor-werk monster. De toename was echter niet significant en ook de voor-werk monsters gaven een duidelijke verhoging te zien in vergelijking met een controlegroep. Accumulatie van pyreen gedurende een werkweek mag verwacht worden (Jongeneelen 1988).

### Huidonderzoek

Gezien de hoeveelheid PAK die op de huid werd aangetoond moet worden geconcludeerd dat huidblootstelling een belangrijke oorzaak zou kunnen zijn voor opname van PAK in het lichaam. Er bleek een significante correlatie aanwezig te zijn tussen de hoeveelheid PAK op de handen aan het eind van de dag en de hoeveelheid er op de volgende ochtend. Dat was alleen het geval voor de zwaardere PAK: B(a)A en B(a)P. Deze laten zich blijkbaar slecht van de huid verwijderen. Naar schatting wordt met de door ons gehanteerde methode ca. 40 tot 80% van de zwaardere PAK van de huid verwijderd (Aerts 1987).

### Samenhang blootstellingsparameters

Voor de groep slijtlaagwerkers zijn een aantal verbanden onderzocht tussen de diverse blootstellingsparameters. Dat is voor deze groep uitgevoerd aangezien het een grote en relatief homogene groep betrof. De meest opmerkelijke samenhang die werd gevonden was een significante correlatie tussen de hoeveelheid pyreen op de handen en het 1-hydroxypyreengehalte in de urine ( $r$  (spearman) = 0,63;  $p < 0,01$ ). Een zwakkere, maar eveneens significante correlatie werd gevonden tussen 1-OH-pyreen in de urine en pyreen op de polspads ( $r_s = 0,36$ ;  $p < 0,05$ ). Ook pyreen op de polspads en pyreen op de handen waren significant gecorreleerd ( $r_s = 0,68$ ). De mogelijkheid is aanwezig dat pyreen op de pads door de samenhang met pyreen op de handen gecorreleerd is met 1-hydroxypyreen in de urine zonder zelf van invloed te zijn op de 1-hydroxypyreenniveaus.

Of het bij de gevonden samenhang

tussen pyreen op de huid en 1-OH-pyreen in de urine gaat om een oorzaaklijk verband is nog de vraag. Verwacht mag worden dat er meerdere blootstellingsparameters (o.a. de luchtconcentratie) met elkaar samenhangen waardoor het bij het verband tussen huidverontreiniging en 1-hydroxypyreengehalte in de urine kan gaan om een indirecte relatie.

### Representativiteit van de onderzoeksgegevens

Bij de opzet van het onderzoek is niet gestreefd naar representativiteit, maar is er voor gekozen gericht te zoeken naar situaties waar sprake was van blootstelling aan teerhoudende materialen.

Binnen een bepaald project is bij de selectie van filters ten behoeve van PAK-analyse steeds gekozen voor een filter dat naar verwachting van de onderzoekers het sterkst verontreinigd zou zijn.

De meteorologische omstandigheden waren niet representatief voor de gemiddelde situatie aangezien er tijdens de meetdagen sprake was van veel wind. Volgens de werknemers doen zich af en toe situaties voor met hoge blootstellingsniveaus bij windstil weer.

### Conclusies

Bij het werken met teerprodukten in de wegenbouw worden verhoogde gehalten 1-hydroxypyreen in de urine gemeten. Bij het aanbrengen van mengsels werden hogere waarden gevonden dan bij het aanbrengen van slijtlagen. Het verhoogde niveau laat zien dat er sprake is van opname van PAK.

In een aantal luchtmonsters werden verhoogde PAK-concentraties vastgesteld met een hoogste waarde voor B(a)P van  $0,31 \mu/m^3$ . De B(a)P-concentraties waren lager dan op grond van literatuurgegevens was verwacht.

Bij het huidonderzoek werden PAK waaronder B(a)P in hoeveelheden tot ca.  $100 \mu$  op de handen aangetoond. Bij de werknemers die met mengsels werkten was, in vergelijking met de slijtlaagwerkers, sprake van een hogere blootstelling aan relatief vluchtige PAK en een lagere blootstelling aan zwaardere PAK.

Verder werd een significant verband vastgesteld tussen de verontreiniging van de huid met PAK en het gehalte 1-hydroxypyreen in de urine aan het eind van de werkdag. Blootstelling van de huid kan voor een deel van de werknemers in de wegenbouw een belangrijke route zijn voor opname van PAK in het lichaam.

Behalve bij het aanbrengen van

teerprodukten is blootstelling aan PAK ook mogelijk bij onderhoud/verwijderen van teerbevattende wegdekken zoals bij het frezen. Het vergelijken van de blootstelling aan PAK op basis van de meting van 1-hydroxypyreen in de urine is alleen toegestaan indien er sprake is van een homogeen blootgestelde groep: blootgesteld aan PAK met hetzelfde blootstellingsprofiel en langs dezelfde blootstellingsroute.

### Naschrift

Het onderzoek was mogelijk dankzij financiële bijdragen van de Stichting Arbouw te Amsterdam en het Directoraat Generaal van de Arbeid te Voorburg.

De auteurs willen iedereen die bij het onderzoek betrokken was bedanken voor hun medewerking.

De resultaten van het onderzoek zijn gepubliceerd in de vorm van een overzichtsrapport door de Stichting Arbouw (Veenstra 1988). Verder zijn de onderzoeksresultaten van de groep slijtlaagwerkers gepubliceerd in Am. Ind. Hyg. Ass. J. (dec. 1988). Een aantal deelrapporten waarin meer in detail wordt ingegaan op meetmethoden e.d. zijn gepubliceerd door de vakgroep Toxicologie van de Katholieke Universiteit te Nijmegen.

### Literatuur

- IARC; Polynuclear Aromatic Compounds: Part 1. IARC - monograph vol. 32, Lyon (1983).
- IARC; Polynuclear Aromatic Compounds: Part 3. IARC - monograph vol. 34, Lyon (1984).
- IARC; Polynuclear Aromatic Compounds: Part 4, IARC - monograph vol. 35, Lyon (1985).
- Jongeneelen, F.J., e.a.; Monitoring van beroepsmatige blootstelling aan polycyclische aromatische koolwaterstoffen. TSG 24 (1985).
- Jongeneelen, F.J., e.a.; 1-Hydroxypyrene in human urine after exposure to coaltar and a coaltar derived product. Int. Arch. Occ. Env. Health (1985).
- Jongeneelen, F.J., e.a.; 1-Hydroxypyrene in urine as a biological indicator of exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons in several work environments. Ann. Occ. Hyg. 32 (1988) 35-43.
- Jongeneelen, F.J., P.T.J. Scheepers, A. Groenendijk, e.a.; Airborne concentrations, skin contamination and urinary metabolite excretion of PAH among paving workers exposed to coal tar derived road tars. Am. Ind. Hyg. Assoc. J. 12 (1988), 600-607.
- Veenstra, S.J.; Blootstelling aan PAK bij het verwerken van steenkoolteer-bevattende produkten in de wegenbouw. Rapport Stichting Arbouw, Amsterdam (1988). ►

