



Bundesministerium  
für Umwelt, Naturschutz  
und Reaktorsicherheit

# SCHRIFTENREIHE REAKTORSICHERHEIT UND STRAHLENSCHUTZ

**QUANTIFIZIERUNG DER INGESTION VON BODEN DURCH KINDER**  
BMU - 2004-647



WIR STEuern UM AUF ERNEUERBARE ENERGIEN.

**BMU – 2004-647**

**„Quantifizierung der Ingestion von Boden durch Kinder“**

**Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik**

**Rosendorf e.V. (VKTA)**

Postfach 51 01 19

01314 Dresden

Dip. –Geol. Matthias Bothe

## **IMPRESSUM**

Dieser Band enthält einen Abschlussbericht über ein vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) gefördertes Vorhaben. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BMU übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Eigentümer behält sich alle Rechte an der weiteren Nutzung oder Vervielfältigung des Berichts vor.

Der Bericht wurde durch den Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik, Dresden, erstellt.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der Auftragnehmer wieder und muss nicht mit der des BMU übereinstimmen.

### **Herausgeber:**

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit  
Arbeitsgruppe RS I 1  
Postfach 12 06 29  
53048 Bonn

ISSN 1612-6386

Erscheinungsjahr: 2004

# **Bericht**

**zum Förderprojekt**

**„Quantifizierung der Ingestion von Boden durch Kinder“**

**Mai 2004**

**Fördernde Institutionen:**

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit  
Bundesamt für Strahlenschutz

**Förderkennzeichen:**

StSch 4286

**Forschungsnehmer:**

Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik  
Rossendorf e.V. (VKTA)  
PF 51 01 19  
01314 Dresden

**Bearbeiter:** Dipl.-Geol. Matthias Bothe

**Bearbeitungszeitraum:**

01.07.2001 – 30.11.2003

Dieser Bericht gibt die Meinung und Auffassung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit) übereinstimmen.

## Kurzfassung

Die direkte Ingestion von Boden kann ein wesentlicher Expositionspfad für Radionuklide und konventionelle Schadstoffe sein. Von besonderer Bedeutung ist dieser Pfad für spielende Kinder. Zur Quantifizierung der Bodeningestion durch Kinder wurden in einem Zeitraum von 12 Tagen Untersuchungen an 22 Probanden in 4 Altersgruppen durchgeführt. Von allen Probanden wurden die Nahrung, der Stuhl und der Boden an den Spielorten beprobt. In den insgesamt etwa 800 Proben wurden die als Tracer ausgewählten Elemente Al, Si, Sc, Ti, Ga, Y, Zr, Nb, La, Ce und Nd mittels Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS) bestimmt. Für jeden Probanden wurden die in einem bestimmten Zeitraum mit dem Stuhl ausgeschiedenen Elementmassen und die im zugehörigen Zeitraum mit der Nahrung aufgenommenen Elementmassen bilanziert. Die Differenz entspricht der Elementmasse, die mit dem Boden aufgenommen wurde. Daraus wurden die Bodeningestionsraten berechnet. Im Bezug auf die Korngrößenfraktionen < 500 µm und < 63 µm des Bodens wurden für die einzelnen Altersgruppen die in der Tabelle aufgeführten Bodeningestionsraten ermittelt. Die Ingestionsraten beziehen sich einerseits auf die Dauer der Untersuchung (Angaben in mg/d) und andererseits auf die reine Spielzeit im Freien (Angaben in mg/h Spielzeit). Die Gesamtunsicherheit (Standardunsicherheit) der Untersuchung beträgt ca. 50 % für die Angaben in mg/d und ca. 60 % für die Angaben in mg/h Spielzeit.

### Mittelwerte der Bodeningestionsraten in den Altersgruppen

Alter [a]	Bodeningestionsrate in mg/d		Bodeningestionsrate in mg/h Spielzeit	
	Fraktion < 500 µm	Fraktion < 63 µm	Fraktion < 500 µm	Fraktion < 63 µm
< 1	22	16	25	17
1 – 2	100	48	31	15
2 – 7	35	20	11	6
7 – 12	57	42	13	9
alle	53	31	19	12

## Summary

Direct ingestion of soil is a possible essential exposition path for radionuclides and toxic substances, in particular for playing children. To quantify the soil ingested by children 22 test persons in 4 age groups were investigated for 12 days. Diet, stool and soil of the playgrounds of all test persons were sampled. The selected tracer elements Al, Si, Sc, Ti, Ga, Y, Zr, Nb, La, Ce and Nd were analyzed by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) in about 800 samples. The masses of the tracer elements in the diet as well as in the stool were calculated for every test person in the investigation period. The difference correlates with the ingested soil. The table shows the calculated soil ingestion rates with reference to the ingested grain size fraction of the soil, < 500 µm and < 63 µm respectively. The soil ingestion rates on the one hand refer to the investigation period (in mg/d) and on the other hand to the absolute outdoor playing time (in mg/h playing time). The combined standard uncertainty is about 50 % for the data in mg/d and about 60 % for the data in mg/h playing time.

### Mean values of soil ingestion rates in the age groups

age [a]	soil ingestion rate in mg/d		soil ingestion rate in mg/h playing time	
	fraction < 500 µm	fraction < 63 µm	fraction < 500 µm	fraction < 63 µm
< 1	22	16	25	17
1 – 2	100	48	31	15
2 – 7	35	20	11	6
7 – 12	57	42	13	9
all	53	31	19	12

## Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung.....	7
2	Konzeption der Studie.....	9
2.1	Grundsätzliches .....	9
2.2	Annahmen.....	9
2.3	Elementauswahl.....	10
2.4	Auswertungsmethodik.....	11
2.5	Randbedingungen bei der Planung .....	13
3	Probandengewinnung und –auswahl .....	16
4	Beobachtung und Probenahme.....	19
4.1	Vorbereitung der Beobachtung und Probenahme.....	19
4.2	Durchführung der Beobachtung und Probenahme .....	21
4.3	Probentransport und Probenlagerung .....	23
4.4	Kennzeichnung der Proben .....	24
5	Probenvorbereitung und Analytik .....	26
5.1	Probenvorbereitung.....	26
5.1.1	Schema der Probenvorbereitung .....	26
5.1.2	Trocknung und Klassierung der Bodenproben.....	26
5.1.3	Klassierung von Hausstaubproben .....	27
5.1.4	Veraschung.....	27
5.1.5	Zerkleinerung und Homogenisierung.....	28
5.1.6	Aufschluss.....	28
5.2	Analytik .....	29
5.3	Maßnahmen zur analytischen Qualitätssicherung .....	31
6	Auswertung der Protokolle und Analysenergebnisse .....	33
6.1	Datenverarbeitung.....	33
6.2	Ermittlung der gastrointestinalen Transitzeiten .....	33
6.3	Erforderliche Korrekturen .....	37
6.4	Aufstellung der Elementbilanzen .....	39
6.5	Berechnung der Bodeningestion .....	40
6.6	Berechnung der Hausstaubingestion.....	45
7	Unsicherheitsbilanz.....	46
8	Zusammenstellung und Diskussion der Ergebnisse .....	49
8.1	Wertung der als Tracer verwendeten Elemente.....	49
8.2	Bodeningestion .....	49
8.3	Hausstaubingestion im Vergleich mit der Bodeningestion .....	62
8.4	Anregungen zu fortführenden Untersuchungen .....	66
9	Zusammenfassung .....	69
10	Danksagung.....	72
11	Literatur.....	73

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 3-1: Übersicht über die Probanden.....	18
Tabelle 4-1: Studienzeiträume und Probenzahlen der Probanden .....	23
Tabelle 5-1: Schema der Probenvorbereitung .....	26
Tabelle 5-2: Elementkonzentrationen im Zertifizierten Referenzmaterial TB-2 und Wiederfindungsraten bei Aufschluss und Analyse .....	32
Tabelle 6-1: Experimentell bestimmte gastrointestinale Transitzeiten .....	34
Tabelle 6-2: Zusammenstellung der experimentell ermittelten und der berechneten gastrointestinalen Transitzeiten .....	36
Tabelle 6-3: Literaturangaben zu gastrointestinalen Transitzeiten .....	36
Tabelle 6-4: Stuhlgangshäufigkeit der Probanden .....	37
Tabelle 6-5: Anteil der Elementmassen in der Nahrung an den Elementmassen im Stuhl ...	43
Tabelle 6-6: Mittlere tägliche Spielzeit im Freien.....	44
Tabelle 7-1: Übersicht über die Unsicherheitskomponenten .....	46
Tabelle 8-1: Zahl der von der Mittelwertbildung ausgeschlossenen Werte.....	49
Tabelle 8-2: Bodeningestion aller Probanden (Fraktion < 500 µm) .....	51
Tabelle 8-3: Bodeningestion aller Probanden (Fraktion < 200 µm) .....	52
Tabelle 8-4: Bodeningestion aller Probanden (Fraktion < 63 µm) .....	53
Tabelle 8-5: Obergrenzen der Bodeningestion aller Probanden (Fraktion < 500 µm).....	54
Tabelle 8-6: Obergrenzen der Bodeningestion aller Probanden (Fraktion < 200 µm).....	55
Tabelle 8-7: Obergrenzen der Bodeningestion aller Probanden (Fraktion < 63 µm).....	56
Tabelle 8-8: Statistische Kenndaten der Verteilung der Bodeningestionsraten .....	59
Tabelle 8-9: Statistische Kenndaten der Verteilung der Bodeningestionsraten aus der Literatur .....	59
Tabelle 8-10: <b>Vorläufige</b> Empfehlungen zu Bodeningestionsraten in den "Standards zur Expositionsabschätzung" [1].....	60
Tabelle 8-11: Bodeningestionsraten für die Korngrößenfraktion < 500 µm und Expositionszeiten aus den Berechnungsgrundlagen - Bergbau [2] .....	61
Tabelle 8-12: Hausstaubingestion aller Probanden.....	63
Tabelle 8-13: Obergrenzen der Hausstaubingestion aller Probanden .....	64
Tabelle 8-14: Statistische Kenndaten der Verteilung der Hausstaubingestionsraten im Vergleich mit den Bodeningestionsraten.....	65
Tabelle 8-15: Mediane und 95 % Quantile der Bodeningestionsraten.....	67
Tabelle 9-1: Mittelwerte der Bodeningestionsraten in den Altersgruppen.....	71
Tabelle 9-2: Statistische Kenndaten der Verteilung der Ingestionsraten .....	71

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 6-1: Mittelwerte der gastrointestinalen Transitzeiten .....	34
Abbildung 6-2: Minimale gastrointestinale Transitzeiten .....	35
Abbildung 8-1: Bodeningestionsraten [ <b>mg/d</b> ], Fraktion < 500 µm.....	57
Abbildung 8-2: Bodeningestionsraten [ <b>mg/d</b> ], Fraktion < 200 µm.....	57
Abbildung 8-3: Bodeningestionsraten [ <b>mg/d</b> ], Fraktion < 63 µm.....	57
Abbildung 8-4: Bodeningestionsraten [ <b>mg/h Spielzeit</b> ], Fraktion < 500 µm.....	58
Abbildung 8-5: Bodeningestionsraten [ <b>mg/h Spielzeit</b> ], Fraktion < 200 µm.....	58
Abbildung 8-6: Bodeningestionsraten [ <b>mg/h Spielzeit</b> ], Fraktion < 63 µm.....	58
Abbildung 8-7: Hausstaubingestionsrate .....	65



## Anlagenverzeichnis

- Anlage 1: Literaturstudie zum Projekt „Quantifizierung der Ingestion von Boden durch Kinder“
- Anlage 2: Übersicht über die Lebensmittel, die den Probanden zur Verfügung gestellt wurden
- Anlage 3: Muster der Protokolle
- Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35
- Anlage 5: Berechnung der Ingestion für jeden Probanden

# 1 Einleitung

Bei der Betrachtung der Exposition des Menschen sowohl durch Radionuklide, als auch durch konventionelle Schadstoffe müssen die verschiedenen Expositionspfade berücksichtigt werden. Eine wichtige Rolle, insbesondere bei Kindern, spielt dabei der direkte Pfad Boden - Mensch. Hierbei kommen drei Wege in Betracht:

- die Aufnahme durch den Mund und das Verschlucken (orale Aufnahme oder Ingestion)
- das Einatmen von Staub (pulmonale Aufnahme oder Inhalation) und
- der Durchtritt durch die Haut (dermale Aufnahme).

Im Folgenden soll entsprechend der Zielstellung nur die orale Aufnahme, d.h. die Ingestion betrachtet werden.

Für diesen Expositionspfad ist die Gruppe der Kinder die sensibelste Personengruppe, da sie auf Grund ihres Verhaltens wahrscheinlich die größte Menge an Boden aufnimmt.

Die Exposition einer Person gegenüber einem Radionuklid oder einem anderen Schadstoff auf dem Weg der Ingestion von Boden lässt sich dann nach den „Standards zur Expositionsabschätzung“ [1] folgendermaßen berechnen:

$$(1) \quad E_s = R_B \cdot t \cdot c_{S,B} \cdot r_s$$

$E_s$	Exposition gegenüber einer Substanz S (Radionuklid oder anderer Schadstoff)
$R_B$	Bodeningestionsrate
$t$	Expositionsdauer
$c_{S,B}$	Konzentration der Substanz S im Boden
$r_s$	dimensionslose Resorptionsquote, die angibt, welcher Anteil der ingestierten Menge der Substanz S in den Organismus aufgenommen wird.

Für die Berechnung der Strahlenexposition durch Ingestion von Boden kann entsprechend den Berechnungsgrundlagen – Bergbau [2] die folgende Gleichung angewendet werden:

$$(2) \quad H = R_B \cdot \sum_O t_O \sum_S (a_{S,B} - a_{S,B}^U) \cdot g_S$$

$H$	effektive Jahresdosis durch Ingestion von Boden
$t_O$	jährliche Aufenthaltszeit am Expositionsort O
$a_{S,B}$	spezifische Aktivität des Radionuklids S im Boden (in der Korngrößenfraktion < 0,5 mm)
$a_{S,B}^U$	spezifische natürliche Untergrund-Aktivität des Radionuklides S im Boden (in der Korngrößenfraktion < 0,5 mm)
$g_S$	Ingestionsdosiskoeffizient für das Radionuklid S.

In beiden Formeln ist die Bodeningestionsrate ein wichtiger Faktor zur Berechnung der Exposition.

Umgekehrt lassen sich mit Hilfe der Bodeningestionsrate aus tolerierbaren Expositionen gegenüber Schadstoffen maximal zulässige Konzentrationen bzw. Prüfwerte der Schadstoffe im Boden ableiten. Für konventionelle Schadstoffe ist das in der „Bekanntmachung über Methoden und Maßstäbe für die Ableitung der Prüf- und Maßnahmewerte nach der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV)“ [3] geregelt. Ähnliches gilt auch für die Exposition gegenüber Radionukliden.

Bisher werden in diesen Anleitungen und Empfehlungen die Bodeningestionsraten für die einzelnen Altersgruppen auf Grund weniger Studien, die im Wesentlichen aus den USA stammen, abgeschätzt. Diese Studien sind alle in der Literaturstudie enthalten, die zu Beginn dieses Projektes angefertigt wurde (siehe Anlage 1). Es ist zu beachten, dass es sich somit um sekundäre Quellen handelt und außerdem die bei den Berechnungsgrundlagen - Bergbau [2] und der zur Bundesbodenschutzverordnung gehörenden Anleitung [3] aufgeführten Werte aus den „Standards zur Expositionsabschätzung“ [1] übernommen bzw. daraus abgeleitet wurden. Ähnliches gilt auch für die Vorgaben zu den Aufenthaltszeiten im Freien. Auch sie sind aus früheren Studien zu Zeitbudgets (Aufenthaltsorte, -zeiten und Aktivitätsmuster) abgeleitet worden. Die primären Quellen sind in den „Standards zur Expositionsabschätzung“ [1] aufgeführt.

## 2 Konzeption der Studie

### 2.1 Grundsätzliches

Vor Beginn der eigentlichen Untersuchungen wurde eine Literaturstudie erstellt, um den bisherigen Stand der Quantifizierung der Bodeningestion zu ermitteln und die Methodik für die Durchführung der Studie zu optimieren. Die Literaturstudie ist in der Anlage 1 zu finden. Im Folgenden wird daher nur auf konkrete Bezüge zu einzelnen Literaturstellen eingegangen.

Entsprechend der Aufgabenstellung des Projektes und der aus der Literatur bekannten günstigsten Strategie soll die Quantifizierung der Bodeningestion indirekt erfolgen. Dabei sollen die Massebilanzen der Aufnahme und Ausscheidung von Elementen genutzt werden, die als Indikatoren für den Boden dienen. Zu diesem Zweck werden alle Nahrungsaufnahmen und alle Stuhlausscheidungen über einen bestimmten Zeitraum beprobt und auf die ausgewählten Elemente analysiert. Aus den Probenmassen und den Elementkonzentrationen werden die aufgenommenen und mit dem Stuhl ausgeschiedenen Elementmassen in diesem Studienzeitraum berechnet. Außerdem werden an den Spielorten Bodenproben genommen und ebenfalls auf die ausgewählten Elemente analysiert. Aus der Differenz zwischen den mit dem Stuhl ausgeschiedenen und den mit der Nahrung aufgenommenen Elementmassen soll mit Hilfe der Elementkonzentrationen im Boden die ingestierte Bodenmenge berechnet werden. Auf die Grundlagen der Berechnung wird im Abschnitt 2.4 „Auswertungsmethodik“ näher eingegangen.

### 2.2 Annahmen

Die Studienkonzeption geht von einigen Annahmen aus, die bei der Vorgehensweise, der Auswahl der als Tracer genutzten Elemente und bei der Interpretation der Ergebnisse zu berücksichtigen sind. Diese Annahmen und die abgeleiteten Konsequenzen für die Studienkonzeption werden im Folgenden erläutert.

1. Die Tracer werden im Gastrointestinaltrakt (Magen-Darm-Trakt) nicht resorbiert.

Als Tracer sollten nur Elemente gewählt werden, von denen nicht bekannt ist, dass sie in relevanten Mengen resorbiert werden. D.h. diese Elemente sollten für den Stoffwechsel weder essentiell noch toxisch sein. Ausnahmen von dieser Regel können dann gemacht werden, wenn auf Grund bisheriger Kenntnisse zu erwarten ist, dass die resorbierte Masse klein gegen die mit der Nahrung bzw. dem Boden aufgenommenen Masse ist.

2. Die Bodenproben entsprechen dem ingestierten Boden hinsichtlich der Tracerkonzentrationen.

Um diese Annahme möglichst gut zu erfüllen, sollen für alle Probanden die Spielorte im Freien und die zugehörigen Spielzeiten im Studienzeitraum erfasst werden. An den relevanten Spielorten sollen Bodenproben entnommen und untersucht werden. Bei mehreren Spielorten eines Probanden ist zu prüfen, ob eine Mittelung über mehrere Spielorte sinnvoll ist.

Durch die Untersuchung mehrerer Korngrößenfraktionen soll versucht werden, die für die Ingestion durch Kinder relevante Korngrößenfraktion zu ermitteln. Wenn dies nicht möglich ist, soll der Bezug der ermittelten Ingestionsraten auf die der Berechnung zugrunde liegende Korngrößenfraktion klar herausgestellt werden. So kann dann für Expositionsberechnungen die Schadstoffkonzentration in der gleichen Korngrößenfraktion bestimmt werden.

3. Die Inhalation und anschließende Ingestion wird vernachlässigt.

Der Anteil der inhalierten Partikel, die von der Nasen- bzw. Bronchialschleimhaut zurückgehalten werden und anschließend über das Nasen- oder Bronchialsekret in den Magen gelangen, kann im Vergleich zur direkten Ingestion als gering angesehen werden.

4. Der Stuhl ist im Studienzeitraum vollständig erfasst worden.

Die Vollständigkeit der Beprobung des Stuhls soll durch die entsprechende Anleitung der Eltern und Betreuer der Probanden sichergestellt werden. Geringfügige Stuhlverluste sollen protokolliert und bei der Berechnung der Elementbilanzen korrigiert werden. Bei Totalverlust eines Stuhlgangs wird die zuzuordnende Nahrungsaufnahme bei der Elementbilanz ebenfalls nicht berücksichtigt.

5. Die Nahrungsduplikatproben sind identisch mit der von den Probanden verzehrten Nahrung.

Die Vollständigkeit der Beprobung der Nahrung soll durch die entsprechende Anleitung der Eltern und Betreuer der Probanden sichergestellt werden.

6. Es hat keine andere Ingestion außer der beprobten Nahrung und des Bodens stattgefunden.

Die Ingestion von Hausstaub kann auf Grund der aus der Literatur bekannten Untersuchungsergebnisse nicht als vernachlässigbar angesehen werden. Wenn die charakteristischen Elementmuster von Boden und Hausstaub deutlich voneinander abweichen, soll versucht werden den Anteil der Hausstaubingestion zu ermitteln. Ist dies nicht der Fall, werden Bodeningestion und Hausstaubingestion alternativ berechnet und miteinander verglichen.

## 2.3 Elementauswahl

Bei der Auswahl der als Tracer geeigneten Elemente wurden auf Grundlage der oben genannten Annahmen folgende Kriterien herangezogen:

1. hohe Konzentration im Boden  
Als untere Grenze wurde eine Konzentration von 10 µg/g im weltweiten Mittelwert für Böden gesetzt.
2. geringe gastrointestinale Aufnahme des Elements  
Dies wurde dann angenommen, wenn in der Literatur nichts über den essentiellen oder toxischen Charakter des Elements für den menschlichen Stoffwechsel bekannt war.

3. Eignung des Elements zur Quantifizierung der Bodeningestion aus der Literatur bekannt
4. sichere Bestimmung mit dem gewählten Analysenverfahren (hier ICP-MS).

Aus der Liste der in der Natur vorkommenden Elemente wurden auf Grund der Kriterien sukzessive Gruppen ungeeigneter Elemente gestrichen:

- Edelgase
- für den menschlichen Stoffwechsel essentielle Elemente
- toxische Elemente
- Elemente mit Konzentrationen unter 10 µg/g Boden
- Elemente, die sich bei früheren Studien als ungeeignet erwiesen hatten.

Im Ergebnis dieser Selektion erschienen die Elemente Sc, Ti, Ga, Y, Zr, Nb, La, Ce und Nd als Tracer für die Quantifizierung der Bodeningestion geeignet. Gegenüber den aus der Literaturstudie (Anlage 1) bekannten Elementen sind noch die Elemente Sc, Ga und Nb hinzugekommen.

Auf Grund der aus der Literatur bekannten Eignung wurden die Elemente Aluminium und Silizium als Tracerelemente ausgewählt, obwohl sie in geringem Maße für den menschlichen Stoffwechsel essentiell bzw. toxisch sind. Die gastrointestinal resorbierten Mengen sind aber im Vergleich zu den aufgenommenen Mengen gering.

Trotz des erheblichen Aufwandes bei der Analyse ist es vorteilhaft, eine möglichst große Anzahl von Elementen in die Untersuchung einzubeziehen. Sie ermöglicht:

- eine gute gegenseitige Kontrolle der Analysen- und Berechnungsergebnisse
- eine Auswahl günstiger Tracer individuell für jeden Probanden, d.h. Einflüsse auf Grund ungünstiger Nahrungszusammensetzung, unerwarteter gastrointestinaler Resorption oder Zufuhr eines Tracers aus einer nicht berücksichtigten Quelle können eliminiert werden
- gegebenenfalls bei stark differierenden Elementmustern die Unterscheidung zwischen Ingestion von Boden und Hausstaub, zwischen verschiedenen Spielorten oder die Ermittlung der ingestierten Korngrößenfraktion.

## 2.4 Auswertungsmethodik

Die der Auswertung zugrunde liegenden Annahmen wurden im Abschnitt 2.2 bereits dargestellt.

Unter der Annahme, dass ein Tracer im Gastrointestinaltrakt nicht oder nur in vernachlässigbarer Menge aufgenommen wird, ist die Summe der Tracermassen in allen Ausscheidungen (Stuhl und Urin) eines betrachteten Zeitabschnitts gleich der Summe der Tracermassen in allen oralen Aufnahmen (Nahrung, Staub- und Bodeningestion) eines zuzuordnenden Zeitabschnitts. Dabei wird auch davon ausgegangen, dass es keine weiteren Quellen der Aufnahme für diesen Tracer gibt. Der betrachtete Zeitabschnitt der Ausscheidungen soll dabei um die mittlere gastrointestinale Transitzeit gegenüber dem zugehörigen Zeitabschnitt der oralen Aufnahme verschoben sein. Die gastrointestinale Transitzeit ist die Zeit, die zwischen der oralen Aufnahme einer Substanz und ihrer Ausscheidung mit dem Stuhl vergangen ist. Sie soll im Rahmen dieser Studie, soweit das bei

den einzelnen Probanden möglich ist, experimentell bestimmt werden. Weitere Informationen dazu sind im Abschnitt 2.5 zu finden.

Die Massebilanz zwischen Aufnahme und Ausscheidung eines Tracers lässt sich mit folgender Gleichung beschreiben:

$$(3) \quad m_{i,S} + m_{i,U} = m_{i,N} + m_{i,B} + m_{i,H}$$

$m_{i,X}$  Masse des Tracers i im Kompartiment X

Kompartimente:

S Stuhl

U Urin

N Nahrung

B Bodeningestion

H Hausstaubingestion

Die Masse des Tracers i in einem Kompartiment X wird nach der Formel

$$(4) \quad m_{i,X} = \sum_{j=1}^n (m_{j,X} \cdot c_{j,i,X})$$

$m_{j,X}$  Masse der Probe j des Kompartiments X

$c_{j,i,X}$  Konzentration des Tracers i in der Probe j des Kompartiments X

n Anzahl der Proben im untersuchten Zeitraum

berechnet.

Auf Grund der Massebilanz nach Formel (3) kann die Tracermasse im ingestierten Boden und Staub aus der Differenz der Tracermassen in den Ausscheidungen und in der Nahrung berechnet werden:

$$(5) \quad m_{i,B} + m_{i,H} = m_{i,S} + m_{i,U} - m_{i,N}$$

In der Studie sollen nur Elemente als Tracer verwendet werden, bei denen eine gastrointestinale Aufnahme und damit die Ausscheidung mit dem Urin bisher nicht bekannt bzw. beim Al und Si im Verhältnis zur Gesamtmasse vernachlässigbar sind. Auch aus den bisher in der Literatur beschriebenen Studien ist bekannt, dass der Urin die als Tracer verwendeten Elemente nur in geringen Mengen enthält. Deshalb kann die Formel (5) vereinfacht werden:

$$(6) \quad m_{i,B} + m_{i,H} = m_{i,S} - m_{i,N}$$

Wenn man die ingestierte Staubmasse zunächst vernachlässigt, kann die Masse der Bodeningestion ermittelt werden, indem die Differenzmasse des Tracers durch die Tracerkonzentration im Boden dividiert wird:

$$(7) \quad m_B = (m_{i,S} - m_{i,N}) / c_{i,B}$$

Alternativ zur Bodeningestion lässt sich die Ingestion von Hausstaub berechnen:

$$(8) \quad m_H = (m_{i,S} - m_{i,N}) / c_{i,H}$$

Die ermittelten Werte für Boden- bzw. Hausstaubingestion lassen sich dann vergleichen und hinsichtlich ihrer Plausibilität werten. Eine Differenzierung der Ingestion von Boden bzw.

Hausstaub lässt sich nur durchführen, wenn sich Boden und Staub in den jeweiligen Konzentrationsverhältnissen einiger Tracer deutlich unterscheiden.

Die Ingestionsraten erhält man, wenn die Massen des ingestierten Bodens bzw. Hausstaubs durch die relevante Zeit dividiert werden:

$$(9) \quad R_B = m_B / t$$

bzw.

$$(10) \quad R_H = m_H / t$$

$R_X$     Ingestionsrate des Kompartiments X  
 $t$         relevante Zeit

Als relevante Zeit kann, wie bei den bisherigen Studien, der Zeitraum (in Tagen) angesehen werden, der durch Stuhlproben und zugeordnete Nahrungsaufnahme belegbar ist. Eine andere Möglichkeit ist der Bezug auf die Spielzeit im Freien in Stunden.

Zur Berechnung werden für jeden Probanden ausschließlich die für ihn relevanten Daten, d.h. Massen, Konzentrationen und Zeiten, verwendet.

## 2.5 Randbedingungen bei der Planung

Für den Erfolg der Studie spielt die Compliance der Probanden, ihrer Eltern und Betreuer, d.h. ihre Bereitschaft zur Mitarbeit und zur Einhaltung festgelegter Regeln, eine entscheidende Rolle. Zur Sicherung einer möglichst guten Compliance wurden bei der Konzeption und Durchführung der Studie folgende Punkte beachtet (der Begriff „Probanden“ schließt bei diesen Punkten die Eltern und Betreuer ausdrücklich mit ein):

- Aufbau eines guten Vertrauensverhältnisses zu den Probanden
- umfassende und verständliche Information der Probanden
- täglicher direkter Kontakt zu den Probanden mit der Möglichkeit für Rückfragen und Wünschen
- Anleitung bei der Durchführung der Probenahme und Protokollierung
- Berücksichtigung von Anregungen und Wünschen der Probanden
- Sicherung der Anonymität im Rahmen der Studie durch Codierung der Proben
- Aufstellung klarer und einfacher Regeln
- geringe Veränderungen am gewohnten Tagesablauf der Probanden
- Minimierung des zusätzlichen Aufwands bei den Probanden
- Bereitstellung aller erforderlichen Lebensmittel und Hilfsmittel (z.B. Verpackungsmaterial, Formulare)
- Zusicherung einer schriftlichen Information über das Ergebnis der Studie
- Zahlung einer angemessenen Aufwandsentschädigung.

Das Konzept baut im Wesentlichen auf früheren, in der Literatur [4, 5, 6] beschriebenen erfolgreichen Studien auf. Deshalb wurde, in Absprache mit dem Auftraggeber, auf eine vorherige Validierung verzichtet.

Bei einigen aus der Literatur bekannten Studien wurde die Nahrungsaufnahme mit Hilfe von Duplikatproben jeder Nahrung erfasst. Dabei hat sich gezeigt, dass die Zufuhr der Tracerelemente mit der Nahrung einen erheblichen Anteil an der mit dem Stuhl



ausgeschiedenen Elementmasse ausmacht. Deshalb ist es erforderlich die Aufnahme der Elemente mit der Nahrung in die Bilanz einzubeziehen. Um den Beprobungsaufwand für die Eltern und Betreuer der Probanden und den Aufwand bei der Probenvorbereitung und Analytik im Labor möglichst gering zu halten, wurden bei unserer Studie die wesentlichen Lebensmittel den Probanden in ausreichender Menge zur Verfügung gestellt. Bei der Auswahl der Lebensmittel haben wir uns sowohl an den Ernährungsgewohnheiten und Vorlieben der Probanden, als auch an den aus der Literatur und einer früheren Studie<sup>1</sup> bekannten Elementkonzentrationen in Lebensmitteln orientiert. Aus diesen Erkenntnissen wurden auch die Regeln abgeleitet, die durch die Probanden bei der Studiendurchführung zu beachten sind (siehe Abschnitt 4.1). Beim Einkauf der Lebensmittel wurden gängige Handelsprodukte, meist Markenware der mittleren Preislage, gewählt. Dabei wurden die Wünsche von Probanden berücksichtigt. Die Anlage 2 enthält eine Übersicht über die den Probanden zur Verfügung gestellten Lebensmittel.

Im Beobachtungszeitraum sollten die für die Studie wesentlichen Elemente des Tagesablaufs (Mahlzeiten, Stuhlgang, Spiel im Freien) und die Ernährung vollständig erfasst werden. Um einerseits Informationsverluste zu minimieren und andererseits den Aufwand für die Protokollierung durch die Eltern und Betreuer gering zu halten, wurden entsprechende Formulare entworfen, die mit geringem Aufwand ausgefüllt werden können. Die Formularentwürfe wurden erst im Kollegenkreis und anschließend durch die Eltern der Probanden auf ihre Verständlichkeit und Praktikabilität überprüft und entsprechend korrigiert. Muster der verwendeten Formulare sind in der Anlage 3 zu finden.

Alle Regeln für die Durchführung der Studie wurden den Probanden, ihren Eltern und Betreuern vorgestellt und ihre Bedeutung für den Erfolg der Studie erläutert. Außerdem wurde entsprechendes kurz gefasstes Informationsmaterial übergeben. Auch hier erfolgte eine vorherige Kontrolle auf Verständlichkeit.

Zur experimentellen Ermittlung der gastrointestinalen Transitzeit, d.h. der Zeit zwischen Aufnahme einer Substanz bis zu Ihrer Ausscheidung mit dem Stuhl, für den jeweiligen Probanden soll ein in der Nahrung vorkommender und im Stuhl leicht festzustellender Tracer verwendet werden. Als solcher Tracer eignet sich Mohn, der in Form von Mohnkuchen von vielen Probanden gern gegessen wird und im Stuhl durch einfache Beobachtung erkannt werden kann. Die Zeitdifferenz zwischen dem Essen des Mohnkuchens und dem ersten Auftreten von Mohnkörnern im Stuhlgang entspricht der Transitzeit des jeweiligen Probanden. Zur Bestimmung der zeitlichen Varianz der Transitzeit wurde dieses Experiment zu Beginn und zu Ende des Studienzeitraums durchgeführt. In günstigen Fällen konnte der Mohn so als „Start-“, bzw. „Endsignal“ des Studienzeitraums dienen. Die Unsicherheit der Transitzeit ist einer der wesentlichen Unsicherheitskomponenten bei der Bestimmung der Bodeningestion, da durch sie erst der Zusammenhang zwischen Nahrungsaufnahme und Ausscheidung mit dem Stuhl hergestellt wird. Durch Ungenauigkeiten bei der Ermittlung der Transitzeit verschiebt sich der Zeitraum der Nahrungsaufnahme, die einem bestimmten Stuhlgang zugeordnet wird. Dadurch kommt es möglicherweise zu größeren Schwankungen der Differenz zwischen der mit dem Stuhl ausgeschiedenen Elementmasse und der Elementmasse in der Nahrung, die der auf Grund der Transitzeit dem Stuhlgang zugeordnet wird.

Die Transitzeiten können sowohl zwischen den Probanden, als auch bei den einzelnen Probanden an den einzelnen Tagen große Unterschiede aufweisen. Das zeigt sich auch daran, dass Kinderärzte bei Kleinkindern eine Spannweite von drei Stuhlgängen pro Tag bis zu einem Stuhlgang alle drei Tage als Normalbereich ansehen.

---

<sup>1</sup> An dieser Stelle sei den Mitarbeitern des Internationalen Hochschulinstitutes Zittau gedankt für die zur Verfügung gestellten noch unveröffentlichten Elementkonzentrationen in Lebensmitteln, die im Rahmen des BfS-Förderprojektes „Transfer von Elementen in die Muttermilch“ (Kennzeichen StSch 4258) ermittelt worden.

Wenn man den Studienzeitraum als Ganzes betrachtet, wirken sich die Unsicherheiten bei der angenommenen Transitzeit nur zum Beginn und zum Ende des Zeitraums aus, da sich hier die den Stuhlproben zuzuordnende Nahrung verändert. Vor allem aus diesem Grund haben sich bei früheren Studien [4, 5, 6] kurze bzw. unterbrochene Studienzeiträume als unvoreilhaft erwiesen. Noch größere Unsicherheiten ergeben sich, wenn versucht wird, die Bodeningestion tageweise zu berechnen, da sich hier neben den Unsicherheiten bei der angenommenen Transitzeit auch deren zeitliche Veränderlichkeit auswirkt. Aus diesem Grund sollte ein möglichst langer und zusammenhängender Zeitraum gewählt werden. Dabei ist allerdings auch zu berücksichtigen, dass sich zu lange Zeiträume negativ auf die Compliance der Probanden auswirken. Der hier gewählte Zeitraum von in der Regel 12 Tagen liegt deutlich über dem der bisherigen Studien (zweimal 5 Tage bei der AMHERST-Studie [4] bzw. 7 Tage bei der ANACONDA Studie [5]) hat aber zu keinen Problemen hinsichtlich der Bereitschaft und Zuverlässigkeit der Probanden geführt.

In Absprache mit dem Auftraggeber sollte der Zeitraum für die Durchführung der Studie so gewählt werden, dass möglichst hohe Ingestionsraten zu erwarten sind. Aus diesem Grund wurde der Beginn der Sommerferien für die Beobachtung und Beprobung Ende Juni/ Anfang Juli 2002 genutzt. In dieser Zeit ist eher warmes und trockenes Wetter zu erwarten, so dass die Aufenthalts- und Spielzeit im Freien verhältnismäßig hoch ist, die Probanden eher Spiele mit häufigem und intensivem Bodenkontakt durchführen und auch der trockene Boden hohe Ingestionsraten erwarten lässt. Außerdem ist auf Grund der Schulferien bei den schulpflichtigen Kindern die Zeit für Spiele im Freien größer und die Probenahme in der häuslichen Umgebung leichter durchzuführen als in der Schule.

Im Unterschied zu den aus der Literatur bekannten Studien wurden für alle Kompartimente, d.h. Nahrung, Stuhl, Boden und Hausstaub, die gleichen Prozeduren zur Veraschung und zum Aufschluss gewählt, um eine möglichst gute Vergleichbarkeit der Analyseergebnisse zu sichern.

### 3 Probandengewinnung und –auswahl

Im April 2002 wurden zunächst am Forschungsstandort Rossendorf, zu dem neben dem Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rossendorf auch das Forschungszentrum Rossendorf und andere Einrichtungen gehören, per Aushang und per e-mail an alle Mitarbeiter nach Interessenten für die Teilnahme an der Studie gesucht. Es wurde gebeten, in der Familie, in der Verwandtschaft und im Bekanntenkreis geeignete Probanden zu suchen, die bereit sind gegen eine angemessene Aufwandsentschädigung an einer beobachtenden Studie teilzunehmen. Neben Angaben zum Zweck der Studie wurde darüber informiert, dass bei der Studie über einen Zeitraum von reichlich einer Woche Stuhlproben gesammelt und Daten zum Ernährungs- und Spielverhalten erfasst werden sollen. Außerdem waren alle Angaben für die Kontaktaufnahme mit dem Studienleiter enthalten. Durch die Suche im Kollegenkreis wurde versucht, die Hemmschwelle zur Teilnahme an einer Studie und den logistischen Aufwand für die Durchführung gering zu halten.

Anschließend wurden in je zwei Kindergärten in Dresden und dem Schönfelder Hochland, einem ländlichen Bereich östlich von Dresden, nach Rücksprache mit den zuständigen Leiterinnen Aushänge mit dem gleichen Aufruf angebracht. Positive Rückmeldungen gab es allerdings nur aus einem Kindergarten in Dresden.

Bis Ende Mai 2002 hatten sich die Eltern von insgesamt 51 möglichen Probanden als Interessenten an der Studie gemeldet. Die Verteilung auf die Altersgruppen sieht folgendermaßen aus:

0 – 1 Jahr	7 Kinder
1 – 2 Jahre	8 Kinder
2 – 7 Jahre	23 Kinder
7 – 12 Jahre	13 Kinder.

An die Eltern wurden eine ausführlichere Information (1 A4-Seite) zum Zeitraum der Studie, zu den Modalitäten der Durchführung und zur Höhe der Entschädigung sowie ein Fragebogen geschickt. Im Fragebogen wurde um Auskünfte zu folgenden Fragenkreisen gebeten:

- Name, Anschrift, Telefonnummer, e-mail-Adresse
- Geburtsdatum des Kindes
- Zahl der weiteren Kinder
- Besuch einer Kindertageseinrichtung (Adresse)
- Anwesenheit im Studienzeitraum
- Stuhlgang auf der Toilette, dem „Töpfchen“ oder Benutzung von Windeln
- regelmäßige Einnahme von Medikamenten
- Verwendung von Fertignahrung („Gläschen“) bei Kleinkindern
- Wohnung und Wohnumfeld (Garten, Bodenart)
- Anzahl der häufig genutzten Spielorte und geschätzte tägliche Spielzeit im Freien.

Auf die vertrauliche Behandlung der Angaben und die Möglichkeit der Rückfrage beim Studienleiter wurde hingewiesen.

Auf Grund der erhaltenen Informationen wurden nun die Probanden ausgewählt. Zuerst mussten alle Probanden ausgeschlossen werden, die abgesagt hatten bzw. die im Großteil des Studienzeitraums verreisen wollten.

Aus logistischen Gründen wurden Probanden, die nicht im Zentrum, im Osten oder Süden der Stadt Dresden oder im Schönfelder Hochland und der Umgebung von Radeberg

wohnen, nicht berücksichtigt, zumal in den betreffenden Altersgruppen ausreichend Probanden zur Verfügung standen.

Bei der weiteren Auswahl der Probanden wurden folgende Kriterien herangezogen:

- möglichst gleiche Zahl von männlichen und weiblichen Probanden in jeder Altersgruppe
- möglichst Probanden aus jeder Wohnlage (Stadt, Stadtrand, ländlicher Bereich) in jeder Altersgruppe
- Probanden möglichst über das gesamte Altersspektrum der Gruppen verteilt
- keine Geschwister in der gleichen Altersgruppe als Probanden
- Probanden in möglichst nur einer Kindertagesstätte.

Entsprechend der Aufgabenstellung sollten in jeder Altersgruppe mindestens 5 Probanden beobachtet und beprobt werden. Um einerseits den Ausfall von Probanden während der Studie zu tolerieren und andererseits den Aufwand zu begrenzen, wurde auf 6 Probanden je Altersgruppe orientiert. Bei der Altersgruppe 0 – 1 Jahr konnten auf Grund der geringen Zahl von Interessenten nur 5 Probanden ausgewählt werden. Auf den von uns gewählten Wegen zur Probandenfindung war der Zugang zu Kindern dieser Altersgruppe eingeschränkt, da deren Mütter meist nicht arbeiten und die Kinder noch nicht in einem Kindergarten sind.

In der Tabelle 3-1 sind die 23 ausgewählten Probanden mit Ihren Merkmalen zusammengefasst. Die Probanden wurden mit zweistelligen Nummern codiert, die während der Beobachtung und Beprobung, der Probenvorbereitung und der Auswertung beibehalten wurden. Die erste Ziffer kennzeichnet dabei die Altersgruppe, zu der der Proband gehört:

1	0 – 1 Jahr
2	1 – 2 Jahre
3	2 – 7 Jahre
4	7 – 12 Jahre

Die zweite Ziffer ist eine fortlaufende Nummer innerhalb der Altersgruppe.

Tabelle 3-1: Übersicht über die Probanden

Proband Nr.	Alter [a]	Geschlecht		Wohnlage			Geschwister in der Studie	Kindergarten Tagesmutter
		m	w	Stadt	Stadt-rand	Land		
<b>Altersgruppe 1 (0 – 1 Jahr)</b>								
11	0,75	m			x			
12	0,83		w		x			
13	0,75		w	x				
14	0,58	m			x			
15	0,33		w	x			Nr. 35	
Gruppe 1		2	3	2	3	0		
<b>Altersgruppe 2 (1 – 2 Jahre)</b>								
21	1,66	m		x				
22	1,58		w		x			
23	1,33		w			x		
24	1,83		w		x		Nr. 33, 43	
25	1,00	m				x		
26	1,00	m		x				Tagesmutter
Gruppe 2		3	3	2	2	2		
<b>Altersgruppe 3 (2 – 7 Jahre)</b>								
31	5,75	m			x			Kindergarten
32	2,08	m				x		
33	3,75	m			x		Nr. 24, 43	Kindergarten
34	6,83		w		x		Nr. 44	
35	2,42		w	x			Nr. 15	
36	4,66		w	x				Kindergarten
Gruppe 3		3	3	2	3	1		
<b>Altersgruppe 4 (7 – 12 Jahre)</b>								
41	9,42	m				x		
42	11,00		w			x		
43	7,00	m			x		Nr. 24, 33	
44	8,92	m			x		Nr. 34	
45	11,83		w			x		
46	8,75	m		x				
Gruppe 4		4	2	1	2	3		
Gesamt		12	11	7	10	6		

Am ersten Tag der Studie haben sich die Eltern von Proband Nr. 25 entschieden nicht an der Studie teilzunehmen, so dass sich die Zahl der Probanden auf 22 verringerte.

## 4 Beobachtung und Probenahme

### 4.1 Vorbereitung der Beobachtung und Probenahme

Der Beobachtung und Probenahme lag folgender Plan zu Grunde. Über den gesamten Studienzeitraum, der planmäßig 12 Tage umfasste, wurde das Verhalten der Probanden, insbesondere die Nahrungsaufnahme, das Spiel im Freien und der Stuhlgang mit Hilfe von Protokollen erfasst (Muster als Anlage 3.1). Zusätzlich wurde notiert, wann das Kind in den drei Tagen vor Studienbeginn Stuhlgang hatte. Zur Protokollierung des Verhaltens und der Ernährung der Probanden wurden folgende Hinweise gegeben:

1. Die Erfassung der Zeiten reicht mit einer Genauigkeit von Viertelstunden.
2. Die Angabe der Spielorte im Freien erfolgt mit den im Formulkopf angegebenen Nummern. Für noch nicht genannte Spielorte können neue Nummern vergeben werden.
3. Die anderen Tätigkeiten können im Tagesprotokoll durch Ankreuzen gekennzeichnet werden.
4. Im Ernährungsprotokoll soll in jede Zeile nur ein Lebensmittel eingetragen werden. In der Spalte „roh“ wird die Masse des nicht zubereiteten Lebensmittels (z.B. ungekochte Nudeln) angegeben, in der Spalte „fertig gesamt“ die Masse des zubereiteten Lebensmittels (z.B. gekochte Nudeln) und in der Spalte „Anteil Kind“ die Masse des zubereiteten Lebensmittels, die das Kind verzehrt hat.

Vom 1. bis zum 11. Tag sollten bei der Ernährung der Probanden folgende Regeln beachtet werden:

1. Art und Masse der zu den einzelnen Mahlzeiten aufgenommenen Lebensmittel werden im Formular „Ernährungsprotokoll“ (Anlage 3.2) notiert. Dazu werden die Lebensmittel, wenn erforderlich, gewogen.
2. Bei der Protokollierung brauchen folgende Lebensmittel nicht berücksichtigt werden, da sie auf Grund bereits vorliegender Informationen die Tracerelemente nur in zu vernachlässigenden Mengen enthalten:
  - Getränke
  - Zucker, Honig
  - Butter und andere Fette
  - Gewürze
  - Weintrauben
3. Wegen eventuell anhaftender Bodenpartikel oder hoher Konzentrationen der Tracerelemente sollen folgende Lebensmittel nicht aufgenommen werden:
  - Blattgemüse (z.B. Salat, Mangold, Spinat, Porree, Petersilie, Schnittlauch)
  - Ungeschältes Wurzelgemüse (z.B. Möhren, Sellerie, Kartoffeln)
  - Ungewaschenes sonstiges Gemüse
  - Ungewaschenes Obst (z.B. Erdbeeren)
  - Kokosnuss, Kokosraspeln
  - Walnüsse
  - Sesam
  - Rosinen, Korinthen u.ä.
  - Kaugummi
  - Vitamintabletten
4. Wenn möglich, sollen ausnahmslos die für die Studie allen Probanden zur Verfügung gestellten Lebensmittel verwendet werden, weil sie so nur einmal untersucht werden müssen.

5. Wenn andere als die zur Verfügung gestellten oder die unter 2. aufgeführten Lebensmittel verwendet werden, so ist eine in Art und Masse gleiche Duplikatprobe für die Untersuchung im Labor abzugeben. Diese Probe ist in Plastebeuteln mit Verschlussclips dicht zu verschließen und in dicht schließenden Polyethyldosen (1000 ml) aufzubewahren. Auf den Etiketten ist bereits die Probandennummer vorgedruckt, Probenahmedatum und -uhrzeit sind zu ergänzen.

Um die unkontrollierbare Aufnahme der Tracerelemente über die Zahnpasta zu minimieren, wurde den Probanden Zahnpasta der Marke „Putzi“ zur Verfügung gestellt. Diese wies bei Voruntersuchungen von den 7 untersuchten Zahnpasten die niedrigsten Konzentrationen der relevanten Tracerelemente Si und Ti auf.

Vom 2. bis 12. Tag der Studie sollten die Stuhlproben genommen werden. Wenn der Proband am 12. Tag keinen Stuhlgang hatte, sollte der nächstfolgende Stuhlgang beprobt werden. Zur Probenahme wurden folgende Hinweise gegeben:

1. Der Stuhl soll möglichst vollständig erfasst werden. Der nicht erfasste Teil des Stuhls soll prozentual geschätzt werden.
2. Die Stuhlproben sollen ohne Verunreinigungen und Toilettenpapier gesammelt werden. Urin stört hingegen nicht. Zur Vermeidung von Verunreinigungen des Stuhls soll auf die Verwendung von Pudern und Cremes im Analbereich verzichtet werden.
3. Die Stuhlproben sind in Plastebeuteln mit Verschlussclips dicht zu verschließen und in dicht schließenden Polyethyldosen (1000 ml) aufzubewahren. Auf den Etiketten ist bereits die Probandennummer vorgedruckt, Probenahmedatum, -uhrzeit und der geschätzte Stuhlverlust in % sind zu ergänzen. Alle Probenahmeutensilien werden den Probanden zur Verfügung gestellt.
4. Die Plastebeutel sind so groß, dass sie über die Toilettenbrille gezogen werden können, um die Sammlung zu erleichtern.
5. Bei der Verwendung von Windeln soll möglichst im Studienzeitraum je Proband nur eine Windelsorte eingesetzt werden. Von dieser ist eine frische Windel als Muster abzugeben. Nach dem Stuhlgang ist die Windel von außen von lockerem Schmutz zu säubern. Der Stuhl ist mit dem bereitgestellten Plasteschaber möglichst vollständig aus der Windel in den Plastebeutel zu überführen. Stuhlprobe und Windel sind, wie unter 3. beschrieben, zu verpacken. Die Angabe des Stuhlverlustes bezieht sich auf den Anteil, der sich weder in der Stuhlprobe noch in der Windel befindet.

Die wärmeempfindlichen Nahrungsduplikats- und Stuhlproben wurden bei den Probanden in wärmeisolierten Kartons mit vorher eingefrorenen Kühlakkus gelagert und täglich abgeholt.

Der Kontakt zu den Probanden wurde in der Stadt Dresden durch den Leiter der Studie und bei den Probanden aus dem Schönfelder Hochland und der Umgebung von Radeberg durch eine zweite Betreuerin gehalten. Diese beiden Kontaktpersonen waren auch für die logistische Betreuung während des Studienzeitraums verantwortlich, d.h. für die Versorgung mit Lebensmitteln, Protokollformularen und Probenbehältern und die Abholung der Proben. Sie standen auch für Rückfragen und zur Klärung von Problemen zur Verfügung.

In der Woche vor Beginn des Studienzeitraums wurden die Eltern und Betreuer der Probanden jeweils zu Hause bzw. im Kindergarten durch den Leiter der Studie detailliert in die oben aufgeführten Regeln zur Ernährung, Beprobung und Protokollierung eingewiesen. Bei dieser Einweisung war bei den Probanden aus dem Schönfelder Hochland und der Umgebung von Radeberg auch die zweite Betreuerin anwesend. Als Gedächtnisstütze erhielten sie Informationsblätter zum Ablauf der Studie, zu Ernährungsregeln, zur Beprobung des Stuhls und zur Führung der Protokolle. Außerdem wurde ein Merkblatt ausgehändigt, auf dem die wichtigsten Regeln und die Kontaktmöglichkeiten zum Leiter der Studie und zur jeweiligen Kontaktperson zusammengefasst waren. Es wurde besonders darauf hingewiesen, dass alle Abweichungen von den Regeln, besonders der Verlust von Proben

gewissenhaft zu dokumentieren sind, um die verlässliche Auswertung und damit den Erfolg der Untersuchung zu ermöglichen. Bei Probanden, bei deren Betreuung auch der Kindergarten bzw. eine Tagesmutter beteiligt waren, wurde die Aufteilung der Aufwandsentschädigung zwischen den Eltern und den Betreuern vereinbart.

Auch nach dieser Information erklärten sich alle Eltern und Betreuer der ausgewählten Probanden bereit, an der Studie mitzuwirken, die Verhaltensmaßregeln einzuhalten und Abweichungen zu protokollieren.

Bei diesen Beratungen wurden zusätzlich noch weitere Informationen zu den Probanden und zum Haushalt erfragt:

- typische Spielorte (Den Spielorten wurden fortlaufende Nummern zugeordnet, die dann mit Nennung des Ortes im Kopf des Formulars „Tagesprotokoll“ für jeden Probanden aufgeführt wurden.)
- Spielverhalten im Freien (Art und Intensität des Spiels, Handkontakt mit dem Boden, Kontakt der Hände mit dem Mund)
- Vorlieben für Lebensmittel an Hand einer Liste
- Einnahme von Medikamenten bzw. Nahrungsergänzungstoffen (Fluor, Vitamin D)
- Verwendung von Körperpuder beim Windeln
- Besitz einer Küchenwaage mit der Genauigkeit von 1 g oder besser
- Aufbewahrungsmöglichkeit von tiefgekühlten Lebensmitteln
- Besitz eines Staubsaugers.

Weiterhin wurden die Termine für den Studienbeginn, die Anlieferung der Erstausrüstung an Lebensmitteln und Verpackungs- und Aufbewahrungsmaterialien sowie die tägliche Abholung der Proben vereinbart.

## 4.2 Durchführung der Beobachtung und Probenahme

Im Zeitraum vom 11.6.2002 bis zum 3.7.2002 wurde bei allen Probanden die Beobachtung und Probenahme durchgeführt. Dabei wichen die Beobachtungs- und Probenahmeperioden bei den einzelnen Probanden auf Grund der persönlichen Situation (Urlaub, Krankenhausaufenthalt) sowohl hinsichtlich des Beginns, als auch der Länge geringfügig voneinander ab. Eine Übersicht dazu ist in der Tabelle 4-1 enthalten.

Im Beobachtungszeitraum war das Wetter sonnig und niederschlagsfrei bei Temperaturen von 25 bis 32 °C.

Am Vortag des Beobachtungszeitraums wurden an alle Probanden die erforderlichen Materialien ausgeteilt:

- Tages- und Ernährungsprotokolle
- Lebensmittel
- Verpackungsmaterial (Plastebeutel, Verschlussclips, Polyethyldosen)
- Plasteschaber (bei der Benutzung von Windeln)
- wärmeisolierte Kartons mit Kühlakkus zur Probenaufbewahrung
- Oberschalenwaage (bei Haushalten ohne Küchenwaage)



Die Proben wurden täglich durch die Kontaktpersonen abgeholt oder, wenn dies für die Eltern der Probanden günstiger war, durch diese im Labor angeliefert. Während des Studienzeitraums wurden bei Bedarf Lebensmittel, Protokolle und Verpackungsmaterial nachgeliefert.

Am Ende des Studienzeitraums wurden bei allen Probanden die nur während dieses Zeitraums verwendeten Staubbeutel aus den Hausstaubsaugern eingesammelt. Ebenso wurden frische Windeln als Muster eingesammelt.

Die Beprobung der Böden an den Spielorten der Kinder wurde nach Auswertung der Tagesprotokolle an den für die Studie relevanten Spielorten durchgeführt. Als relevant wurden in der Regel Spielorte betrachtet, wenn die Probanden dort mindestens fünf Stunden im Freien gespielt haben. Für die Bodenprobe wurden auf der gesamten zum Spielen genutzten Fläche mindestens 8 Teilproben der obersten Schicht (ca. 2 - 5 cm) an verschiedenen Stellen der Fläche entnommen. Der Boden wurde dazu mit einer Metallschaufel in eine PVC-Fotoschale gegeben. Die Gesamtmenge, ca. 2 Liter je Gesamtprobe, wurde vor Ort durch mehrfaches Umschütten zwischen zwei Fotoschalen und mischen von Hand homogenisiert und anschließend möglichst verlustfrei in zwei Polyethyldosen (1000 ml) gefüllt und dicht verschlossen. An folgenden Spielorten wurden keine Proben entnommen:

- Spielorte mit geringer Wahrscheinlichkeit der Bodenberührung z.B. beim Rad fahren
- Spielorte mit großer Ausdehnung, bei denen der Aufenthaltsort des Probanden stark variierte z.B. Elbhangfest in Dresden, Wanderung in der Sächsischen Schweiz.

Insgesamt wurden bei den 22 Probanden 848 Proben genommen:

- 102 Lebensmittelproben
- 152 Nahrungsduplikatproben
- 326 Stuhlproben
- 14 Windelmuster
- 198 benutzte Windeln
- 36 Bodenproben
- 20 Hausstaubproben.

Die Probenzahlen für die einzelnen Probanden sind in Tabelle 4-1 aufgeführt.

Tabelle 4-1: Studienzeiträume und Probenzahlen der Probanden  
KG Kindergarten

Proband Nr.	Studienzeitraum		Probenzahl					
	Beginn	Dauer [d]	Nahrungs- duplikate	Stuhl	benutzte Windeln	Windel- muster	Boden	Haus- staub
11	11.6.02	10	-	26	26	2	1	1
12	20.6.02	12	1	18	3	1	1	1
13	20.6.02	12	-	12	12	1	1	1
14	20.6.02	12	-	37	32	1	3	1
15	21.6.02	12	-	9	-	1	1	1
21	20.6.02	12	-	20	20	1	1	1
22	22.6.02	12	4	8	8	1	1	1
23	20.6.02	12	29	18	18	2	1	1
24	20.6.02	12	4	14	14	1	3	1
26	20.6.02	12	1	34	30	1	3	2
31	20.6.02	12	11	17	-	-	2	1
32	20.6.02	12	19	21	20	1	1	1
33	20.6.02	12	7 <sup>2)</sup>	9	-	-	- <sup>1)</sup>	- <sup>1)</sup>
34	20.6.02	12	7	8	-	-	2	1
35	20.6.02	12	5	15	15	1	- <sup>1)</sup>	- <sup>1)</sup>
36	20.6.02	12	3	11	-	-	1	1
41	20.6.02	12	1	11	-	-	3	1
42	20.6.02	12	5	8	-	-	2	1
43	20.6.02	12	7 <sup>2)</sup>	6	-	-	2 <sup>2)</sup>	- <sup>1)</sup>
44	20.6.02	12	6 <sup>2)</sup>	8	-	-	- <sup>1)</sup>	- <sup>1)</sup>
45	20.6.02	12	11	10	-	-	2	1
46	20.6.02	13	7	6	-	-	3	1
KG			24	-	-	-	2	1
Summe			152	326	198	14	36	20

<sup>1)</sup> Keine gesonderte Probe genommen, weil ein Geschwisterkind an der Studie teilnahm (siehe Tabelle 3-1).

<sup>2)</sup> Hier sind nur die Proben aufgeführt, die zusätzlich zu den Proben beim Geschwisterkind genommen wurden.

### 4.3 Probentransport und Probenlagerung

Die wärmeempfindlichen Nahrungsduplikat- und Stuhlproben wurden bei den Probanden in wärmeisolierten Kartons mit vorher eingefrorenen Kühlakkus gelagert und täglich abgeholt. Der Transport erfolgte ebenfalls in wärmeisolierten Transportkisten mit Kühlakkus. Auf diese Weise wurden unerwünschte Veränderungen der Proben verhindert und die Geruchsbelästigung vermindert.

Die Nahrungsduplikat- und Stuhlproben wurden ebenso wie wärmeempfindliche Lebensmittelproben im Labor in Gefriertruhen eingefroren und bis zur Vorbereitung für die Analytik gelagert.

Die Lagerung der anderen Proben erfolgte in der Originalverpackung (Lebensmittel) bzw. in geschlossenen Polyethyldosen (1000 ml) bei Raumtemperatur.

#### 4.4 Kennzeichnung der Proben

Vor der Vorbereitung der Proben für die Analytik wurden die Proben mit Haftetiketten mit den endgültigen Probenbezeichnungen versehen.

Zur eindeutigen Kennzeichnung von Proben und zur leichten Zuordnung zu den Probanden und zum zeitlichen Ablauf der Untersuchung wurden die Proben nach folgendem Schema benannt:

Der Buchstabe am Anfang (bei Lebensmitteln) oder in der Mitte (bei allen anderen Proben) der Probenbezeichnung steht für die Probenart. Die vorangestellte Zahl entspricht der Probandennummer. Für Proben aus dem Kindergarten wurde an Stelle der Probandennummer „KG“ vorangesetzt. Die nachgestellte Zahl kennzeichnet die Probe, sie ist bei Lebensmitteln, Boden, Hausstaub und Windelmustern eine fortlaufende Nummer bzw. entspricht bei Nahrungsduplikaten und Stuhl der Zeitdifferenz in Stunden zwischen dem Startpunkt (0 Uhr des ersten Beprobungstages des jeweiligen Probanden) und dem Probenahmezeitpunkt. Bei Nahrungsduplikaten und Stuhlproben sind zur weiteren Unterscheidung Zahlen bzw. Buchstaben angefügt.

Im Folgenden werden die Probenkennzeichnungen für die einzelnen Probenarten an einem Beispiel erläutert:

##### **Lebensmittel**

L 11 Die Nummer wurde fortlaufend für die einzelnen Lebensmittel vergeben.  
Anmerkung: bei der Probe L 85 (Äpfel) wurde zwischen zwei Zubereitungsarten L 85 (ungeschält) und L 85 B (geschält) unterschieden

##### **Nahrungsduplikate**

11 D 8 / 1 Die Zahl vor dem Buchstaben entspricht der Probandennummer.  
Die Zahl nach dem Buchstaben ist die Zeitdifferenz in Stunden zwischen Startpunkt und Probenahmezeitpunkt.  
Wenn zu einem Zeitpunkt mehrere Nahrungsduplikate genommen wurden, sind diese nach einem Schrägstrich durch eine fortlaufende Zahl gekennzeichnet.

##### **Stuhl**

11 S 8 W Die Zahl vor dem Buchstaben entspricht der Probandennummer.  
Die Zahl nach dem Buchstaben ist die Zeitdifferenz in Stunden zwischen Startpunkt und Probenahmezeitpunkt.  
Wenn die Stuhlprobe nicht von der Windel getrennt werden konnte, ist das durch ein nachgestelltes „W“ gekennzeichnet. Diese Proben wurden wie Stuhlproben behandelt.

##### **benutzte Windeln**

11 W 10 Die Zahl vor dem Buchstaben entspricht der Probandennummer.  
Die Zahl nach dem Buchstaben ist die Zeitdifferenz in Stunden zwischen Startpunkt und Probenahmezeitpunkt.

**Windelmuster**

11 W 1 Die Zahl vor dem Buchstaben entspricht der Probandennummer.  
Die Zahl nach dem Buchstaben kennzeichnet das Windelfabrikat bei jedem Probanden: 1 für das im Studienzeitraum zuerst und 2 für das anschließend verwendete Fabrikat.

**Boden**

11 B 1 Die Zahl vor dem Buchstaben entspricht der Probandennummer.  
Die Zahl nach dem Buchstaben ist eine fortlaufende Nummer für den Spielort bei jedem Probanden.

**Hausstaub**

11 H 1 Die Zahl vor dem Buchstaben entspricht der Probandennummer.  
Die Zahl nach dem Buchstaben ist eine fortlaufende Nummer für den Probenahmeort bei jedem Probanden.

## 5 Probenvorbereitung und Analytik

### 5.1 Probenvorbereitung

#### 5.1.1 Schema der Probenvorbereitung

Um systematische Fehler zu vermeiden, wurden, im Unterschied zu früheren Studien, alle Proben in der gleichen Weise für die Analytik vorbereitet. Das Schema für die Probenvorbereitung ist für die einzelnen Probenarten in der Tabelle 5-1 dargestellt. Die Einzelheiten der Arbeitsschritte werden anschließend beschrieben.

Tabelle 5-1: Schema der Probenvorbereitung

Probenart	Arbeitsschritt				
	Trocknung	Klassierung	Veraschung	Zerkleinerung, Homogenisierung	Aufschluss
Lebensmittel			X	X	X
Nahrungsduplikate			X	X	X
Stuhl			X	X	X
benutzte Windeln			X		
Windelmuster			X	X <sup>1)</sup>	X <sup>1)</sup>
Boden	X	X	X	X	X
Hausstaub		X	X	X	X

<sup>1)</sup> nur bei den Probanden, bei denen sich die Stuhlproben nicht von der Windel lösen ließen

Zur Probenvorbereitung wurden nur Geräte und Materialien eingesetzt, die keinen relevanten Eintrag der zu untersuchenden Elemente verursachen können.

#### 5.1.2 Trocknung und Klassierung der Bodenproben

Die Bodenproben wurden ca. 8 Stunden bei 105 °C in Polypropylenschalen im Trockenschrank getrocknet und in Polyethyldosen gefüllt.

Vor der Klassierung wurden Kornagglomerationen von Hand weitestgehend geteilt. Danach wurden in aufeinanderfolgenden Siebschritten folgende Korngrößenklassen hergestellt:

Siebung der gesamten Probe (ca. 2 – 2,5 kg) von Hand:

> 2 mm	verworfen
≤ 2 mm	Korngrößenklasse 1

Siebung von Teilproben je ca. 250 g der Korngrößenklasse 1 zur Gewinnung der Korngrößenklassen 2, 3 und 4 mit der Siebmaschine Vibro (Fa. Retsch):

≤ 500 µm	Korngrößenklasse 2
≤ 200 µm	Korngrößenklasse 3
≤ 63 µm	Korngrößenklasse 4

Die Siebrückstände wurden jeweils verworfen.

Zur Siebung wurden ausschließlich Siebe und Auffangschalen aus Kunststoff (2 mm Maschenweite) oder Edelstahl (alle anderen Maschenweiten) eingesetzt. Die Korngrößenfraktionen wurden nach der Siebung in Polyethyldosen gefüllt.

Die Korngrößenklasse wurde bei der Probennummer durch einen nachgestellten Schrägstrich und die Nummer der Korngrößenklasse gekennzeichnet (z.B. 11 B 1 / 2 für die Fraktion  $\leq 500 \mu\text{m}$  der Bodenprobe 11 B 1).

Auf Grund der sehr ähnlichen Elementkonzentrationen in den Korngrößenklassen 1 ( $\leq 2 \text{ mm}$ ) und 2 ( $\leq 500 \mu\text{m}$ ) bei den zuerst analysierten 17 Bodenproben wurde die Korngrößenklasse 1 der anderen Proben nicht aufgeschlossen und analysiert.

### 5.1.3 Klassierung von Hausstaubproben

Von den Hausstaubproben wurde durch Siebung die Korngrößenklasse  $\leq 200 \mu\text{m}$  für die weitere Untersuchung gewonnen. Die Siebrückstände wurden verworfen. Die Siebrückstände enthielten im Wesentlichen organische Materialien (Fasern, Haare u.ä.) und Sandkörner.

Zur Siebung wurden ausschließlich Siebe und Auffangschalen aus Edelstahl eingesetzt. Die Proben wurden nach der Siebung in Polyethyldosen gefüllt.

Da es je Hausstaubprobe nur eine Korngrößenklasse gibt erfolgte keine gesonderte Kennzeichnung.

### 5.1.4 Veraschung

Alle Proben wurden nach folgendem Temperatur-Zeit-Schema in einem Muffelofen N 100 (Fa. Nabertherm) mit katalytischer Nachverbrennung der Abgase verascht:

1 Stunde	aufheizen auf $80 \text{ }^\circ\text{C}$
1 Stunde	halten bei $80 \text{ }^\circ\text{C}$
2 Stunden	aufheizen auf $110 \text{ }^\circ\text{C}$
1 Stunde	halten bei $110 \text{ }^\circ\text{C}$
2 Stunden	aufheizen auf $550 \text{ }^\circ\text{C}$
8 Stunden	halten bei $550 \text{ }^\circ\text{C}$
8 Stunden	abkühlen

Die Proben wurden zur Veraschung je nach Volumen entweder in Nickeltiegeln (200 ml) oder in Edelstahlschalen (2 l) eingewogen. Nach der Veraschung wurde die Aschemasse durch Wägung bestimmt. Mit Ausnahme der Bodenproben wurde die Asche in 50 ml Polypropylen-Röhrchen mit Schraubverschluss (Fa. Greiner) gefüllt und darin gelagert. Die Aschen der Bodenproben wurden in Polyethyldosen aufbewahrt.

Bei einigen Lebensmitteln und Nahrungsduplikaten, vor allem den kohlehydratreichen, kam es sowohl bei den Edelstahlschalen als auch bei den Nickeltiegeln zu leichten Korrosionserscheinungen. Dabei lösten sich korrodierte Oberflächen schalenförmig ab. Bei der Entnahme wurden die Korrosionsprodukte von Hand oder mit Magnet fast vollständig aus der Asche entfernt.

Bei wenigen Proben war die Veraschung trotz hoher Temperatur und langer Veraschungszeit unvollständig. Diese Proben enthielten Kohlereste. In einem zweiten Veraschungsschritt wurden sie bei 550 °C über 8 Stunden erneut in kleinen Nickeltiegeln im Muffelofen geglüht und dabei eine hellere Asche erhalten.

### 5.1.5 Zerkleinerung und Homogenisierung

Die Aschen der Lebensmittel und Nahrungsduplikate wurden direkt nach der Veraschung in den Veraschungsgefäßen mit Hilfe eines Edelstahlöffels von Hand zerkleinert und homogenisiert. Gegebenenfalls erfolgte vor der Einwaage zum Aufschluss eine weitere Zerkleinerung und Homogenisierung mit Hilfe eines Melaminmörser.

Die veraschten Stuhl- und Windelproben wurden in einer Planetenkugelmühle vom Typ Pulverisette 6 (Fa. Fritsch) in 80 ml Edelstahl-Mahlbechern mit 5 Edelstahlkugeln (Ø 20 mm) analysenfein zerkleinert.

Die Zerkleinerung der veraschten Boden- und Hausstaubproben erfolgte ebenfalls in der Planetenkugelmühle, allerdings mit Achatmahlgarnituren, da hier der Abrieb der Mahlwerkzeuge im Verhältnis zu den Proben zu vernachlässigen ist.

### 5.1.6 Aufschluss

Der Aufschluss aller Proben wurde als mikrowellenunterstützter Säureaufschluss durchgeführt. Dabei kam die Mikrowellenaufschlussapparatur Mars 5 (Fa. CEM) zum Einsatz. Das Aufschlussverfahren wurde bei Vorversuchen an Stuhlaschen und zertifizierten Standardreferenzmaterialien mit unterschiedlichen Säuregemischen und variierten Aufschlussparametern optimiert.

Für den Aufschluss wurden ca. 200 mg Probe bzw. bei geringeren Aschemassen die gesamte Probe auf 0,1 mg genau eingewogen. Für den ersten Aufschlusschritt wurden die Proben in einem Teflon-Aufschlussgefäß mit einer Säuremischung aus

4 ml HF	(47 – 51 %, Reinheit TraceSelect der Fa. Fluka)
5 ml HNO <sub>3</sub>	(69,5 %, Reinheit TraceSelect der Fa. Fluka)
1 ml HCl	(37 %), Reinheit TraceSelect der Fa. Fluka)
5 ml H <sub>2</sub> O	(Reinstwasser)

versetzt und anschließend das Gefäß druckdicht verschlossen. Je 11 Proben und ein Standardreferenzmaterial wurden gleichzeitig in der Mikrowellenaufschlussapparatur mit 1200 W Leistung nach folgendem Regime aufgeschlossen:

20 min	aufheizen auf 185 °C
15 min	halten bei 185 °C
10 min	aufheizen auf 210 °C
30 min	halten bei 210 °C
	abkühlen auf ca. 35 °C.

Um überschüssigen Fluorwasserstoff zu beseitigen und ausgefällte Bestandteile, insbesondere Fluoride, wieder aufzulösen wurde ein zweiter Aufschlussgang angeschlossen. Dazu wurden die Gefäße geöffnet und 30 ml 5 %ige Borsäure (Reinheit Suprapur 99,9999 % der Fa. Merck) zugegeben. Nach dem Verschluss der Gefäße wurden diese in der Mikrowellenaufschlussapparatur bei 1200 W Leistung wie folgt behandelt:

20 min	aufheizen auf 210 °C
5 min	halten bei 210 °C
	abkühlen auf ca. 30 °C.

Die abgekühlten Aufschlusslösungen wurden in graduierte 50 ml Polypropylen-Röhrchen mit Schraubverschluss (Fa. Greiner) überführt, die Aufschlussgefäße sorgfältig mit Reinstwasser nachgespült und dieses ebenfalls in die Polypropylen-Röhrchen überführt. Zum Schluss wurden die Aufschlusslösungen mit Reinstwasser auf 50 ml aufgefüllt und bis zur Analyse gelagert.

Die Aufschlussgefäße wurden nach jedem Aufschluss gründlich mit Reinstwasser gespült und getrocknet. Beim Wechsel von Proben mit hohen Elementkonzentrationen (Boden, Hausstaub) zu solchen mit niedrigen Konzentrationen (Lebensmittel, Nahrungsduplikate, Stuhl) wurden die Probengefäße zusätzlich durch einen „Leeraufschluss“, d.h. nur mit den o.g. Säuremengen ohne Probe, gereinigt. Dabei wurde das gleiche Aufschlussregime wie bei den Proben angewandt.

Bei jedem Aufschlusszyklus wurde zur Qualitätssicherung der Aufschlüsse und der Analysen ein Aliquot des zertifizierten Standardreferenzmaterials TB-2 des ZGI (Zentrales Geologisches Institut der ehemaligen DDR) aufgeschlossen. Das Referenzmaterial befand sich dabei immer im Aufschlussgefäß Nr. 1.

Insgesamt wurden 729 Proben und 75 Aliquote des Standardreferenzmaterials aufgeschlossen.

## 5.2 Analytik

Für die Bestimmung der ausgewählten Elemente in den Aufschlusslösungen wurde die Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, ICP-MS) eingesetzt. Sie ist ein Multielementanalyseverfahren, welches sehr geringe Nachweisgrenzen bis hinab in den Sub-ppt-Bereich erreicht.

Die verschiedenen ICP-MS-Systeme unterscheiden sich grundsätzlich dadurch, wie die Massenanalytoren konzipiert und aufgebaut sind. Im Gegensatz zu den weiter verbreiteten Quadrupol-Massenspektrometern wird in unserem Labor ein doppeltfokussierendes Sektorfeld-Massenspektrometer eingesetzt. Es handelt sich dabei um ein Gerät vom Typ AXIOM der Firma VG Elemental (Großbritannien), mit dem Massenaufösungen von 400 bis 10000 stufenlos eingestellt werden können.

Die Proben werden in das ICP-MS eingebracht, indem eine direkte Vernebelung der wässrigen Lösungen in einer Zerstäuberkammer erfolgt. Über einen Argongasstrom werden die Nebel in eine Plasmafackel (Torch) transportiert. Das Argonplasma wird durch einen stabilisierten Radiofrequenzgenerator erzeugt. Bei ca. 5000 K und einer typischen Plasmaleistung von 1200-1300 W werden vorrangig einfach geladene Ionen mit einer Bildungswahrscheinlichkeit von über 90% für die Mehrheit der Elemente produziert. Im Interface wird die Probe direkt aus dem heißen Plasma, das unter Atmosphärendruck arbeitet, über zwei Konen in das mehrstufige Vakuumsystem transportiert und passiert dann den Eintrittsspalt ins Massenspektrometer. Anschließend wird über ein elektronisches Linsensystem der in das Vakuum eingetretene Ionenstrahl fokussiert und typischerweise mit 5 kV beschleunigt. Durch den nachfolgenden elektrostatischen Analysator und das magnetische Sektorfeld werden die Ionen entsprechend ihres Masse-Ladungs-Verhältnisses unterschiedlich aus ihrer Flugbahn abgelenkt. Durch sequentielle Veränderung des Magnetfeldes können die unterschiedlich schweren Ionen so beeinflusst werden, dass sie



den Austrittsspalt erreichen und durch eine Detektorkombination, bestehend aus Multiplier (Impulszählung) und Faradaycup (analog), nacheinander gemessen werden können. Der Hauptvorteil der doppeltfokussierenden Geräte liegt darin, dass sie im Unterschied zu den sogenannten Quadrupolinstrumenten eine sehr hohe Massenauflösung realisieren können. Das Auflösungsvermögen  $R$  ist definiert als das Verhältnis der Massezahl  $M$  zur Differenz  $\Delta M$ , mit der ein Ion der Masse  $M+\Delta M$  von  $M$  differiert. Für die „Qualität“ der Peaktrennung gilt, dass die Intensität im „Tal“ zwischen den beiden voneinander getrennten Peaks, die sich aus der Peaküberlappung ergibt, 5 % der Peakfläche beträgt. Die erhöhte Auflösung ist dort vorteilhaft, wo mit polyatomaren und Molekülstörungen zu rechnen ist, die das Messergebnis des Analyten bei Niedrigauflösung verfälschen können. Die Signale werden durch entsprechende Kalibrierstandards quantifiziert, die kommerziell erhältlich sind.

Eine detaillierte Beschreibung der ICP-MS ist in [7] zu finden.

Die zum Aufschluss der Proben verwendete Fluorwasserstoffsäure (HF) hat den Nachteil, dass sie die Standardglassware des Probeneinführungssystems angreift und Si daraus mobilisiert. Das kann dazu führen, dass Si nicht mit genügender Stabilität gemessen werden kann. Bewährt hat sich hier eine zerlegbare Torch mit Saphir-Injektorrohr, die darüber hinaus auch für andere Analyten sehr geringe Blindwerte produziert.

Für die Messungen im Rahmen des Themas wurden aus zertifizierten Einzelelementstandardlösungen vier Kalibrierstandards hergestellt, die auf folgende Gehalte verdünnt wurden:

Standard 1	1 ppb 100 ppb	Ti, Zr, Nb, Al, Ga, Sc, Y, La, Ce, Nd Si
Standard 2	10 ppb 200 ppb	Ti, Zr, Nb, Al, Ga, Sc, Y, La, Ce, Nd Si
Standard 3	20 ppb 400 ppb	Ti, Zr, Nb, Al, Ga, Sc, Y, La, Ce, Nd Si
Standard 4	50 ppb 600 ppb	Ti, Zr, Nb, Al, Ga, Sc, Y, La, Ce, Nd Si

Für die Messungen wurden die Proben soweit mit 3 %iger  $\text{HNO}_3$  verdünnt, dass die Analytgehalte in den Gültigkeitsbereich der jeweiligen Kalibriergeraden fielen. Dies wurde typischerweise durch Verdünnung der Aufschlusslösungen im Verhältnis 1:50, 1:2000 und 1:20000 erreicht. Geringere Verdünnungen kamen nicht in Betracht, da der sehr hohe Matrixgehalt der Lösungen sowohl das Probeneinführungssystem als auch das Gerät selbst belastet und geschädigt hätte.

Als Analytmassen wurden die folgenden ausgewählt und bei den jeweils durch Vorversuche ermittelten Auflösungen gemessen:

Auflösung 400:	$^{89}\text{Y}$ , $^{139}\text{La}$ , $^{140}\text{Ce}$ , $^{143}\text{Nd}$ , $^{144}\text{Nd}$ , $^{146}\text{Nd}$
Auflösung 4 800:	$^{27}\text{Al}$ , $^{28}\text{Si}$ , $^{29}\text{Si}$ , $^{45}\text{Sc}$ , $^{47}\text{Ti}$ , $^{49}\text{Ti}$
Auflösung 10 000:	$^{69}\text{Ga}$ , $^{90}\text{Zr}$ , $^{91}\text{Zr}$ , $^{93}\text{Nb}$

Diese Wahl der Auflösungen stellt sicher, dass keine nennenswerten spektralen Störungen auftreten. Durch Vergleich der Einzelergebnisse bei den durchgeführten Mehrfachbestimmungen konnten Störungen erkannt und gegebenenfalls fehlerhafte Ergebnisse ausgeschlossen werden. Wurde ein Elementgehalt auf verschiedenen Massen bestimmt, erfolgte eine gewichtete Mittelwertbildung. Einige Elemente wurden nur auf einer Masse gemessen, weil sie entweder monoisotopisch waren ( $^{89}\text{Y}$ ,  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{45}\text{Sc}$ ,  $^{93}\text{Nb}$ ) oder weil sie sehr

starke Unterschiede in den natürlichen Häufigkeiten aufwiesen und damit keine verlässlichen Ergebnisse geliefert hätten ( $^{138}\text{La}$ ,  $^{139}\text{La}$ ) oder weil die geforderte Auflösung zur Beseitigung des Störeinflusses gerätetechnisch nicht realisiert werden konnte. So wäre z. B. für eine saubere Massentrennung von dem Paar  $^{142}\text{Ce}/^{142}\text{Nd}$  eine Auflösung von über 10000 notwendig.

Bei der Messung von stark matrixhaltigen Lösungen, wie das bei Aufschlusslösungen zu erwarten ist, kann die Geräteempfindlichkeit von Probe zu Probe größeren Schwankungen unterliegen. Um dies auszugleichen, wird ein Element als interner Standard zu den Lösungen zugegeben und die Intensität des Analytsignals darauf bezogen. An dieses als interner Standard eingesetzte Element werden besondere Forderungen gestellt, wie hohe Intensität oder Vermeidung von Interferenzen. Für die hier beschriebenen Messungen erwies sich das oft verwendete Rhodium als geeignet.

### 5.3 Maßnahmen zur analytischen Qualitätssicherung

Zur Qualitätssicherung der Probenvorbereitung und der Analytik wurden verschiedene Maßnahmen durchgeführt.

Wie bereits oben beschrieben wurde ein einheitliches und transparentes System der Probenbezeichnung verwendet, das jederzeit die Zuordnung der Proben zu den Probenarten und zu den Probanden und die zeitliche Einordnung der Proben ermöglicht. Für die einzelnen Bearbeitungsschritte wurden den Bearbeitern vorher beschriftete selbstklebende Etiketten zur Verfügung gestellt. Die Protokollierung der Arbeitsschritte und der gewonnenen Daten (z.B. Massen der Ein- und Auswaagen, Taramassen) erfolgte in vorgefertigten Tabellen, die bereits die Probennummern enthielten. Auf diese Weise wurden Fehler bei der Probenzuordnung vermieden und die Rückverfolgbarkeit der Analysenergebnisse ermöglicht. In die Protokolle wurden auch alle Abweichungen vom geplanten bzw. erwarteten Verlauf und Beobachtungen eingetragen.

Zur Kontrolle der Wirksamkeit des Aufschlussverfahrens und der Richtigkeit der Analysen mit der ICP-MS wurde bei jeder Aufschlussreihe (11 Proben) ein Aliquot eines zertifizierten Standardreferenzmaterials mit aufgeschlossen und analysiert. Dazu wurde der Tonschiefer TB-2 des Zentralen Geologischen Instituts (ZGI) der ehemaligen DDR eingesetzt, dessen unten aufgeführte Konzentrationen der relevanten Elemente der mittleren Zusammensetzung von Boden entspricht. Insgesamt wurden so 75 Aliquote aufgeschlossen und analysiert. In der Tabelle 5-2 sind die Konzentrationen, die mittleren Wiederfindungsraten und deren relative Standardabweichungen aufgeführt.

Tabelle 5-2: Elementkonzentrationen im Zertifizierten Referenzmaterial TB-2 und Wiederfindungsraten bei Aufschluss und Analyse

Element	zertifizierte Konzentration [µg/g]	Wiederfindungsraten	
		Mittelwert [%]	relative Standardabweichung [%]
Al	108.500	96	8
Si	281.900	85	11
Sc	16	90	6
Ti	5.580	89	5
Ga	25	102	7
Y	39	53	15
Zr	180	77	15
Nb	17	91	11
La	58	83	13
Ce	104	89	10
Nd	50	79	13

Mit Ausnahme von Y, Zr und Nd sind die ermittelten Wiederfindungsraten und deren Streuung gut bis sehr gut. Die etwas schlechteren Werte für Y und Zr sind wahrscheinlich auf den unvollständigen Aufschluss des Minerals Zirkon zurückzuführen. Auch bei den geringeren Wiederfindungsraten liegt die relative Standardabweichung recht niedrig. Da alle Proben nach dem gleichen Verfahren aufgeschlossen und analysiert werden, ist auch bei geringen aber relativ konstanten Wiederfindungsraten mit verwertbaren Analyseergebnissen zu rechnen.

Außerdem werden im Rahmen der Akkreditierung unseres Labors für Umwelt- und Radionuklidanalytik entsprechend der DIN EN ISO/IEC 17025 für die ICP-MS regelmäßig folgende weitere qualitätssichernde Maßnahmen durchgeführt:

- Teilnahme an Ringversuchen
- Analyse von Zertifizierten Standardreferenzmaterialien
- regelmäßige Kalibrierung und Kalibrationskontrolle (Führung von Kontrollkarten).

Eine weitere qualitätssichernde Maßnahme im Rahmen dieses Projektes war die durchgängige Plausibilitätsprüfung aller Mess- und Analyseergebnisse. Unplausible Ergebnisse wurden an Hand der Protokolle und anderer Aufzeichnungen überprüft. Gegebenenfalls wurden Wiederholungsuntersuchungen durchgeführt.

## 6 Auswertung der Protokolle und Analyseergebnisse

### 6.1 Datenverarbeitung

Zur Erfassung der Daten und zu allen Berechnungen wurde das Tabellenkalkulationsprogramm „Excel 2003™“ der Firma Microsoft™ genutzt.

Um Übertragungsfehler bei der Einwaage für den Aufschluss und bei der Analyse mittels ICP-MS auszuschließen, wurden die Massen bzw. Elementkonzentrationen in den Aufschlusslösungen direkt vom Messgerät in Excel-Dateien übernommen. Bei allen anderen Daten erfolgte die Eingabe von Hand. Soweit möglich, wurden die Rohdaten eingegeben und die Korrekturen, wie z.B. der Taramassen, erst in den Excel-Dateien ausgeführt, um die Berechnungen nachvollziehbar und transparent zu gestalten.

Die Berechnung der Zwischenergebnisse bis hin zu den Elementbilanzen und den Bodeningestionen erfolgte schrittweise, so dass die Daten ständig auf ihre Plausibilität kontrolliert werden konnten.

So erfolgte zunächst die Berechnung der Glührückstände bei der Veraschung der Proben.

Dann wurden für die einzelnen Probenarten in getrennten Arbeitsblättern die Elementkonzentrationen in der Aschemasse (Nahrungsduplikate) bzw. der Frischmasse (Lebensmittel, Boden, Hausstaub) oder die Elementmasse in der Probe (Stuhl, Windeln) berechnet. Dabei wurden folgende Ausgangsdaten genutzt:

- Glührückstand
- Einwaage zum Aufschluss
- Volumen der Aufschlusslösung
- Elementspezifischer Blindwert des Aufschlusses und der Analyse
- Elementkonzentration in der Aufschlusslösung
- Korrekturfaktor für Probenahmeverluste (zur Massekorrektur bei Stuhlproben)
- Korrekturfaktor für Stuhlreste in den Windeln (zur Massekorrektur bei Stuhlproben)
- Elementkonzentration der Windelmuster (zur Korrektur der Elementmasse bei Stuhlproben, die nicht von den Windeln getrennt werden konnten).

### 6.2 Ermittlung der gastrointestinalen Transitzeiten

Bei einigen Probanden konnten die gastrointestinalen Transitzeiten, d.h. die Zeiträume zwischen der Aufnahme einer Nahrung und ihrer Ausscheidung mit dem Stuhl, wie geplant experimentell ermittelt werden (siehe auch Abschnitt 2.5). Für die nachfolgende Auswertung wurden nur die Stuhlgänge herangezogen, bei denen zum ersten Mal Mohn beobachtet werden konnte. Bei einigen Probanden trat im darauf folgenden Stuhlgang ebenfalls Mohn auf. Das zeigt, dass die mit einer Mahlzeit aufgenommene Nahrung nicht nur mit einem Stuhlgang ausgeschieden wird. Das führt zu Unsicherheiten bei der Zuordnung der Nahrung zu den Stuhlgängen zu Beginn und Ende des Beprobungszeitraums. D.h. Nahrung, die vor Beginn des Zeitraums aufgenommen wurde kann im ersten beprobten Stuhlgang mit auftreten und umgekehrt muss Nahrung am Ende des Zeitraums nicht unbedingt vollständig im letzten beprobten Stuhlgang enthalten sein.

Die Ergebnisse der experimentellen Ermittlung der gastrointestinales Transitzeiten zu Beginn bzw. zu Ende des Beprobungszeitraums sind in der Tabelle 6-1 nach Alter der Probanden sortiert zusammengestellt.

Tabelle 6-1: Experimentell bestimmte gastrointestinales Transitzeiten

Proband	Alter [a]	gastrointestinales Transitzeit [h]		
		Beginn des Beprobungszeitraums	Ende	Mittel
24	1,83	25	25	25
32	2,08	17	17	17
35	2,42	-	16,5	16,5
33	3,75	25	-	25
36	4,66	32	36	34
31	5,75	24	24	24
34	6,83	36	37	36,5
44	8,92	28	26	27
41	9,42	29	29	29
42	11	40	-	40

Da nicht alle Probanden auf Grund ihres Alters oder wegen Abneigung gegen Mohnkuchen an der experimentellen Ermittlung der Transitzeiten beteiligt waren, wurde versucht durch Inter- bzw. Extrapolation die wahrscheinliche Transitzeit zu ermitteln. Dazu wurden die experimentell ermittelten Mittelwerte der Transitzeit gegen das Alter der Probanden grafisch dargestellt und die lineare Korrelationsfunktion ermittelt. Diese Darstellung zeigt Abbildung 6-1.

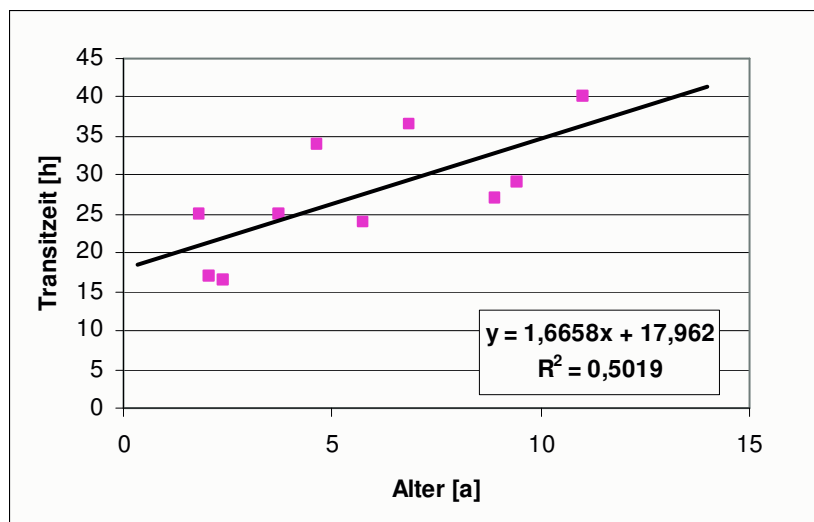


Abbildung 6-1: Mittelwerte der gastrointestinales Transitzeiten

Zur Ermittlung der minimalen gastrointestinales Transitzeiten der einzelnen Probanden wurden für eine ähnliche Darstellung und die Berechnung der linearen Korrelation die jeweils kleinsten experimentell ermittelten Transitzeiten der Probanden verwendet. Es wurden auch nur die Probanden herangezogen, bei denen experimentell niedrige Transitzeiten bestimmt wurden. Diese Darstellung ist in Abbildung 6-2 zu sehen.

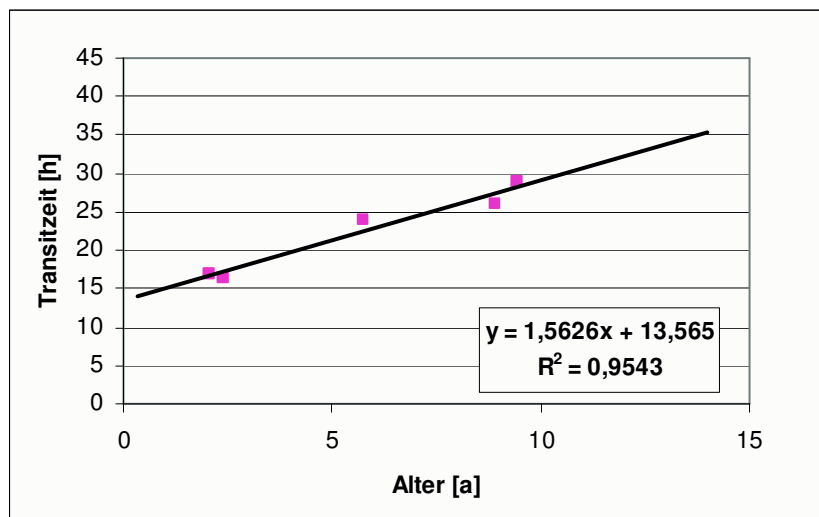


Abbildung 6-2: Minimale gastrointestinale Transitzeiten

Die Ermittlung maximaler gastrointestinaler Transitzeiten durch Inter- bzw. Extrapolation ist nicht sinnvoll, da durch Stuhlverhaltung hier sehr große Schwankungsbereiche zu erwarten sind.

Die auf Grund der beiden Modelle berechneten minimalen und mittleren gastrointestinalen Transitzeiten sind in Tabelle 6-2 zusammengefasst und den experimentell ermittelten gegenübergestellt.

Tabelle 6-2: Zusammenstellung der experimentell ermittelten und der berechneten gastrointestinalen Transitzeiten

Proband	Alter [a]	gastrointestinale Transitzeit [h]				
		experimentell ermittelt			berechnet	
		Beginn des Beprobungszeitraums	Ende	Mittel	Minimum	Mittel
15	0,33	-	-	-	14,1	18,5
14	0,58	-	-	-	14,5	18,9
11	0,75	-	-	-	14,7	19,2
13	0,75	-	-	-	14,7	19,2
12	0,83	-	-	-	14,9	19,3
26	1,00	-	-	-	15,1	19,6
23	1,33	-	-	-	15,6	20,2
22	1,58	-	-	-	16,0	20,6
21	1,66	-	-	-	16,2	20,7
24	1,83	25	25	25	16,4	21,0
32	2,08	17	17	17	16,8	21,4
35	2,42	-	16,5	16,5	17,3	22,0
33	3,75	25	-	25	19,4	24,2
36	4,66	32	36	34	20,8	25,7
31	5,75	24	24	24	22,5	27,5
34	6,83	36	37	36,5	24,2	29,3
43	7,00	-	-	-	24,5	29,6
46	8,75	-	-	-	27,2	32,5
44	8,92	28	26	27	27,5	32,8
41	9,42	29	29	29	28,3	33,7
42	11,00	40	-	40	30,8	36,3
45	11,83	-	-	-	32,1	37,7

Diese Werte liegen im Bereich der Literatur genannten gastrointestinalen Transitzeiten von gesunden Kindern, die in der Tabelle 6-3 aufgeführt sind.

Tabelle 6-3: Literaturangaben zu gastrointestinalen Transitzeiten

Autor	Probanden		gastrointestinale Transitzeit [h]	Stuhlgangshäufigkeit
	Alter [a]	Anzahl		
Akinbami et al. [8]	0,5 - 5	98	18,3	100 %: alle 2 Tage – 5 pro Tag 95 %: 1 – 3 pro Tag
Fallingborg et al. [9]	8 - 14	12	25,8	-
Weaver et al. [10]	1 - 4	350	33 (35 Probanden)	96 %: alle 2 Tage – 3 pro Tag 85 %: 1 – 2 pro Tag

Bei der Aufstellung der Elementbilanzen wurden nur die Nahrungsmittel in die Bilanz einbezogen, die auf Grund der experimentell ermittelten bzw. ersatzweise berechneten minimalen gastrointestinalen Transitzeiten den Stuhlproben zugeordnet werden konnten. Das gilt sowohl für den Beginn und das Ende der Beprobungsperiode, als auch für die Unterbrechung der Beprobungsperiode wegen des Verlustes von Stuhlproben.

Die zeitliche Variation bei den gastrointestinalen Transitzeiten lässt sich aus der Schwankung der Stuhlgangshäufigkeit der Probanden an den einzelnen Tagen ersehen. In der Tabelle 6-4 sind die charakteristischen Werte für die Stuhlgangshäufigkeit der einzelnen Probanden zusammengestellt.

Tabelle 6-4: Stuhlgangshäufigkeit der Probanden

Proband	Tage gesamt	Stuhlgangshäufigkeit									mittlere Zahl von Stuhlgängen pro Tag
		Stuhlgänge pro Tag					Tage zwischen zwei Stuhlgängen				
		5	4	3	2	1	1	2	3		
11	10	1	2	2	5						2,90
12	12			1	6	5					1,67
13	12				1	11					1,08
14	12	1	5	4	1	1					3,33
15	12				2	6	1		1		0,83
21	12			1	8	3					1,83
22	12				2	5	3	1			0,75
23	12		1	1	5	5					1,83
24	12				5	6	1				1,33
26	11		4	4	3						3,09
31	14				6	6		1			1,29
32	12			2	6	4					1,83
33	12				2	7	1	1			0,92
34	12					9	1	1			0,75
35	12				4	8					1,33
36	12				1	10	1				1,00
41	12				2	8	2				1,00
42	13				1	9	3				0,85
43	12				2	4	1	1	1		0,67
44	12					9	3				0,75
45	13				1	9	3				0,85
46	13					9	2	1			0,69

Es ist aus den Stuhlgangshäufigkeiten und insbesondere aus den Pausen von einem oder mehreren Tagen zwischen zwei Stuhlgängen leicht zu erkennen, dass die Zuordnung von Nahrung zu den Stuhlgängen nur eine erste Näherung sein kann und entsprechende Unsicherheiten in sich birgt.

### 6.3 Erforderliche Korrekturen

Obwohl die Probanden, ihre Eltern und Betreuer bemüht waren, das Verhalten und die Ernährung vollständig und genau in den Protokollen zu erfassen gab es doch punktuell unvollständige, fehlerhafte oder sich widersprechende Angaben in den Protokollen bzw. bei der Probenbeschriftung. In diesen Fällen, die ca. 1 bis 2 % aller Angaben betreffen und bei keinem Probanden gehäuft auftraten, wurde versucht, durch entsprechende Korrekturen und Ergänzungen den wirklichen Verlauf abzubilden. Dazu wurden zunächst die verfügbaren Daten in den Protokollen und der Probenbeschriftung bzw. die Proben selbst genutzt. In



zweiter Linie wurden die Probanden, deren Eltern und Betreuer um Auskunft gebeten oder ersatzweise eigene Untersuchungen bzw. Plausibilitätsbetrachtungen herangezogen. Die darauf beruhenden Korrekturen werden im Folgenden aufgeführt.

- Ermittlung des Lebensmittels bei ungenauen Angaben (z.B. Joghurt ohne Sortenangabe) nach Rückfrage oder Plausibilität
- Masse der einzelnen Lebensmittel bei summarischen Angaben (z.B. Brot mit Marmelade) nach eigenen Messungen und Plausibilität
- Masse des fertig zubereiteten Lebensmittels (z.B. Kartoffelpüree) nach Zubereitungsanleitung des Herstellers und Daten der anderen Probanden
- Verzehrte Masse bei Lebensmitteln, die nicht vollständig aus der Verpackung entnommen werden können (z.B. Joghurt, Baby-Fertignahrung in Gläschen) nach eigenen Messungen bei der Vorbereitung zur Veraschung
- Stückmasse bei zählbaren Lebensmitteln nach eigenen Messungen bei der Vorbereitung zur Veraschung
- Differenzen zwischen den Protokollen, der Probenbeschriftung und der Probe nach Plausibilität in der Reihenfolge Probe – Probenbeschriftung – Ernährungsprotokoll – Tagesprotokoll
- Lücken in den Protokollen (z.B. bei der regelmäßigen Einnahme von Medikamenten) nach Rückfrage
- Fehlende Nahrungsduplikatproben wurden in folgender Reihenfolge ersetzt: Nachbeschaffung – gleichartige Duplikatprobe des gleichen Probanden – gleichartiges Lebensmittel der Liste – gleichartige Duplikatprobe eines anderen Probanden
- Zeitangaben für das Spiel im Freien wurden hinsichtlich noch enthaltener Wegezeiten korrigiert

Der bei der Beprobung des Stuhls auftretende Verlust wurde, entsprechend der von den Eltern und Betreuern bei den einzelnen Proben angegebenen Schätzwerte, bei der Berechnung berücksichtigt.

Bei der Benutzung von Windeln konnte der Stuhl in einigen Fällen nicht vollständig aus der Windel als Probe entnommen werden. In diesen Fällen wurde der Stuhlverlust durch Vergleich der Aschemasse der benutzten Windel mit der Aschemasse des unbenutzten Windelmusters und den Aschemassen der benutzten Windeln, die aber keinen Stuhl mehr enthielten, abgeschätzt. In insgesamt 15 Fällen bei 3 Probanden konnte aus der benutzten Windel keine Stuhlprobe entnommen werden. Hier wurden die Elementmassen des Stuhls durch Differenzbildung zwischen den Elementmassen der benutzten Windeln und der unbenutzten Windelmuster ermittelt.

Bei 3 Probanden waren insgesamt 4 Stuhlgänge nicht beprobt worden. Im Unterschied zu vorangegangenen Studien wurden diese Stuhlgänge nicht aus den vorhandenen Stuhlproben „gemittelt“. Sondern es wurden bei der Bilanzierung der Aufnahme mit der Nahrung die diesen Stuhlproben zuzuordnenden Zeiträume ebenfalls nicht berücksichtigt. So gingen in die Bilanz nur die beprobten Stuhlgänge und die ihnen zuzuordnenden Zeiträume der Nahrungsaufnahme ein. Auf Grund der starken Schwankungen der Elementgehalte in den einzelnen Stuhlproben erscheint uns dieses Vorgehen zuverlässiger als die Schätzung der fehlenden Proben. Als zusätzliche Unsicherheit ist hier aber die Zuordnung der nicht zu berücksichtigenden Mahlzeiten auf Grund der nur näherungsweise bekannten gastrointestinalen Transitzeiten anzusehen.

Spielorte, die weniger als 50 m auseinander liegen wurden nur mit einer Bodenprobe, die beide Spielorte umfasst, belegt und entsprechend in die Berechnung einbezogen.

## 6.4 Aufstellung der Elementbilanzen

Für die Erstellung der Elementbilanzen wurden die erforderlichen Angaben aus den Tages- und Ernährungsprotokollen der Probanden in eine Excel-Datei übertragen, dabei wurde für jeden Probanden ein separates Arbeitsblatt angelegt. In Absprache mit dem Auftraggeber wird das Arbeitsblatt für den Probanden 35 als Beispiel dargestellt. Es ist in der Anlage 4 zu finden. Die Daten für die anderen Probanden sind beim Verfasser verfügbar. Alle Tages- und Uhrzeitangaben wurden durch eine entsprechende Formel in Stunden nach dem Startpunkt des Untersuchungszeitraums (1. Beprobungstag des jeweiligen Probanden 0 Uhr) umgerechnet. Die Uhrzeit wurde immer auf volle Stunden abgerundet. Für Lebensmittelproben wurden die jeweiligen Probennummern eingesetzt. Die Spielorte wurden mit der in den Protokollen vergebenen Nummer des Spielortes des jeweiligen Probanden gekennzeichnet, die Spielzeiten wurden auf Viertelstunden genau angegeben.

Für die Berechnung der Elementgehalte in der Nahrung wurden folgende Daten aus den Ernährungsprotokollen übernommen:

für Lebensmittel

- Gesamtmasse des originalen Lebensmittels (nicht zubereitet)
- Gesamtmasse des verzehrfertig zubereiteten Lebensmittels
- Masse des verzehrfertig zubereiteten Lebensmittels, die vom Probanden verzehrt wurde

für Nahrungsduplikate

- Masse, die vom Probanden verzehrt wurde
- Masse des Duplikats.

Aus den Arbeitsblättern mit den Elementkonzentrationen der Lebensmittel und Nahrungsduplikate bzw. mit den Elementmassen der Stuhlproben wurden durch „Verknüpfen“ folgende Daten der jeweiligen Proben übernommen:

für Lebensmittel

- Elementkonzentrationen in der Frischmasse [ $\mu\text{g/gFM}$ ]

für Nahrungsduplikate

- Probennummer
- Probenbeschreibung
- Aschemasse der Duplikatprobe [g]
- Elementkonzentrationen in der Aschemasse [ $\mu\text{g/gAM}$ ]

für Stuhlproben

- Probennummer
- Elementmassen im Stuhl [ $\mu\text{g}$ ] (Verluste und Windelanteil bereits korrigiert).

Die Übernahme der Probennummer bei der Verknüpfung ermöglicht über den Vergleich mit der Stundenummer die Kontrolle, dass die richtigen Daten übernommen wurden. Bei den Lebensmitteln wird die Verknüpfung dadurch erleichtert, dass die Zeilennummer im Arbeitsblatt der Lebensmittel mit der Probennummer des Lebensmittels übereinstimmt, das lässt sich in der Excel-Datei jederzeit leicht überprüfen. Durch diese Art der Verknüpfung der Daten werden Übertragungsfehler vermieden und die nachträgliche Korrektur von Primärdaten z.B. bei Wiederholungsanalysen überträgt sich automatisch zu allen relevanten Arbeitsblättern. Alle Daten bleiben so in der gesamten Datei konsistent.

Aus den angegebenen Daten werden für die Lebensmittel und Nahrungsduplikate die aufgenommenen Elementmassen berechnet.

Anschließend werden tageweise und über den gesamten Beprobungszeitraum die mit der Nahrung aufgenommenen und die mit dem Stuhl ausgeschiedenen Elementmassen summiert. Diese Zeilen sind mit „Datum Summe“ bzw. „Gesamtergebnis“ gekennzeichnet.

Mit Hilfe der experimentell ermittelten bzw. durch Inter- oder Extrapolation berechneten gastrointestinalen Transitzeiten wurden die den Stuhlproben zuzuordnenden Mahlzeiten ermittelt. Die anderen Mahlzeiten wurden im Arbeitsblatt farblich markiert. Das betrifft sowohl Mahlzeiten zu Beginn und Ende des Beprobungszeitraums, als auch bei Unterbrechungen wegen nicht beprobter Stuhlgänge. Sie wurden bei der Berechnung der Elementmasse der zuzuordnenden Nahrung nicht berücksichtigt. Die Zeile mit der Summe der zuzuordnenden Mahlzeiten ist mit „Nahrung (Stunden von ... bis ...)“ gekennzeichnet.

Abschließend wurde die Differenz gebildet aus der Summe der mit dem Stuhl ausgeschiedenen Elementmassen und der Summe der Elementmassen, die mit den relevanten Mahlzeiten aufgenommenen wurden. Nach dem dieser Studie zugrunde liegenden Modell entspricht diese Differenz der Ingestion von Boden oder Hausstaub bzw. einem Gemisch von beiden.

## 6.5 Berechnung der Bodeningestion

Die Berechnung der Bodeningestion erfolgt unter der Annahme, dass kein Hausstaub aufgenommen wurde.

Die aufgenommene Bodenmasse wird als Quotient aus der berechneten Differenz der Elementmassen im Stuhl und in der Nahrung und der Elementkonzentration im Boden berechnet (siehe Formel (7) im Abschnitt 2.4). Die berechnete Bodenmasse kommt dem wahren Wert der Bodeningestion recht nahe. Systematische Verfälschungen können aber vor allem auf Grund folgender nicht quantifizierbarer Einflüsse auftreten:

- Im Widerspruch zur Annahme 1 des Abschnitts 2.2 kann ein Teil der in den Lebensmitteln vorhandenen Elementmassen in solchen Verbindungen vorliegen, die eine gastrointestinale Aufnahme im menschlichen Körper ermöglichen. Dieser Anteil wird dann mit dem Urin ausgeschieden und demzufolge in den Stuhlproben nicht erfasst. Dadurch käme es bei der Berechnung der Bodeningestion durch eine Überschätzung der mit der Nahrungsaufnahme zugeführten Elementmasse zu einer Unterschätzung der Bodeningestion. So wurden in der Studie von Davis et al. [3] für Si und Al relevante Mengen im Urin gefunden, für Ti hingegen nicht. Es ist aber nicht bekannt, inwieweit diese Elemente schon in gelöster Form, über die in der Studie von Davis et al. nicht bilanzierten Getränke, zugeführt wurden.
- Durch Abweichungen der tatsächlichen gastrointestinalen Transitzeiten zu Studienbeginn und -ende von den experimentell ermittelten bzw. berechneten Transitzeiten kommt es ebenfalls zu nicht quantifizierbaren Fehlern bei der Differenzbildung zwischen Stuhl und Nahrung. Es wird jede Nahrung als relevant betrachtet, die bei experimentell ermittelter bzw. berechneter minimaler Transitzeit zu Studienbeginn nicht mehr dem vorherigen Stuhlgang zugeordnet werden kann bzw. bei Studienende noch dem letzten Stuhlgang zuzuordnen ist. In gleicher Weise wird bei Unterbrechungen des Zeitraums wegen nicht beprobter Stuhlgänge verfahren. Die Zeitabstände zwischen Nahrungsaufnahme und Stuhlgang zu Studienbeginn und zu Studienende weichen z.T. erheblich voneinander ab. Wenn jeweils der größere Zeitabstand sowohl bei Studienbeginn und –ende herangezogen würde, käme es bei

9 Probanden zu einer geringeren und bei 3 Probanden zu einer größeren zu berücksichtigenden Nahrungsaufnahme. Bei den verbleibenden 10 Probanden käme es zu keiner Veränderung.

Auf Grund dieser Einflüsse ist also eher mit einer Unterschätzung der Bodeningestion zu rechnen. Dies wird auch durch die negativen Differenzen belegt, die bei der Subtraktion der Elementgehalte in der Nahrung von den Gehalten im Stuhl auftreten. Eine weitere Ursache für diese negativen Differenzen sind auch Konzentrationen einiger Elemente, die in der Nähe der ermittelten Blindwerte des Verfahrens (Aufschluss und Analytik) liegen. Das betrifft vor allem Lebensmittel- und Nahrungsduplikatproben, aber auch Stuhlproben. Näheres dazu ist im Kapitel 7 zu finden.

Andererseits lässt sich auch eine Obergrenze der Bodeningestion berechnen, wenn man die Elementzufuhr mit der Nahrung nicht berücksichtigt und nur die mit dem Stuhl ausgeschiedene Elementmasse als Berechnungsgrundlage verwendet. Die Obergrenze der Bodeningestion ist dann der Quotient aus der mit dem Stuhl ausgeschiedenen Elementmasse und der Elementkonzentration im Boden.

Entsprechend der Annahme 2 im Abschnitt 2.2 sollte der Boden so beprobt werden, dass er dem ingestierten Boden hinsichtlich der Konzentration der als Tracer verwendeten Elemente entspricht. Deshalb wurden von allen wesentlichen Spielorten der Probanden Bodenproben genommen und analysiert. Für jeden Probanden wurden alle relevanten Bodenproben parallel für die Berechnung der Bodeningestion herangezogen. Außerdem wurde bei Probanden mit mehreren Bodenproben der Mittelwert der Elementkonzentrationen aller Bodenproben des Probanden zur Berechnung verwendet. Da zwar die Spielzeiten an den einzelnen Spielorten, aber nicht die Intensitäten der Bodenberührung beim Spiel bekannt waren, wurde nur ein einfaches arithmetisches Mittel und kein gewichtetes Mittel gebildet. Die Standardabweichungen dieser Mittelwerte liegen in Abhängigkeit von Korngrößenfraktion und Element meist im Bereich von 10 bis 35 %.

Entsprechend der Konzeption sollten mehrere Korngrößenfraktionen der Bodenproben untersucht werden, um die für die Ingestion relevante zu ermitteln. Wenn dies nicht möglich ist, soll zumindest für jede Korngrößenfraktion eine spezifische Ingestionsrate angegeben werden, so dass dann die Schadstoffkonzentrationen in bestimmten Korngrößenfraktionen auf die Ingestionsrate der gleichen Korngrößenfraktion bezogen werden können. Aus diesem Grund wurden von den Bodenproben folgende Korngrößenfraktionen hergestellt und untersucht:

#### Fraktion 1: < 2000 µm

Diese Fraktion soll nach der DIN ISO 116464 [11] und der E DIN ISO 14507 [12] für die Untersuchung von Böden verwendet werden. Bei allen bisherigen Studien zur Quantifizierung der Ingestionsrate wurde diese Fraktion verwendet. Diese Fraktion ist aber aus folgenden Gründen nicht unbedingt typisch für den oral aufgenommenen Boden:

- Die größeren Körner haften schlechter an den Händen, die bei der Ingestion die größte Rolle spielen.
- Die größeren Körner knirschen zwischen den Zähnen, so dass die Aufnahme unangenehm ist, bemerkt wird und durch Ausspucken verhindert werden kann.

#### Fraktion 2: < 500 µm

Diese Fraktion wird in den Berechnungsgrundlagen - Bergbau [2] als die ingestionsrelevante Fraktion benannt.

#### Fraktion 3: < 200 µm

Diese Fraktion wurde in Anlehnung an die Fraktion < 250 µm der einzigen Studie verwendet, die bisher eine Korngrößenabhängigkeit der Ingestionsraten untersucht hat [2].

**Fraktion 4: < 63 µm**

Diese Fraktion wird im Allgemeinen bei geochemischen Untersuchungen verwendet, da in ihr Spurenelemente und Schadstoffe meist angereichert sind. Sie ist andererseits die feinste Fraktion, die mit vertretbarem Aufwand durch Trockensiebung abzutrennen ist.

Wie zu erwarten, nahmen in der Regel die Siliziumkonzentrationen von der größten zur feinsten Fraktion ab und die Konzentrationen der anderen Elemente zu. Da bei den ersten 17 untersuchten Bodenproben die Konzentrationsunterschiede zwischen der Fraktion 1 (< 2000 µm) und der Fraktion 2 (< 500 µm) relativ gering waren - im Mittel kleiner als 10 % - wurde auf die weitere Untersuchung der Fraktion 1 (< 2000 µm) verzichtet.

Die Berechnung der Bodeningestion und der Obergrenzen der Bodeningestion erfolgte elementspezifisch für die Korngrößenfraktionen 2 (< 500 µm), 3 (< 200 µm) und 4 (< 63 µm).

Anschließend wurden für jeden Probanden und jede der drei Korngrößenfraktionen Mittelwerte gebildet. Dabei wurde versucht, möglichst viele Elemente einzubeziehen. Die Auswahl der Elemente erfolgte individuell für jeden Probanden und jede Korngrößenfraktion. Der Ausschluss einzelner Werte von der Mittelwertbildung wurde nach folgenden Kriterien in der genannten Reihenfolge vorgenommen:

1. Elementkonzentrationen im Stuhl liegt unter dem Blindwert oder dicht darüber d.h. die Elementmasse im Stuhl ist 0 oder sehr klein
2. Negative Werte bei der Differenz der Elementmassen im Stuhl und in der Nahrung
3. Ausreißer in allen Korngrößenfraktionen, die auf eine Zufuhr des Elements aus einer anderen Quelle als Nahrung und Boden bzw. Hausstaub hinweisen
4. Ausreißer auf Grund eines hohen Anteils der Nahrung an der Ausscheidung mit dem Stuhl (> 75 %) und dadurch bedingte größere Unsicherheit bei der Differenzbildung
5. Ausreißer in der gleichen Größenordnung wie bisher ausgeschlossene Werte
6. Ausreißer die zu einer deutlichen Verschlechterung des Mittelwertes führen

Die im dritten Kriterium genannten Quellen sind z.T. bekannt. So wurde beim Probanden 26 von den Eltern im Protokoll angegeben, dass in einem Fall Sand in der Windel beobachtet wurde, daher ist der Si-Überschuss leicht zu erklären. Überschüsse von Ti wurden auch bei den früheren Studien [4, 5] beobachtet und eine Zufuhr von Farbpigmenten aus der Wandfarbe und aus Papier vermutet.

Das letzte Kriterium wurde sehr zurückhaltend angewendet. Die von der Mittelwertbildung ausgeschlossenen Werte sind in den Tabellen 8-2 bis 8-7, 8-10 und 8-11 sowie im Anlage 5 entsprechend farbig gekennzeichnet.

In der Tabelle 6-5 sind die Verhältnisse der Elementmassen in der Nahrung zu denen im Stuhl für die einzelnen Probanden und Elemente aufgeführt. Freie Felder zeigen an, dass die Elementgehalte im Stuhl unter dem Blindwert oder dicht darüber liegen und daher die Elementmasse im Stuhl 0 oder sehr klein ist.

Tabelle 6-5: Anteil der Elementmassen in der Nahrung an den Elementmassen im Stuhl

Proband	Anteil der Elementmasse in der Nahrung an der Elementmasse im Stuhl [%]										
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
11	114	29	35	100	-	92	63	-	87	91	69
12	66	19	4	59	5	337	14	303	41	40	26
13	34	61	1	14	-	-	0	8	10	11	6
14	70	17	28	38	-	13	19	-	47	50	42
15	0	9	-	0	-	-	-	-	0	0	0
21	43	25	23	27	106	357	7	2	38	43	40
22	19	17	3	38	-	-	64	718	21	17	12
23	19	25	9	18	70	83	8	-	26	23	18
24	55	44	13	26	-	-	46	135	46	47	38
26	11	5	17	23	58	113	1	535	10	13	8
31	83	44	28	82	-	-	23	-	56	55	49
32	92	65	41	61	32	-	67	-	72	68	53
33	81	88	62	23	101	-	76	-	96	94	74
34	42	76	12	46	-	-	49	300	47	47	38
35	45	36	52	34	79	-	13	-	65	64	55
36	77	77	18	18	-	-	42	483	67	64	59
41	78	52	24	326	-	-	45	39	92	93	78
42	48	38	12	74	-	-	36	165	51	69	49
43	76	57	62	20	141	-	41	-	82	93	79
44	51	60	16	34	118	268	28	130	31	31	27
45	63	50	17	283	-	-	25	34	56	49	42
46	51	32	55	40	122	-	35	-	55	53	46

Aus den Mittelwerten der Ingestion wurden die Ingestionsraten berechnet. Die Ingestionsraten wurden entsprechend der mit dem Auftraggeber abgestimmten Konzeption auf die in der Studie durch Stuhlproben und die zugeordneten Nahrungsaufnahme belegte Studiendauer in Tagen berechnet. Diese Ingestionsrate ist in mg Boden pro Tag (mg/d) angegeben. Diese Werte können vor allem dann genutzt werden, wenn keine verlässlichen Angaben zur Spielzeit im Freien verfügbar sind.

Zusätzlich wurde die Ingestionsrate auch auf die im relevanten Studienzeitraum beim Spiel im Freien verbrachte Zeit in Stunden berechnet. Diese Ingestionsrate ist in mg Boden pro Stunde (mg/h) angegeben und kann vor allem dann angewandt werden, wenn für einzelne Personen oder Personengruppen die Spielzeit im Freien bekannt ist. Sie ist allerdings mit erhöhten Unsicherheiten verbunden, da die Spielzeit im Freien in starkem Maße von den Kriterien, die zu ihrer Ermittlung verwendet werden, abhängt. In dieser Studie wurden Wegezeiten (mit erfahrungsgemäß eher geringem Bodenkontakt mit den Händen) und größere Pausen nicht als Spielzeit gerechnet. Teilweise konnten diese Zeiten aber erst nachträglich durch Befragung der Probanden und ihrer Eltern bzw. Betreuer und unter Nutzung anderer Angaben (z.B. über Mahlzeiten) ermittelt und von den in den Tagesprotokollen pauschal aufgeführten Spielzeiten abgezogen werden. Die Unsicherheiten treten also doppelt auf: bei der Ermittlung der Ingestionsraten im Rahmen dieser Studie und bei ihrer Anwendung auf andere Personen. Außerdem lässt sich die auf die Spielzeit im Freien bezogene Ingestionsrate nicht mit der Hausstaubingestion vergleichen. Eine Korrektur des Hausstaubanteils an der Ingestion ist ebenfalls erschwert.

In der Tabelle 6-6 sind für die einzelnen Probanden und Altersgruppen die mittleren täglichen Spielzeiten im Freien aufgeführt.

Tabelle 6-6: Mittlere tägliche Spielzeit im Freien

Proband	Alter [a]	mittlere tägliche Spielzeit des Probanden [h/d]	mittlere tägliche Spielzeit der Altersgruppe	
			Mittelwert [h/d]	Variationskoeffizient [%]
15	0,33	0,42		
14	0,58	1,41		
11	0,75	0,72		
13	0,75	0,81		
12	0,83	1,68		
<b>Altersgruppe 1</b>			<b>1,01</b>	<b>51</b>
26	1,00	3,00		
23	1,33	3,29		
22	1,58	3,75		
21	1,66	4,59		
24	1,83	2,14		
<b>Altersgruppe 2</b>			<b>3,35</b>	<b>27</b>
32	2,08	3,93		
35	2,42	2,14		
33	3,75	3,37		
36	4,66	3,25		
31	5,75	3,19		
34	6,83	4,32		
<b>Altersgruppe 3</b>			<b>3,37</b>	<b>22</b>
43	7,00	5,42		
46	8,75	3,74		
44	8,92	4,50		
41	9,42	4,50		
42	11,00	3,27		
45	11,83	6,15		
<b>Altersgruppe 4</b>			<b>4,60</b>	<b>23</b>
<b>alle</b>			<b>3,16</b>	<b>48</b>

Im Unterschied zu den hier angegebenen Werten für die Spielzeit wird in den Berechnungsgrundlagen - Bergbau [2] die Aufenthaltszeit als Bezugsgröße verwendet. Die Aufenthaltszeiten der Probanden im Freien liegen zum Teil deutlich über den Spielzeiten, weil zu den Aufenthaltszeiten auch die Wegezeiten und Tätigkeiten ohne Bodenberührung (z.B. Radfahren und Lesen) zu rechnen sind. Da die Aufnahme von Boden über die Hand in den Mund nur bei der direkten Bodenberührung stattfinden kann, erscheint der Bezug auf die Spielzeit sachgemäßer. Hinsichtlich der Ermittlung bzw. Abschätzung gibt es zwischen Spielzeit und Aufenthaltszeit auch keine wesentlichen Unterschiede, die zu einer Bevorzugung der Aufenthaltszeit führen.

Zum Vergleich werden die in den „Standards zur Expositionsabschätzung“ [1] **vorläufig** (Hervorhebung im Original) empfohlenen durchschnittlichen Aufenthaltszeiten im Freien genannt:

< 1 Jahr	1 h/d
1 – 3 Jahre	2 h/d
4 – 6 Jahre	3 h/d
7 – 9 Jahre	3 h/d
10 – 14 Jahre	3 h/d
15 – 19 Jahre	3 h/d
20 – 75 Jahre	3 h/d.

Es ist zu erkennen, dass schon die Spielzeiten im Freien in dieser Studie diese Werte erreichen oder überschreiten. Gemäß der Aufgabenstellung möglichst günstige Ingestionsbedingungen zu schaffen war dies auch beabsichtigt.

## 6.6 Berechnung der Hausstaubingestion

Die Berechnung der Hausstaubingestion erfolgte analog der Berechnung der Bodeningestion, nur diesmal unter der Annahme, dass kein Boden ingestiert wurde. Dabei wurde die Formel (8) im Abschnitt 2.4 herangezogen. Statt der Elementkonzentrationen im Boden wurden die Elementkonzentrationen in den Hausstaubproben verwendet.

Wie bei der Bodeningestion wurde die Hausstaubingestion aus der Differenz der Elementmassen im Stuhl und in der Nahrung berechnet. Für die Berechnung der Obergrenze der Hausstaubingestion wurde die Nahrung nicht berücksichtigt und nur die mit dem Stuhl ausgeschiedene Elementmasse zu Grunde gelegt.

Bei Hausstaub wurde nur die Korngrößenfraktion < 200 µm abgetrennt und untersucht, da bei dieser der eher störende Einfluss von Sandkörnern und Fasern hinreichend gering erschien.

Die Mittelwertbildung und Berechnung der Ingestionsraten erfolgte analog zum Vorgehen bei der Bodeningestion. Es wurden aber keine auf die Spielzeit bezogenen Ingestionsraten berechnet, da die Ingestion von Hausstaub nicht nur in der reinen Spielzeit stattfindet.



## 7 Unsicherheitsbilanz

Im Folgenden soll eine Bilanz der in den einzelnen Schritten der Untersuchung auftretenden Unsicherheiten aufgestellt werden.

Bei der Auswertung wurde bereits versucht, einen Teil der primär vorhandenen Unsicherheiten durch geeignete Korrekturmaßnahmen zu verringern. Diese Korrekturen sind im Abschnitt 6.3 beschrieben. In der folgenden Übersicht sind nur noch die nicht korrigierten Anteile quantifiziert. In der Tabelle 7-1 sind zu den einzelnen Unsicherheitskomponenten folgende Angaben aufgeführt:

- Beschreibung der Unsicherheitskomponente
- Besonderheiten bei einzelnen Probenarten, Elementen oder Probanden
- der mögliche Einfluss auf die ermittelte Ingestionsrate, d.h. ob es zu einer Überschätzung bzw. Unterschätzung der Ingestionsrate kommen kann oder ob beides möglich ist
- der Standardvariationskoeffizient (relative Standardunsicherheit)
- die Methode zur Abschätzung des Standardvariationskoeffizienten.

Tabelle 7-1: Übersicht über die Unsicherheitskomponenten

Einfluss auf das Ergebnis

+ führt zu einer Überschätzung der Ingestionsrate

- führt zu einer Unterschätzung der Ingestionsrate

+/- kann sowohl zu Über- wie Unterschätzung der Ingestionsrate führen

VK Standardvariationskoeffizient

Meth. Abschätzungsmethode:

M Messung und Berechnung

E auf Erfahrung basierende Schätzung

S Schätzung

Unsicherheitskomponenten	Einfluss auf das Ergebnis	VK [%]	Meth.
<b>Nahrung</b>			
unvollständige Erfassung in den Protokollen	+	5	S
Ungenauigkeit der Protokolle (ungenau Bezeichnung)	+/-	10	E
Massebestimmung (bei den Probanden)	+/-	5	M
Inhomogenität der Lebensmittel	+/-	10	E
Abweichung zum Original bei Nahrungsduplikaten	+/-	10	S
<b>Stuhl</b>			
Vollständigkeit der Proben	-	5	E
Inhomogenität der Stuhlproben	+/-	5	E
Verunreinigung des Stuhls	+	10	S
Abweichung der Masse der verwendeten Windel vom Windelmuster (relevant bei Probanden 11, 12, 14, 21, 24, 26, 32)	+/-	10	E
Abweichung des Elementgehalts der verwendeten Windel vom Windelmuster (relevant bei Probanden 14, 15, 26, 32)	+/-	20	E
<b>Boden</b>			
Abweichung der Probe vom ingestierten Boden	+/-	10	E
<b>Hausstaub</b>			
Abweichung der Probe vom ingestierten Hausstaub	+/-	10	E

Unsicherheitskomponenten	Einfluss auf das Ergebnis	VK [%]	Meth.
<b>Probenvorbereitung</b>			
Massebestimmung bei der Veraschung (insbesondere durch Korrosion der Schalen bei Lebensmitteln)	+ / (-)	5	M
Inhomogenität der Proben (Aschemasse)	+ / -	5	E
<b>Aufschluss</b>			
Massebestimmung beim Aufschluss	+ / -	< 1	M
Konstanz der Wiederfindung beim Aufschluss (elementabhängig, siehe Tabelle 5-2)	+ / -	5–15	M
Unterschiede zwischen Referenzmaterial und Proben und zwischen den Proben hinsichtlich der Wiederfindung	+ / -	10	E
<b>Analytik</b>			
Verdünnung und innerer Standard	+ / -	< 1	M
ICP-MS (element- und konzentrationsabhängig)	+ / -	5-10	M
Schwankung des Blindwerts (elementabhängig)	+ / -	30	M
<b>Berechnung der Elementbilanz</b>			
Subtraktion des Blindwertes <sup>1)</sup> (Auswirkung der Schwankung des Blindwertes, nur bei Stuhl und Nahrungsmitteln relevant)	+ / -	5	M
Auswirkung der Unsicherheit der gastrointestinalen Transitzeit auf die berechnete Ingestion	+ / -	10	M
Nahrung vor dem Studienzeitraum, die im ersten Stuhlgang enthalten ist	+	5	E
Nahrung im Studienzeitraum, die im letzten Stuhlgang nicht enthalten ist	-	5	E
gastrointestinale Resorption löslicher Anteile der Elemente in der Nahrung	-	10	S
<b>Berechnung der Ingestion</b>			
Mittelung der Konzentrationen über mehrere Bodenproben eines Probanden (elementabhängig)			
Fraktion < 500 µm	+ / -	10-30	M
Fraktion < 200µm		10-30	
Fraktion < 63 µm		20-35	
Mittelung der Konzentrationen über mehrere Hausstaubproben eines Probanden (elementabhängig)	+ / -	20-45	M
Auswahl der Elemente für Mittelwertbildung (Eliminierung von Ausreißern, insbesondere durch hohem Beitrag der Nahrung)	+ / -	5	E
Mittelung der Ingestion über mehrere Elemente (probandenabhängig)	+ / -	45 15-90	M
<b>Berechnung der Ingestionsrate</b>			
Studienzeitraum in Tagen	+ / -	2	M
Spielzeit im Freien (probandenabhängig)	+ / -	10 5-25	E

<sup>1)</sup> Bei den Elementen Ga, Y und Nb treten deutlich größere Unsicherheiten bei Veränderungen des Blindwertes auf. In Modellrechnungen wurde der Blindwert jeweils um 10 % nach unten und oben verändert. Dabei veränderte sich die berechnete Ingestion bei den einzelnen Probanden um bis zu 150 %. Dabei gingen die Veränderungen in beiden Richtungen sowohl bei der Verkleinerung als auch bei der Vergrößerung des Blindwertes. Veränderungen bis zu 50 % wurden bei Si und bis zu 20 % bei Sc beobachtet. Die Auswirkungen dieser Veränderungen auf den über die Elemente berechneten Mittelwert der Ingestion sind aber gering, da die kritischen Elemente nur in Ausnahmefällen in die Mittelwertbildung einbezogen waren.

Hinsichtlich der Möglichkeit der Quantifizierung lassen sich die Unsicherheitskomponenten in drei Gruppen einteilen:

1. Bestimmung der Unsicherheit über Messung und/oder Berechnung  
Die Unsicherheit kann direkt aus den Messungen bestimmt oder berechnet werden.  
Beispiele: Massebestimmungen, Wiederfindungsraten, Ergebnisse der ICP-MS, Mittelwertbildung
2. Abschätzung der Unsicherheit auf Grund vorliegender Erfahrungen  
Die Unsicherheit kann auf Grund vorliegender Erfahrungen oder durch Vergleich z.B. zwischen den Probanden näherungsweise ermittelt werden.  
Beispiele: Inhomogenität der Materialien, Unterschied zwischen Probe und beprobtem Material
3. plausible Schätzung der Größenordnung der Unsicherheit  
Die Unsicherheit kann nur auf Grund von Plausibilitätsbetrachtungen grob geschätzt werden.  
Beispiele: Unvollständigkeit der Protokolle, Unterschied zwischen Original und Duplikat, gastrointestinale Resorption

Ein weiteres Problem ist die teilweise beträchtliche Variation der Unsicherheiten, insbesondere zwischen verschiedenen Probanden, aber auch zwischen verschiedenen Nahrungsmitteln oder Elementen. Hier konnten nur Mittelwerte angegeben werden.

Auf Grund dieser Umstände ist keine mathematische Berechnung der Gesamtunsicherheit möglich. Die Gesamtunsicherheit kann aber bei Berücksichtigung aller Unsicherheitskomponenten geschätzt werden. Das höchste Gewicht hat der Unsicherheitsbeitrag der Mittelung der Ingestion über mehrere Elemente für einen Probanden. Einerseits ist das mit 45 % die zahlenmäßig größte Unsicherheitskomponente. Andererseits wird über die Unterschiede zwischen den Elementen der größte Teil der Unsicherheitskomponenten der Arbeitsschritte vom Aufschluss der Proben über die Analytik bis hin zur Berechnung der Elementbilanzen und der Ingestion mit erfasst, da diese weitestgehend elementspezifisch sind. Ebenfalls erfasst sind dabei die Unterschiede im Elementgehalt der Windelmuster zu den benutzten Windeln, die aber nur bei 4 Probanden auftreten. Die noch nicht erfassten Unsicherheitsbeiträge liegen alle in der Größenordnung von 1 bis 10 %.

So kann die mittlere Gesamtunsicherheit der Ermittlung der Ingestionsraten (in mg/d) auf 50 % abgeschätzt werden. Für die einzelnen Probanden wird sie, je nach Unsicherheit der Mittelwertbildung über die Elemente, im Bereich von 30 bis 90 % liegen.

Auf Grund der Unsicherheit bei der Bestimmung der Spielzeit im engeren Sinne, ist die Unsicherheit der Ingestionsraten in mg/h, die sich auf die Spielzeit im Freien beziehen, größer. Sie beträgt etwa 60 %.

Diese Schätzung wird durch die Unsicherheit der Mittelwertbildung über das ganze Probandenkollektiv bestätigt, die für alle Korngrößenfraktionen des Bodens und den Hausstaub als Berechnungsgrundlage ca. 65 % beträgt. Hier kommen ja als zusätzliche Unsicherheitskomponenten noch das unterschiedliche Spiel- und Hygieneverhalten der Probanden hinzu, so dass die größere Unsicherheit gegenüber den Ingestionsraten für den einzelnen Probanden erklärlich ist.

## 8 Zusammenstellung und Diskussion der Ergebnisse

### 8.1 Wertung der als Tracer verwendeten Elemente

Zur Bewertung der Elemente hinsichtlich ihrer Zuverlässigkeit und Relevanz zur Ermittlung der Boden- bzw. Hausstaubingestion können die gleichen Kriterien angewandt werden, die zum Ausschluss einzelner Werte bei der Mittelwertbildung über die Elemente herangezogen wurden (siehe Abschnitt 6.5). Wesentlich sind dabei die ersten drei Ausschlusskriterien, da sie am wenigsten von subjektiven Einschätzungen abhängig sind:

1. Elementkonzentrationen im Stuhl liegt unter dem Blindwert oder dicht darüber d.h. die Elementmasse im Stuhl ist 0 oder sehr klein
2. Negative Werte bei der Differenz der Elementmassen im Stuhl und in der Nahrung
3. Ausreißer in allen Korngrößenfraktionen, die auf eine Zufuhr des Elements aus einer anderen Quelle als Nahrung und Boden bzw. Hausstaub hinweisen.

Die Hauptrolle spielt dabei die Problematik hoher oder veränderlicher Blindwerte, die sich nicht nur im ersten Kriterium zeigt, sondern über die geringen Konzentrationen der Elemente in Lebensmitteln auch einen wesentlichen Einfluss auf das zweite Kriterium hat.

In der Tabelle 8-1 ist für alle Elemente die Zahl der aus diesen Gründen ausgeschlossenen Werte aufgeführt.

Tabelle 8-1: Zahl der von der Mittelwertbildung ausgeschlossenen Werte

nach Kriterium	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
1	-	-	1	-	12	15	1	10	-	-	-
2	1	-	-	3	5	4	-	8	-	-	-
3	-	1	1	4	-	-	-	1	-	-	-
Summe	1	1	2	7	17	19	1	19	0	0	0
Anteil [%]	5	5	9	32	77	86	5	86	0	0	0

Auf Grund hoher oder veränderlicher Blindwerte sind in dieser Studie demzufolge die Elemente Ga, Y und Nb für die meisten Probanden als nicht geeignet anzusehen. Die Zufuhr von Ti aus anderen Quellen als Nahrung und Boden- bzw. Hausstaubingestion spielt dafür im Vergleich zu früheren Studien nur eine untergeordnete Rolle. Während die Quelle der zusätzlichen Zufuhr von Si beim Proband 26 bekannt ist (Sand in der Windel war im Protokoll vermerkt) ist sie bei den Elementen Sc, Ti und Nb nicht erkennbar. Bei früheren Studien wurden als Quelle des Ti Farbstoffe aus dem Papier und Wandfarben vermutet.

### 8.2 Bodeningestion

In der Anlage 5 sind für die einzelnen Probanden die relevanten Ausgangsdaten (Elementbilanz, Elementkonzentrationen in Boden und Hausstaub, relevante Studiendauer) und die berechneten Bodeningestionen und Obergrenzen der Bodeningestion zusammengestellt. Außerdem sind die Ergebnisse der Mittelwertbildung über mehrere Elemente und die Kriterien, die zum Ausschluss einzelner Werte bei der Mittelwertbildung führten, dargestellt.

Bei Probanden, die an mehreren Orten gespielt haben, wäre es möglich, dass der Proband Boden vor allem von einem Spielort ingestiert hat. Das würde sich darin zeigen, dass das Elementmuster der Differenz zwischen Stuhl und Nahrung besser mit dem Elementmuster der Bodenprobe dieses Spielorts, als mit denen anderer Spielorte übereinstimmt. Das konnte aber bei keinem Probanden festgestellt werden. Auch bei den Varianzkoeffizienten, die sich aus der Mittelung über die Elemente ergeben, sind keine signifikanten Unterschiede zwischen den einzelnen Bodenproben und dem Mittelwert aller Bodenproben festzustellen. Deshalb wurde der Mittelwert über alle Bodenproben zur weiteren Auswertung ausgewählt, da dieser auch mögliche Abweichungen des ingestierten Bodens von einzelnen Bodenproben besser berücksichtigt.

In den Tabellen 8-2 bis 8-4 sind die Werte der Bodeningestionen und in den Tabellen 8-5 bis 8-7 die Obergrenzen der Bodeningestion für alle Probanden zusammengefasst. Die Darstellung erfolgt für jede Korngrößenfraktion getrennt.

Die Obergrenzen der Bodeningestion liegen dabei im Mittel aller Probanden um den Faktor 2 über den berechneten Bodeningestionswerten. Der Faktor variiert probandenabhängig zwischen 0,9 und 6.

Zur Veranschaulichung der Altersverteilung der Bodeningestionsraten für die einzelnen Korngrößenfraktionen sind in den folgenden Abbildungen die Ingestionsraten gegenüber dem Alter der Probanden dargestellt. Die Abbildungen 8-1 bis 8-3 beinhalten die Bodeningestionsraten bezogen auf die relevante Studiendauer in mg/d und die Abbildungen 8-4 bis 8-6 die Bodeningestionsraten bezogen auf die Spielzeit im Freien in mg/h. Als Ingestionsraten sind die Werte angegeben, die bei der Mittelwertbildung über die Elemente erhalten wurde. Die Spannweiten verdeutlichen die Variationskoeffizienten dieser Mittelwertbildung.





Tabelle 8-4: Bodeningestion aller Probanden (Fraktion < 63 µm)

Proband	Ingestion [mg] berechnet über													Ingestionsraten														
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd	Studien- dauer [d]	Spiel im Freien [h]	Ingestion Mittel [mg]	VK [%]	[mg/d]	[mg/d]	Min [mg/d]	Max [mg/d]	Mittel [mg/h]	VK [%]	Mittel [mg/h]	Min [mg/h]	Max [mg/h]				
<b>Bodeningestion</b>																												
<b>&lt; 63 µm</b>																												
11	-18	140	37	0	-10	7	94	-2.938	27	16	45	9,0	6,50	52	91	6	8											
12	81	223	586	102	216	-261	270	-423	281	316	261	11,0	18,50	219	39	20	12											
13	69	138	694	217	7	-56	78	251	262	230	170	10,5	8,50	177	43	17	21											
14	97	360	194	368	60	168	308	-1.441	254	261	236	11,0	15,50	269	27	24	17											
15	180	213	13	94	0	0	7	0	104	122	91	12,0	5,00	134	38	11	27											
21	144	332	369	294	-17	-385	461	6.010	322	253	184	11,0	50,50	295	34	27	6											
22	327	724	936	211	-695	-379	92	-1.371	374	410	318	10,0	37,50	472	55	47	13											
23	791	1.095	736	788	117	21	297	-1.563	728	885	670	10,5	34,50	813	17	77	24											
24	131	849	993	585	-107	-424	90	-118	180	189	162	10,5	22,50	397	91	38	18											
26	835	2.041	354	452	84	-11	344	-868	710	742	549	11,0	33,00	569	35	52	17											
31	52	1.230	686	81	-912	-820	246	-6.827	282	265	225	10,5	33,50	341	57	32	10											
32	12	184	114	104	196	-392	34	-569	56	68	76	10,5	41,25	104	57	10	3											
33	59	109	90	1.394	-3	-589	59	-545	15	24	71	9,5	32,00	61	55	6	2											
34	248	213	665	2.838	-273	-927	379	-1.755	327	524	292	10,0	43,25	378	43	38	9											
35	170	470	91	292	87	-745	297	-202	129	134	115	10,5	22,50	198	65	19	9											
36	76	235	636	1.056	-423	-614	87	-4.144	148	146	128	10,0	32,50	137	42	14	4											
41	147	488	1.992	-1.150	-727	-1.785	149	449	65	53	139	10,5	47,25	274	65	26	6											
42	235	650	1.019	141	-971	-1.222	236	-290	381	218	245	11,0	36,00	328	52	30	9											
43	50	389	63	669	-94	-387	194	-350	42	16	36	6,5	35,25	417	57	64	12											
44	211	365	801	3.671	-50	-1.005	997	-305	721	1.191	592	10,0	45,00	697	49	70	15											
45	159	506	1.189	-2.034	-948	-787	339	1.653	307	380	303	10,0	61,50	332	34	33	5											
46	219	524	160	310	-133	-388	136	-341	277	285	220	8,5	31,75	266	45	31	8											
Gruppe 1																												
Gruppe 2																												
Gruppe 3																												
Gruppe 4																												
gesamt																												
Gruppe 1 und 2																												
Gruppe 3 und 4																												
Gruppe 2 bis 4																												





Tabelle 8-6: Obergrenzen der Bodeningestion aller Probanden (Fraktion < 200 µm)

Proband	Ingestion [mg] berechnet über											Ingestionsraten														
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd	Studien- dauer [d]	Spiel im Freien [h]	Ingestion Mittel [mg]	VK [%]	[mg/d]	[mg/d]	VK [%]	Min [mg/d]	Max [mg/d]	Mittel [mg/h]	VK [%]	Min [mg/h]	Max [mg/h]		
<b>Obergrenze der Bodeningestion (ohne Berücksichtigung der Nahrung)</b>																										
<b>&lt; 200 µm</b>																										
11	138	183	79	169	0	117	400	0	270	248	190	9,0	6,50	199	48	22	31									
12	252	299	606	247	223	112	400	215	341	348	234	11,0	18,50	298	43	27	16									
13	99	405	626	247	6	0	92	261	306	282	198	10,5	8,50	236	44	22	28									
14	356	449	274	648	93	200	413	0	507	553	422	11,0	15,50	425	32	39	27									
15	227	205	26	136	0	0	12	0	157	180	130	12,0	5,00	172	22	14	34									
21	313	393	646	552	363	222	849	8.818	825	707	485	11,0	50,50	535	41	49	11									
22	523	790	1.339	400	24	19	429	327	745	729	557	10,0	37,50	649	47	65	17									
23	984	1.288	856	1.074	411	144	414	15	1.079	1.289	909	10,5	34,50	1.068	16	102	31									
24	316	1.300	1.350	960	44	0	231	403	441	461	347	10,5	22,50	645	68	61	29									
26	1.315	2.131	645	810	282	138	692	344	1.201	1.304	886	11,0	33,00	979	29	89	30									
31	420	1.949	1.453	630	0	0	718	107	1.000	938	760	10,5	33,50	983	50	94	29									
32	150	516	190	266	283	2	116	0	220	236	177	10,5	41,25	239	49	23	6									
33	410	729	320	2.678	448	0	499	0	646	643	471	9,5	32,00	521	27	55	16									
34	449	748	703	6.216	129	30	937	839	753	1.244	594	10,0	43,25	783	30	78	18									
35	393	644	372	640	629	0	569	0	552	547	360	10,5	22,50	523	22	50	23									
36	518	918	1.372	2.045	110	0	373	2.331	949	883	696	10,0	32,50	1.121	60	112	34									
41	711	1.168	2.641	547	132	0	304	771	805	813	635	10,5	47,25	719	34	68	15									
42	487	989	1.264	619	95	4	418	490	897	738	497	11,0	36,00	711	40	65	20									
43	233	854	182	897	248	0	436	0	263	260	189	6,5	35,25	396	71	61	11									
44	451	766	891	6.639	254	614	1.757	958	1.272	2.176	1.013	10,0	45,00	1.100	50	110	24									
45	441	979	1.576	1.170	73	76	550	2.731	739	792	562	10,0	61,50	851	44	85	14									
46	541	674	517	808	758	0	454	0	885	871	602	8,5	31,75	679	24	80	21									
Gruppe 1																										
Gruppe 2																										
Gruppe 3																										
Gruppe 4																										
gesamt																										
Gruppe 1 und 2																										
Gruppen 3 und 4																										
Gruppen 2 bis 4																										

Tabelle 8-7: Obergrenzen der Bodeningestion aller Probanden (Fraktion < 63 µm)

Proband	Ingestion [mg] berechnet über											Ingestionsraten													
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd	Studien- dauer [d]	Spiel- Freien [h]	Ingestion Mittel [mg]	VK [%]	[mg/d]	[mg/d]	Min [mg/d]	Max [mg/d]	Mittel [mg/h]	VK [%]	Min [mg/h]	Max [mg/h]		
<b>Obergrenze der Bodeningestion (ohne Berücksichtigung der Nahrung)</b>																									
<b>&lt; 63 µm</b>																									
11	128	199	57	146	0	91	254	0	214	189	147	9,0	6,50	158	39	18	24								
12	237	275	613	245	228	110	313	208	480	530	352	11,0	18,50	326	47	30	18								
13	104	354	698	251	7	0	78	274	290	258	180	10,5	8,50	224	42	21	26								
14	320	433	269	593	92	192	378	0	483	527	405	11,0	15,50	400	32	36	26								
15	180	233	13	94	0	0	7	0	104	122	91	12,0	5,00	137	42	11	27								
21	254	444	481	402	287	150	498	6.110	522	445	305	11,0	50,50	379	33	34	7								
22	404	870	969	338	18	13	257	222	475	496	361	10,0	37,50	488	54	49	13								
23	981	1.457	808	962	394	126	321	13	990	1.143	818	10,5	34,50	1.023	22	97	30								
24	289	1.522	1.138	787	39	0	165	334	335	359	263	10,5	22,50	577	82	55	26								
26	935	2.145	428	587	199	86	348	200	788	849	597	11,0	33,00	647	34	59	20								
31	315	2.182	948	448	0	0	321	60	636	586	440	10,5	33,50	528	42	50	16								
32	148	524	193	267	289	2	103	0	202	214	162	10,5	41,25	233	53	22	6								
33	310	877	234	1.810	373	0	243	0	389	399	276	9,5	32,00	388	54	41	12								
34	429	887	756	5.215	139	29	737	876	615	985	472	10,0	43,25	720	28	72	17								
35	312	735	188	446	404	0	342	0	364	370	254	10,5	22,50	379	41	36	17								
36	330	1.036	780	1.293	76	0	152	1.082	450	405	312	10,0	32,50	649	63	65	20								
41	668	1.022	2.634	508	129	0	272	734	803	805	623	10,5	47,25	679	33	65	14								
42	453	1.049	1.164	541	97	4	367	447	777	695	483	11,0	36,00	664	43	60	18								
43	215	908	165	837	231	0	328	0	239	236	171	6,5	35,25	370	78	57	10								
44	431	907	959	5.570	274	599	1.383	1.001	1.039	1.722	805	10,0	45,00	983	39	98	22								
45	427	1.017	1.434	1.112	70	68	450	2.493	692	742	524	10,0	61,50	800	45	80	13								
46	444	770	354	517	599	0	209	0	616	606	405	8,5	31,75	502	33	59	16								
Gruppe 1																									
Gruppe 2																									
Gruppe 3																									
Gruppe 4																									
gesamt																									
Gruppe 1 und 2																									
Gruppen 3 und 4																									
Gruppen 2 bis 4																									

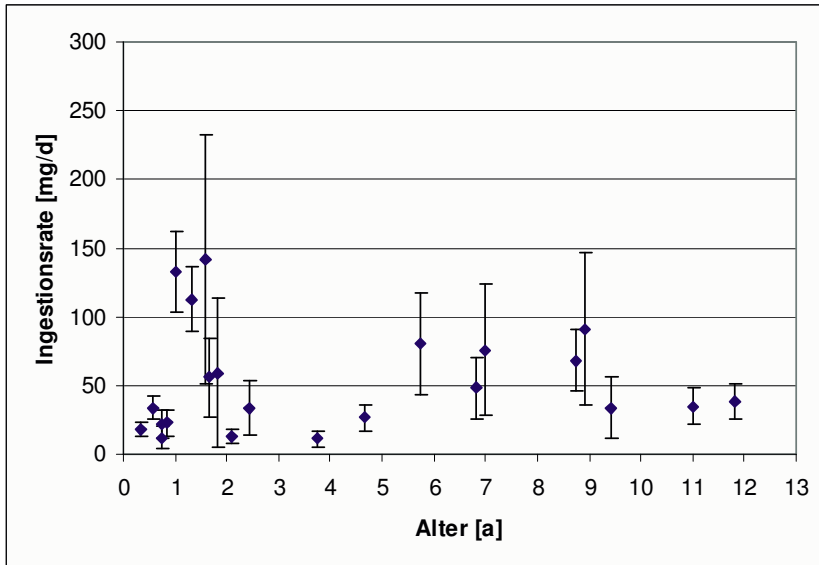


Abbildung 8-1: Bodeningestionsraten [mg/d], Fraktion < 500 µm

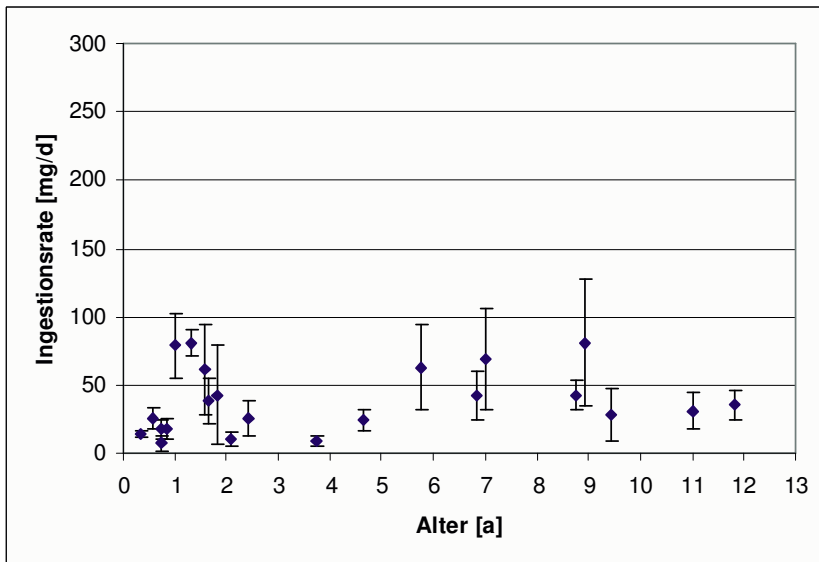


Abbildung 8-2: Bodeningestionsraten [mg/d], Fraktion < 200 µm

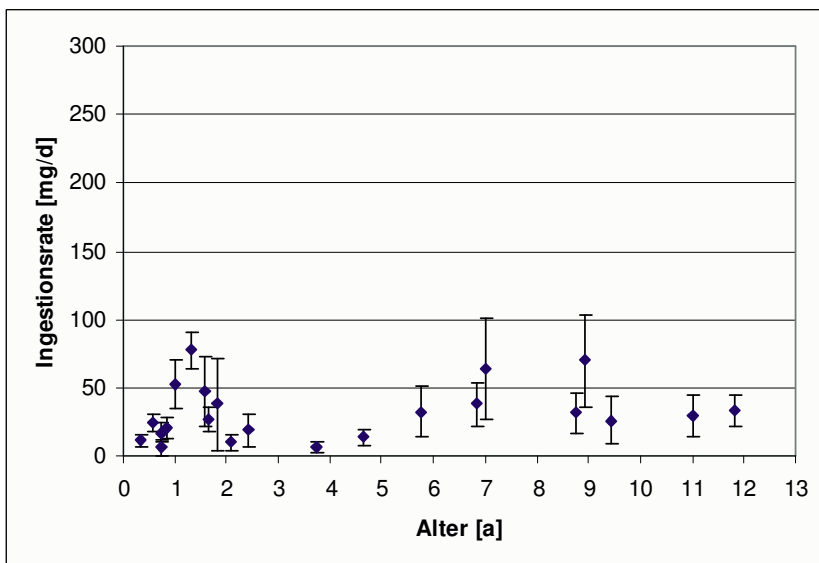


Abbildung 8-3: Bodeningestionsraten [mg/d], Fraktion < 63 µm

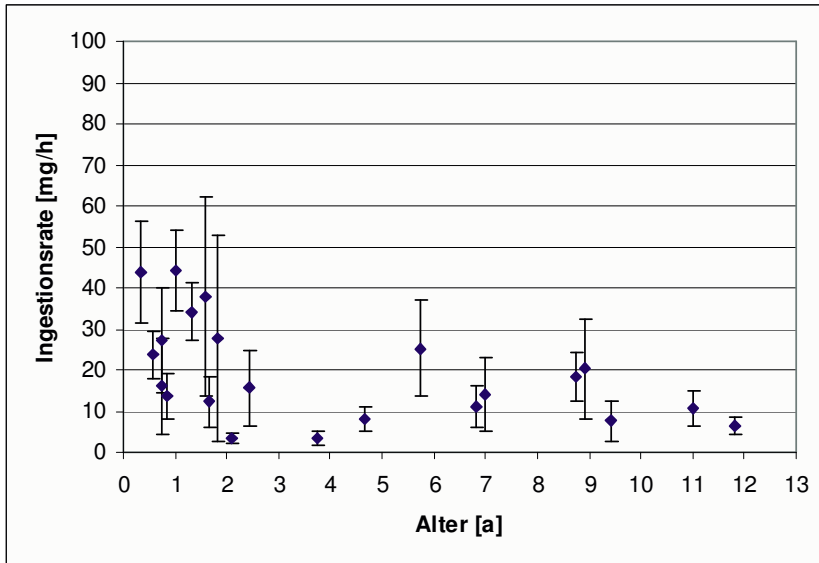


Abbildung 8-4: Bodeningestionsraten [mg/h Spielzeit], Fraktion <math> < 500 \mu m </math>

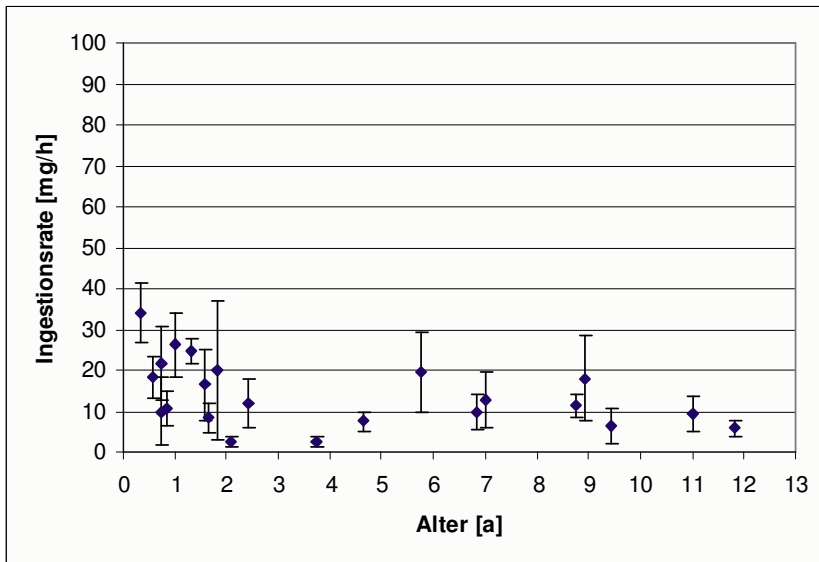


Abbildung 8-5: Bodeningestionsraten [mg/h Spielzeit], Fraktion <math> < 200 \mu m </math>

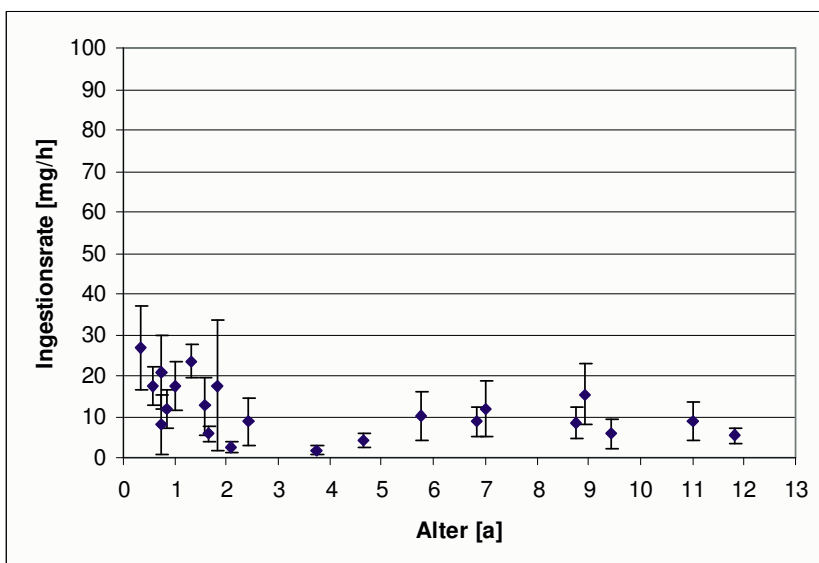


Abbildung 8-6: Bodeningestionsraten [mg/h Spielzeit], Fraktion <math> < 63 \mu m </math>

In den Tabellen 8-2 bis 8-7 sind auch ausgewählte statistische Kenndaten (Mittelwert, Variationskoeffizient, Minimum, Maximum) der Verteilung der Bodeningestionsraten in den Altersgruppen zu finden. An diesen Werten ist zu erkennen, dass sich bei den auf die Studientage bezogenen Bodeningestionsraten nur die Altersgruppe 1 (< 1 Jahr) von den anderen drei Altersgruppen durch geringere Werte unterscheidet, wobei der Unterschied auf Grund der geringen Probandenzahl statistisch nicht signifikant ist.

Bei den auf die Spielzeit im Freien bezogenen Bodeningestionsraten gibt es deutlichere Unterschiede zwischen den Altersgruppen 1 und 2 (< 2 Jahre) einerseits und den Altersgruppen 3 und 4 (2 – 12 Jahre) andererseits. Die Ingestionsraten der jüngeren Altersgruppen sind dabei höher, als die der älteren. Aber auch diese Unterschiede sind statistisch nicht signifikant. Bei den jüngeren Altersgruppen ist auf Grund des Spielverhaltens auch mit einem höheren Anteil Hausstaubingestion an der Gesamtingestion zu rechnen.

Ausgewählte statistische Kenndaten für das gesamte Probandenkollektiv sind in der Tabelle 8-8 zusammengestellt.

Tabelle 8-8: Statistische Kenndaten der Verteilung der Bodeningestionsraten

Fraktion	Mittel	VK [%]	Minimum	Median	Quantil 90 %	Quantil 95 %	Maximum
<b>Bodeningestionsraten in mg/d</b>							
< 500 µm	53	73	11	37	110	131	142
< 200 µm	38	62	7	33	78	81	81
< 63 µm	31	64	6	28	63	69	77
<b>Bodeningestionsraten in mg/h</b>							
< 500 µm	19	64	3,2	16	38	44	44
< 200 µm	14	58	2,6	12	24	26	34
< 63 µm	12	59	1,9	10	20	23	27

Entsprechend der Konzeption der Studie war für die Beobachtung und Probenahme ein Zeitraum ausgewählt worden, der auf Grund des warmen und trockenen Wetters und der Schulferien einen hohen Zeitanteil für das Spiel im Freien ermöglichte. Die Probanden haben dies auch in einem hohen Maße genutzt. Deshalb ist zu erwarten, dass die hier ermittelten Bodeningestionsraten eher den oberen Bereich im Jahresverlauf belegen.

Zum Vergleich sind einige Kenndaten früherer Studien aus der Literatur in der Tabelle 8-9 aufgelistet.

Tabelle 8-9: Statistische Kenndaten der Verteilung der Bodeningestionsraten aus der Literatur

Fraktion	Mittel [mg/d]	VK [%]	Median [mg/d]	Quantil 90 % [mg/d]	Quantil 95 % [mg/d]	Maximum [mg/d]
<b>Davis et al. [3]</b>						
< 2000 µm	37	35				
<b>Amherst-Studie [13]</b>						
< 2000 µm	179		45		208	
<b>Anaconda-Studie [2] („Best Tracer Method“ Auswahl des jeweils besten Tracerelements)</b>						
< 2000 µm	65		20	224	282	610
<b>Anaconda-Studie [2]</b>						
< 250 µm	55		39	157	197	373

Auf Grund der oben beschriebenen Vergleichbarkeit der Elementkonzentrationen in den Fraktionen  $< 2000 \mu\text{m}$  und  $< 500 \mu\text{m}$  in dieser Studie können die Angaben für die Fraktion  $< 500 \mu\text{m}$  mit denen der Fraktion  $< 2000 \mu\text{m}$  aus der Literatur direkt verglichen werden. Beim Vergleich mit den bisherigen Studien ist zu sehen, dass die Mittelwerte und Mediane, mit Ausnahme des Mittelwertes der Amherst-Studie, mit denen dieser Studie gut übereinstimmen. Die oberen Kennwerte (90% und 95 % Quantile und Maximum) sind aber in der Literatur deutlich höher.

Die in den Anleitungen zur Expositionsabschätzung bzw. zur Ermittlung von Prüfwerten empfohlenen Werte für die Bodeningestionsraten können mit den experimentell ermittelten Bodeningestionsraten nicht direkt verglichen werden. Die Empfehlungen wurden aus den zuvor genannten Studien abgeleitet und stellen daher keine vergleichbare Primärquelle dar. Außerdem wurden bei der Festlegung der Werte entsprechend ihrem Charakter ein hoher Grad an Konservativität zu Grunde gelegt und probabilistische Berechnungen einbezogen. Sie sind aber zur Orientierung nachfolgend und in den Tabellen 8-10 und 8-11 aufgeführt:

- Exposure Factors Handbook [14] (Korngrößenfraktion  $< 2000 \mu\text{m}$ )

Mittel	100 mg/d
Quantil 95 %	500 mg/d

- „Bekanntmachung über Methoden und Maßstäbe für die Ableitung der Prüf- und Maßnahmewerte nach der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV)“ [3]

Alter	1 – 8 Jahre
Bodeningestionsrate	500 mg/d
Nutzungsfrequenz „Kinderspielfläche“	240 d/a
(Für die Nutzungskategorien „Wohngebiet“ und „Park- und Freizeitanlage“ wird eine um den Faktor 2 bzw. 5 geringere Exposition angenommen.)	

Tabelle 8-10: **Vorläufige** Empfehlungen zu Bodeningestionsraten in den "Standards zur Expositionsabschätzung" [1]  
(Kennzeichnung in der zitierten Stelle)

Altersgruppe [a]	Bodeningestionsrate <sup>1)</sup> [mg/d]	
	wahrscheinlicher Fall	ungünstiger Fall
< 1	20 – 100	100 – 500
1 – 3	20 – 100	100 – 500
4 – 6	20 – 100	100 – 500
7 – 9	5 – 25	25 – 125
10 – 14	5 – 25	25 – 125
15 – 19	2 - 10	10 – 50
20 - 75	2 - 10	10 – 50

<sup>1)</sup> „In der Regel sollte für eine Abschätzung der untere Wert des genannten Bereiches verwendet werden; der obere Wert sollte auf eine abgestufte Risikoabschätzung beschränkt sein, in der weitere Einflussgrößen (z.B. Resorptionsverfügbarkeit, Zeitbudget u.a.) detailliert untersucht werden.“

Tabelle 8-11: Bodeningestionsraten für die Korngrößenfraktion < 500 µm und Expositionszeiten aus den Berechnungsgrundlagen - Bergbau [2]

Altersgruppe [a]	Bodeningestionsrate (Korngrößenfraktion < 500 µm) [mg/h Aufenthaltszeit]	Expositionszeit [h/a]
≤ 1	0	0
1 – 2	50	0
2 – 7	30	250
7 – 12	6	250
12 – 17	6	250
> 17	6	100

Von den im Rahmen dieser Studie untersuchten Korngrößenfraktionen erscheint die Verwendung der Fraktion < 63 µm am günstigsten, da hier die geringsten Standardabweichungen bei der Mittelwertbildung über mehrere Bodenproben festzustellen waren. Außerdem weist die Fraktion < 63 µm erfahrungsgemäß die höchsten Schadstoffkonzentrationen auf. Dafür gibt es folgende Ursachen:

- Schadstoffeintrag über feinkörnigen luftgetragenen Staub
- Schadstoffeintrag über suspendierte Stoffe im Wasser vorzugsweise in der Feinkornfraktion
- Höhere spezifische Oberfläche kleiner Körner führt bei der Anlagerung von Schadstoffen an der Kornoberfläche, z.B. beim Eintrag von im Wasser gelösten Stoffen, zu einer Anreicherung in der Feinkornfraktion
- Sortierungseffekte, d.h. Schadstoffe treten vor allem in Mineralen auf, die bei der Verwitterung leichter zerkleinert werden als die weitgehend schadstofffreien Quarz- und Feldspatkörner, diese Quarz- und Feldspatkörner wirken dann in den größeren Fraktionen eher verdünnend.

Außerdem werden die feineren Partikel leichter ingestiert, da sie besser an der Haut haften, über die meist die Ingestion stattfindet. Größere Partikel werden auch eher im Mund bemerkt (z.B. Knirschen zwischen den Zähnen) und dann durch Ausspucken die Ingestion verhindert.

Deshalb halten wir die Verwendung der Bodeningestionswerte im Bezug auf die Fraktion < 63 µm in Verbindung mit den Schadstoffkonzentrationen in dieser Fraktion für besonders relevant bei der Berechnung der Schadstoffexposition und der Ableitung von Richtwerten für Schadstoffe in Böden.

Unabhängig von der verwendeten Korngrößenfraktion ist es aber erforderlich, im Zusammenhang mit den Ingestionsraten auf diese hinzuweisen, damit auch die Bestimmung von Schadstoffen in der gleichen Fraktion erfolgen kann.

Es wäre zu prüfen, inwieweit die ingestierte Schadstoffmenge von der zur Berechnung verwendeten Korngrößenfraktion unabhängig ist, da die Bodeningestionsraten mit abnehmender Korngröße abnehmen, die Schadstoffkonzentrationen aber zunehmen.



### 8.3 Hausstaubingestion im Vergleich mit der Bodeningestion

Es sei an dieser Stelle noch mal darauf hingewiesen, dass Boden- und Hausstaubingestion alternativ berechnet wurden. Beide unter der Annahme, dass keine Ingestion des anderen Materials stattgefunden hat.

In der Anlage 5 sind für die einzelnen Probanden neben den Bodeningestionswerten die berechneten Hausstaubingestionen und Obergrenzen der Hausstaubingestion zusammengestellt. Außerdem sind die Ergebnisse der Mittelwertbildung über mehrere Elemente und die Kriterien, die zum Ausschluss einzelner Werte bei der Mittelwertbildung führten, dargestellt.

Bei 4 Probanden, wurden zwei Hausstaubproben bei den Eltern und im Kindergarten bzw. bei der Tagesmutter, genommen. Das betrifft die Probanden 26, 31, 33 und 36. In diesen Fällen wäre es möglich, dass der Proband Hausstaub vor allem von einer der beiden Probenahmestellen ingestiert hat. Das würde sich darin zeigen, dass das Elementmuster der Differenz zwischen Stuhl und Nahrung besser mit dem Elementmuster einer der beiden Hausstaubproben übereinstimmt. Das konnte aber bei keinem Probanden festgestellt werden. Auch bei den Varianzkoeffizienten der Mittelung über die Elemente gibt es keine signifikanten Unterschiede zwischen den beiden Hausstaubproben und zum Mittelwert. Deshalb wurde der Mittelwert beider Hausstaubproben zur weiteren Auswertung bevorzugt.

In den Tabellen 8-12 und 8-13 sind die Werte der Hausstaubingestionen bzw. die Obergrenzen der Hausstaubingestion für alle Probanden zusammengefasst.

Die Obergrenzen der Hausstaubingestion liegen dabei im Mittel um den Faktor 2 über den berechneten Hausstaubingestionswerten. Der Faktor variiert probandenabhängig zwischen 1 und 5,5.

Tabelle 8-12: Hausstaubingestion aller Probanden

Proband	Ingestion [mg] berechnet über											Studien- dauer [d]	Ingestion Mittel [mg]	VK [%]	Ingestionsraten für Probandengruppen			
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd				Mittel [mg/d]	VK [%]	Min [mg/d]	Max [mg/d]
<b>Hausstaubingestion</b>																		
<b>&lt; 200 µm</b>																		
11	-66	497	147	-1	-50	49	570	-20.053	153	88	306	9,0	259	79	29			
12	199	998	1.839	305	549	-923	751	-1.425	568	635	628	11,0	579	43	53			
13	262	602	2.438	639	29	-229	395	1.008	962	911	808	10,5	698	39	67			
14	504	2.671	1.052	1.375	278	896	1.850	-7.644	855	869	971	11,0	1.317	49	120			
15	590	598	52	250	0	0	15	0	325	358	322	12,0	407	37	34			
21	402	787	1.289	667	-51	-1.530	1.556	19.751	1.003	719	686	11,0	888	42	81			
22	1.031	2.151	4.180	513	-2.278	-3.496	290	-4.452	968	945	1.040	10,0	1.108	49	111			
23	1.242	1.833	1.054	1.281	180	32	360	-3.009	1.272	1.583	1.217	10,5	1.354	19	129			
24	305	1.139	2.708	1.089	-286	-1.207	213	-293	528	601	534	10,5	890	91	85			
26	2.498	3.259	1.179	519	174	-41	1.554	-2.090	3.771	4.019	2.831	11,0	2.730	39	248			
31	101	1.496	1.575	142	0	-2.047	935	-16.138	559	506	424	10,5	916	56	87			
32	27	514	254	222	407	-1.006	103	-1.479	198	226	265	10,5	274	47	26			
33	113	125	194	2.523	-6	-1.526	199	-1.190	29	47	144	9,5	122	54	13			
34	741	433	1.814	7.596	-687	-2.505	320	-4.071	369	382	470	10,0	647	82	65			
35	557	1.316	364	774	255	-5.293	651	-635	405	394	406	10,5	476	36	45			
36	147	310	1.573	2.117	-937	-1.825	362	-10.325	282	291	243	10,0	272	27	27			
41	323	1.013	4.581	-2.640	-1.739	-6.030	919	1.525	231	181	495	10,5	855	55	81			
42	540	1.076	2.805	362	-2.337	-2.872	395	-734	769	439	571	11,0	632	40	57			
43	145	613	188	1.143	-337	-1.292	397	-1.305	158	66	135	6,5	718	53	110			
44	631	743	2.182	9.826	-127	-2.716	842	-708	814	869	953	10,0	809	14	81			
45	453	1.447	3.811	-5.305	-2.701	-2.829	886	5.836	1.007	1.162	1.056	10,0	1.112	19	111			
46	1.008	2.850	870	1.396	-554	-1.931	1.418	-2.091	1.135	1.324	1.160	8,5	1.187	17	140			
Gruppe 1																		
Gruppe 2																		
Gruppe 3																		
Gruppe 4																		
gesamt																		
															60	60	29	120
															131	52	81	248
															44	63	13	87
															97	30	57	140
															82	63	13	248

Tabelle 8-13: Obergrenzen der Hausstaubingestion aller Probanden

Proband	Ingestion [mg] berechnet über										Studien- dauer [d]	Ingestion Mittel [mg]	VK [%]	Ingestionsraten für Probandengruppen						
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce				Nd	Mittel [mg/d]	VK [%]	Min [mg/d]	Max [mg/d]		
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion (ohne Berücksichtigung der Nahrung)</b>																				
<b>&lt; 200 µm</b>																				
11	467	703	227	544	0	628	1.544	0	1.204	1.013	998	9,0	814	50	90					
12	580	1.228	1.923	735	580	390	872	701	970	1.066	845	11,0	899	46	82					
13	394	1.540	2.453	740	29	0	395	1.097	1.067	1.022	857	10,5	889	43	85					
14	1.669	3.213	1.458	2.216	429	1.024	2.271	0	1.624	1.751	1.671	11,0	1.878	33	171					
15	590	654	52	250	0	0	15	0	325	358	322	12,0	416	39	35					
21	708	1.052	1.681	912	866	595	1.681	20.079	1.627	1.267	1.134	11,0	1.152	35	105					
22	1.274	2.585	4.324	824	59	120	808	720	1.228	1.142	1.182	10,0	1.565	75	157					
23	1.540	2.439	1.157	1.564	606	191	389	26	1.729	2.043	1.487	10,5	1.709	24	163					
24	672	2.042	3.102	1.466	105	0	392	826	985	1.141	867	10,5	1.277	65	122					
26	2.799	3.424	1.426	675	412	325	1.574	481	4.183	4.595	3.079	11,0	3.012	40	274					
31	608	2.653	2.179	784	0	0	1.220	142	1.259	1.116	828	10,5	1.331	39	127					
32	348	1.460	430	570	600	6	312	0	714	707	569	10,5	634	54	60					
33	595	1.006	507	3.278	764	0	814	0	734	778	144	9,5	668	39	70					
34	1.279	1.806	2.062	13.958	349	79	622	2.033	695	718	760	10,0	1.247	51	125					
35	1.022	2.058	754	1.182	1.189	0	750	0	1.143	1.087	895	10,5	1.120	35	107					
36	640	1.366	1.928	2.592	167	0	629	2.696	857	810	593	10,0	1.346	63	135					
41	1.469	2.121	6.058	1.167	309	0	1.680	2.491	2.840	2.752	2.218	10,5	2.092	29	199					
42	1.041	1.735	3.202	1.386	234	9	615	1.131	1.566	1.401	1.126	11,0	1.467	50	133					
43	619	1.433	491	1.431	826	0	674	0	898	953	632	6,5	884	39	136					
44	1.284	1.848	2.613	14.907	689	1.619	1.168	2.322	1.174	1.256	1.296	10,0	1.620	33	162					
45	1.219	2.908	4.597	2.900	200	246	1.175	8.804	2.274	2.267	1.827	10,0	2.396	46	240					
46	2.046	4.187	1.921	2.331	2.495	0	2.170	0	2.525	2.810	2.135	8,5	2.513	27	296					
Gruppe 1																92	53	35	171	
Gruppe 2																	164	40	105	274
Gruppe 3																	104	30	60	135
Gruppe 4																	194	33	133	296
gesamt																	140	47	35	296

Zur Veranschaulichung der Altersverteilung der Hausstaubingestionsraten sind in der Abbildung 8-7 die Ingestionsraten mit den Variationskoeffizienten der Mittelwertbildung über die Elemente gegenüber dem Alter der Probanden dargestellt.

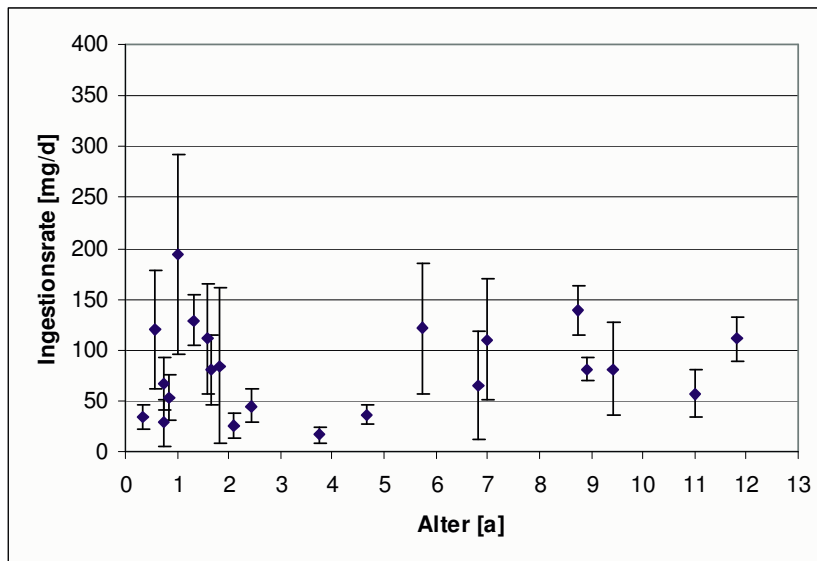


Abbildung 8-7: Hausstaubingestionsrate

In der Tabelle 8-14 sind einige statistische Kenndaten der Hausstaubingestion im Vergleich zur Bodeningestion der gleichen Korngrößenfraktion für die Gesamtgruppe der Probanden zusammengestellt.

Tabelle 8-14: Statistische Kenndaten der Verteilung der Hausstaubingestionsraten im Vergleich mit den Bodeningestionsraten

Fraktion	Mittel	VK [%]	Minimum	Median	Quantil 90 %	Quantil 95 %	Maximum
<b>Hausstaubingestion [mg/d]</b>							
< 200 µm	82	63	13	81	128	139	248
<b>Bodeningestion [mg/d]</b>							
< 200 µm	38	62	7	33	78	81	81
<b>Verhältnis Hausstaubingestion / Bodeningestion</b>							
< 200 µm	2,2	-	1,9	2,5	1,6	1,7	3,1

Es ist zu erkennen, dass die statistischen Kenndaten der Verteilung der Hausstaubingestionsraten mit Ausnahme des Variationskoeffizienten um etwa den Faktor 2 über denen der Bodeningestion liegen. Die Variationskoeffizienten sind gleich.

Auch beim Vergleich der Verhältnisse zwischen den Elementen der Hausstaubingestion mit denen der Bodeningestion gibt es nur geringfügige Vorteile für die Bodeningestion hinsichtlich der Übereinstimmung der Elemente. Deshalb liegen auch die Varianzkoeffizienten bei der Mittelwertbildung über die Elemente der Bodeningestion und der Hausstaubingestion dicht beieinander, mit Ausnahme der Probanden, bei denen beim Hausstaub mehr Ausreißer von der Mittelwertbildung ausgeschlossen wurden. Auf diesem Wege lässt sich also bei der Ingestion keine Differenzierung zwischen Bodeningestion und Hausstaubingestion erreichen.

Wie schon im Abschnitt 8.2 beschrieben, ist möglicherweise die höhere Bodeningestionsrate im Bezug auf die Spielzeit im Freien der beiden jüngeren Altersgruppen (< 2 Jahre) auf Grund

der kürzeren Spielzeiten im Freien auch auf die verhaltensbedingt höhere Ingestion von Hausstaub in diesen Altersgruppen zurückzuführen.

Nur in einer Literaturstelle [15] gab es Angaben zu Hausstaubingestionsraten, deren Ableitung allerdings nicht nachvollziehbar ist. Sie sollen zur Orientierung aber aufgeführt werden:

1 – 3 Jahre	81 mg/d
4 – 6 Jahre	82 mg/d
6 – 9 Jahre	57 mg/d
10 – 14 Jahre	33 mg/d
Erwachsene	18 mg/d.

Die Berechnung der Hausstaubingestionsraten in dieser Studie erfolgte unter der Annahme, dass keine Bodeningestion stattfindet. Die hier berechneten Hausstaubingestionsraten können daher nur als Abschätzung der Obergrenze dienen. Sie stehen aber nicht im Widerspruch zu den Angaben in der Literatur.

## 8.4 Anregungen zu fortführenden Untersuchungen

Auf Grund der relativ kleinen Probandenzahl in dieser Studie konnten Unterschiede der Ingestionsraten zwischen den Altersgruppen nur undeutlich erkannt werden. Die sich andeutenden Unterschiede der jüngeren Altersgruppen (< 2 Jahre) zu den älteren, insbesondere bei den im Bezug auf die Spielzeit im Freien berechneten Bodeningestionsraten, wäre nur mit größeren Probandenzahlen statistisch abzusichern.

Vor allem die geringen Unterschiede der ermittelten Ingestionsraten zwischen den Probanden zeigen, besonders im Vergleich mit den Literaturdaten, dass mit dem untersuchten Probandenkollektiv noch nicht die gesamte Spannweite des Verhaltens von Kindern erfasst wurde. Das ist umso bemerkenswerter, da die Bedingungen für die Bodeningestion auf Grund des Wetters und der ferienbedingt großen Spielzeit im Freien besonders günstig waren. Bei der Untersuchung größerer Probandenzahlen ist daher vor allem eine bessere Abschätzung extremer Verhaltensweisen zu erwarten. In der Tabelle 8-15 sind zur Verdeutlichung der Spannweiten die Mediane und 95 % Quantile dieser Studie und der Literatur zusammengestellt.

Tabelle 8-15: Mediane und 95 % Quantile der Bodeningestionsraten

Fraktion	Median	Quantil 95 %	Quantil 95 % / Median
<b>diese Studie</b> (22 Probanden, Alter 0 – 12 Jahre) Bodeningestionsrate [mg/d]			
< 500 µm	37	131	3,5
< 200 µm	33	81	2,5
< 63 µm	28	69	2,5
<b>diese Studie</b> (22 Probanden, Alter 0 – 12 Jahre) Bodeningestionsrate [mg/h]			
< 500 µm	16	44	2,75
< 200 µm	12	26	2,2
< 63 µm	10	23	2,3
<b>Amherst-Studie</b> [12] (64 Probanden, Alter 1 – 4 Jahre) Bodeningestionsrate [mg/d]			
< 2000 µm	45	208	4,6
<b>Anaconda-Studie</b> [2] (64 Probanden, Alter 1 – 4 Jahre) Bodeningestionsrate [mg/d]			
< 2000 µm	20	282	14
< 250 µm	39	197	5,1

Für die Untersuchungen im Rahmen dieser Studie sind gemäß der Aufgabenstellung Bedingungen gewählt worden, die eine möglichst hohe Bodeningestion ermöglichen: warmes und trockenes Wetter, hoher Freizeitanteil der Probanden, Probanden mit Vorliebe für Spiel im Freien. Um die Variabilität der Bodeningestionsraten im Laufe eines Jahres abschätzen zu können, wäre es sinnvoll, ähnliche Untersuchungen auch zu anderen Jahreszeiten durchzuführen.

Für die Studie wurden Probanden ausgewählt, die ein möglichst großes Spektrum an Hygiene- und Spielverhalten abdecken. Eine Korrelation zwischen dem Verhalten der Probanden und der Bodeningestion sollte und konnte auf Grund der geringen Probandenzahl nicht hergestellt werden. Die Untersuchung solcher Korrelationen kann aber bei größeren Probandenzahlen und genauerer Erfassung des Hygiene- und Spielverhaltens durchgeführt werden.

Eine wenig bekannte Größe ist auch der Anteil der mit der festen Nahrung, d.h. in ungelöster Form, aufgenommenen Elemente, der im Gastrointestinaltrakt resorbiert und anschließend über den Urin ausgeschieden wird. In der Studie von Davis et al. [6] wurde dazu bei begleitenden Untersuchungen des Urins ohne Einbeziehung in die Elementbilanz festgestellt, dass zumindest bei Al und Si, im Gegensatz zum dritten untersuchten Element Ti, relevante Elementmassen im Urin enthalten sind. Diese können aber auch in gelöster Form z.B. über Getränke aufgenommen worden sein. Ein interessanter Ansatz wäre es, mit einem geeigneten Elutionsmittel (z.B. verdünnte Salzsäure) zu prüfen, welche Anteile der Elemente in der festen Nahrung im Gastrointestinaltrakt resorbiert werden können.

Bei zukünftigen Untersuchungen der Bodeningestionsraten können auf Grund der Erfahrungen dieser Studie folgende Maßnahmen zu einer Verringerung der Unsicherheit beitragen:

- Verringerung der Blindwerte bei Aufschluss und Analytik
- Stärkere Einschränkung der erlaubten Lebensmittel hinsichtlich der enthaltenen Massen der Tracerelemente auf Grund vorheriger Analysen
- Auswahl geeigneter Windeln mit geringen Elementmassen und geringer Streuung zwischen den Windeln
- Beschränkung der Zahl der Spielorte im Freien um eine bessere Übereinstimmung der untersuchten Bodenproben mit dem ingestierten Boden zu erreichen

- Verwendung von Mohn zur experimentellen Ermittlung der individuellen gastrointestinalen Transitzeiten außerhalb des Beprobungszeitraums, da durch den hier verwendeten Mohnkuchen verhältnismäßig große Massen der Tracerelemente aufgenommen wurden, die die Elementbilanz ungünstig beeinflusst haben
- Verlängerung des Studienzeitraums.

Es ist allerdings zu beachten, dass diese Veränderungen nicht zu einer Verschlechterung der Compliance der Probanden und ihrer Eltern bzw. Betreuer, d.h. der Mitarbeit und der Einhaltung der festgelegten Regeln, führen dürfen, da diese für die Zuverlässigkeit der Untersuchungsergebnisse wesentlich ist.

## 9 Zusammenfassung

Bei der Betrachtung der Exposition des Menschen sowohl durch Radionuklide, als auch durch konventionelle Schadstoffe müssen die verschiedenen Transferpfade berücksichtigt werden. Eine wichtige Rolle, insbesondere bei Kindern, spielt dabei der direkte Pfad Boden - Mensch. Zur Berechnung der Exposition bzw. zur Ableitung von Grenzwerten für die Schadstoffkonzentration muss unter anderem auch die Ingestionsrate für Boden, d.h. die Bodenmasse die pro Tag aufgenommen wird, bekannt sein. Bisher liegen, wie auch die durchgeführte Literaturstudie gezeigt hat, nur wenig zuverlässige Angaben dazu vor. Deshalb wurden hier die Bodeningestionsraten für die klimatischen Bedingungen und das möglicherweise von anderen Regionen abweichende Spiel- und Hygieneverhalten in Deutschland experimentell verifiziert.

Dazu wurde die von den bisherigen Studien am zuverlässigsten erscheinende Konzeption der Bilanzierung der Aufnahme und Ausscheidung von Elementen, die für den aufgenommenen Boden charakteristisch sind, gewählt und weiterentwickelt.

Bei 22 Probanden in vier Altersgruppen (< 1 Jahr, 1 – 2 Jahre, 2 – 7 Jahre, 7 – 12 Jahre) wurde im Sommer 2002 über einen Zeitraum von etwa 2 Wochen das Verhalten und die Nahrungsaufnahme protokolliert. Außerdem wurde die aufgenommene Nahrung und der Stuhl in diesem Zeitraum vollständig beprobt. Zur Berechnung der Bodeningestion wurden für jeden Probanden an den relevanten Spielorten im Freien Bodenproben genommen. Da parallel zur Bodeningestion auch Hausstaub aufgenommen werden konnte, wurde dieser zum Vergleich ebenfalls beprobt. Insgesamt wurden 848 Proben gewonnen:

- 102 Lebensmittelproben
- 152 Nahrungsduplikatproben
- 326 Stuhlproben
- 14 Windelmuster
- 198 benutzte Windeln
- 36 Bodenproben
- 20 Hausstaubproben.

Die Proben wurden durch Veraschung, Zerkleinerung, Homogenisierung und mikrowellenunterstützten Säureaufschluss für die Analyse vorbereitet. Mittels Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS) wurden die Elemente Al, Si, Sc, Ti, Ga, Y, Zr, Nb, La, Ce und Nd in ca. 800 Proben analysiert. Bei der Auswahl der Elemente wurden eine möglichst hohe Konzentration des Elements im Boden und eine niedrige gastrointestinale Aufnahme, d.h. eine geringe Einbeziehung in den menschlichen Stoffwechsel, als Hauptkriterien herangezogen.

Die ermittelten Elementkonzentrationen der Nahrung und des Stuhls wurden in aufgenommene bzw. ausgeschiedene Massen der einzelnen Elemente umgerechnet und für jeden Probanden über die Studienzeit bilanziert.

Aus den Bilanzen der Elemente und den Elementkonzentrationen im Boden konnten für jeden Probanden die Massen des aufgenommenen Bodens berechnet werden. Da die Konzentrationen der untersuchten Elemente in verschiedenen Korngrößenfraktionen z.T. sehr unterschiedlich sind, wurde die Bodeningestion im Bezug auf drei verschiedene, für die Ingestion möglicherweise relevante, Korngrößenfraktionen (< 500  $\mu\text{m}$ , < 200 $\mu\text{m}$  und < 63  $\mu\text{m}$ ) berechnet. Der Unterschied zwischen den Fraktionen < 2 mm und < 500  $\mu\text{m}$  war bei den untersuchten Bodenproben nur gering, so dass auf die Berechnung im Bezug auf die Fraktion < 2 mm verzichtet wurde.



Am günstigsten erscheint im Vergleich mit den anderen Fraktionen die Verwendung der Fraktion < 63 µm aus folgenden Gründen:

- hohe Ingestionswahrscheinlichkeit auf Grund der guten Haftfähigkeit der Partikel auf der Haut und das Fehlen unangenehmer Empfindungen bei der oralen Aufnahme (z.B. Knirschen zwischen den Zähnen)
- geringste Unterschiede zwischen den Bodenproben eines Probanden
- in den meisten Fällen Anreicherung der Schadstoffe in dieser Fraktion.

Deshalb halten wir die Verwendung der Bodeningestionswerte im Bezug auf die Fraktion <63 µm in Verbindung mit den Schadstoffkonzentrationen in dieser Fraktion für besonders relevant bei der Berechnung der Schadstoffexposition und der Ableitung von Richtwerten für Schadstoffe in Böden.

Alternativ wurden zum Vergleich die Massen des ingestierten Hausstaubs mit den Elementkonzentrationen im Hausstaub berechnet. Eine Differenzierung zwischen Boden- und Hausstaubingestion war auf Grund der zu geringen Unterschiede der Elementzusammensetzung von Boden und Hausstaub nicht möglich. Bei der Bewertung der Bodeningestion ist daher zu berücksichtigen, dass ein Teil der Ingestion der untersuchten Elemente auch über die Aufnahme von Hausstaub stattgefunden hat.

Zur Berechnung der Ingestionsraten wurde die Differenz zwischen ausgeschiedener und aufgenommener Elementmasse verwendet. Hier kam es bei allen Probanden bei einzelnen Elementen zu negativen Differenzen, d.h. die berechnete Elementmasse in der Nahrung war größer als die mit dem Stuhl ausgeschiedene Elementmasse. Dafür gibt es drei denkbare Ursachen:

- Bei der, im Vergleich mit der Zahl der Stuhlproben, sehr großen Zahl von Einzelpositionen bei der Bilanz der aufgenommenen Nahrung kann es leichter zur Akkumulation von Unsicherheiten kommen. Hier spielen vor allem die häufig nur wenig über den Blindwerten liegenden Elementkonzentrationen in der Nahrung eine große Rolle. Kleine Veränderungen beim Blindwert führen zu deutlichen Verschiebungen bei der Differenz zwischen den Elementmassen in Stuhl und Nahrung.
- Die gastrointestinale Aufnahme der einzelnen Elemente ist, im Gegensatz zu den der Konzeption zugrunde liegenden Annahmen, nicht vernachlässigbar und führt dazu, dass ein Teil der aufgenommenen Elementmasse in den menschlichen Stoffwechsel einbezogen und über den Urin ausgeschieden wird.
- Ein Teil der bei der Elementbilanz berücksichtigten Nahrung wurde nicht mit der letzten Stuhlprobe, sondern erst danach ausgeschieden.

Bei der Berechnung der Ingestion wurde andererseits nur die mit dem Stuhl ausgeschiedene Elementmasse, d.h. ohne Berücksichtigung der mit der Nahrung aufgenommenen Elementmasse herangezogen. Die so berechneten Ingestionsraten für Boden bzw. Hausstaub können als Obergrenze der Ingestion angesehen werden.

Die aus der Differenz von Stuhl und Nahrung berechnete Ingestionsrate ist als realistischer Wert für die Ingestion anzusehen. Es kann dabei aber aus den eben genannten Gründen zu einer Unterschätzung der Ingestion kommen. Da die berechneten Obergrenzen der Ingestionsraten meist nur um den Faktor 2, aber maximal um den Faktor 6 über den Ingestionsraten liegen, lässt sich der Bereich recht gut eingrenzen.

Für die Erstellung von Elementbilanzen haben sich die Elemente Al, Si, Sc, Zr, La, Ce und Nd als besonders geeignet erwiesen. Ti ist nur bedingt geeignet, da in einigen Fällen auf Grund der Elementbilanzen bisher nicht bekannte Quellen für die Ti-Aufnahme vermutet werden müssen. Die Elemente Ga, Y und Nb sind weniger geeignet, weil die

Elementkonzentrationen vieler Proben im Bereich der verfahrensspezifischen Blindwerte liegen und daher keine sichere Analyse möglich ist.

Die Mittelwerte der berechneten Bodeningestionsraten für die einzelnen Altersgruppen sind im Bezug auf die Studiendauer (Angaben in mg/d) und im Bezug auf die Spielzeit im Freien (Angaben in mg/h) in der Tabelle 9-1 zusammengefasst.

Tabelle 9-1: Mittelwerte der Bodeningestionsraten in den Altersgruppen

Alter [a]	Bodeningestionsraten [mg/d] der Fraktion		Bodeningestionsraten [mg/h Spielzeit] der Fraktion	
	< 500 $\mu\text{m}$	< 63 $\mu\text{m}$	< 500 $\mu\text{m}$	< 63 $\mu\text{m}$
< 1	22	16	25	17
1 – 2	100	48	31	15
2 – 7	35	20	11	6
7 – 12	57	42	13	9
alle	53	31	19	12

Die sich abzeichnenden Unterschiede in den Bodeningestionsraten der einzelnen Altersgruppen ließen sich möglicherweise mit einer größeren Probandenzahl statistisch absichern.

In der Tabelle 9-2 sind die statistischen Kenndaten der Verteilung der Ingestionsraten in der Gesamtheit der Probanden aufgeführt.

Tabelle 9-2: Statistische Kenndaten der Verteilung der Ingestionsraten

Fraktion	Mittel	VK [%]	Minimum	Median	Quantil 90 %	Quantil 95 %	Maximum
<b>Bodeningestion in mg/d</b>							
< 500 $\mu\text{m}$	53	73	11	37	110	131	142
< 63 $\mu\text{m}$	31	64	6	28	63	69	77
<b>Hausstaubingestion in mg/d</b>							
< 200 $\mu\text{m}$	82	63	13	81	128	139	248
<b>Bodeningestion in mg/h</b>							
< 500 $\mu\text{m}$	19	64	3,2	16	38	44	44
< 63 $\mu\text{m}$	12	59	1,9	10	20	23	27

Die aus den einzelnen Unsicherheitskomponenten ermittelte Gesamtunsicherheit der für die Probanden berechneten Ingestionsraten liegt bei 50 % (Angabe in mg/d) bzw. 60 % (Angabe in mg/h Spielzeit im Freien).

Die ermittelten Ingestionsraten sind als konservativ anzusehen, da gemäß der Aufgabenstellung Untersuchungsbedingungen gewählt wurden, die für die Ingestion von Boden günstig sind.

Die Mittelwerte der zuverlässigsten Abschätzungen der Bodeningestionsraten bei den in der Literatur beschriebenen Studien liegen im Bereich von 35 bis 180 mg/d für die Fraktion < 2000  $\mu\text{m}$ . Somit liegt der hier ermittelte Mittelwert für die vergleichbare Fraktion < 500  $\mu\text{m}$  mit 53 mg/d im unteren Teil diese Bereiches. Unterschiede zu den Literaturdaten treten vor allem in den oberen Teilen der jeweils ermittelten Wertebereiche auf. So liegt das 95 %-Quantil dieser Studie mit 131 mg/d deutlich unter den Literaturwerten (208 und 282 mg/d).

## 10 Danksagung

Vor allem möchte ich den Probanden, ihren Eltern und Betreuern danken für ihr Verständnis und die aufwändige und zuverlässige Mitarbeit bei der Beprobung und Protokollierung, die maßgeblich zum Erfolg der vorliegenden Studie beigetragen hat.

Einen wesentlichen Beitrag zum Gelingen des Projektes hat Herr Dipl.-Chem. W. Boden durch die Analyse der Proben mittels ICP-MS geleistet. Dafür sei ihm an dieser Stelle gedankt.

Für ihre Hilfe bei der Betreuung der Probanden und die Unterstützung bei der Beschaffung und Verteilung der Lebensmittel danke ich Frau G. Bierig.

Den nachfolgend genannten Kollegen und Kolleginnen danke ich für ihre gewissenhafte Arbeit bei der aufwändigen Vorbereitung der vielen Proben:

Frau Y. Dienhold	(Aufschlüsse und Probenpräparation für die Analytik)
Herr A. Liebscher	(Trocknung, Siebung, Zerkleinerung von Boden und Hausstaub)
Frau B. Stuhldreher	(Einwaagen für die Aufschlüsse)
Frau B. Suhr	(Aufschlüsse)
Frau P. Werner	(Probenmanagement, Veraschung und Homogenisierung).

Frau C. Willrodt (Projektbetreuerin beim BfS) und den Herren Dr. R. Knappik und Dr. M. Köhler (beide VKTA) danke ich für ihr Interesse am Fortgang des Projektes und die kritische Durchsicht des Manuskripts.

## 11 Literatur

- [1] Standards zur Expositionsabschätzung.  
Bericht des Ausschusses für Umwelthygiene (AUH) der Arbeitsgemeinschaft der leitenden Medizinalbeamtinnen und –beamten der Länder (AGLMB),  
Hamburg: Behörde für Arbeit, Gesundheit und Soziales (BAGS) Hamburg, 1995
- [2] Berechnungsgrundlagen zur Ermittlung der Strahlenexposition infolge bergbaubedingter Umweltradioaktivität (Berechnungsgrundlagen – Bergbau).  
Bonn: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit.  
(Stand 30.07.1999)
- [3] Bekanntmachung über Methoden und Maßstäbe für die Ableitung der Prüf- und Maßnahmewerte nach der Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV).  
Bonn: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit.  
BAnz. Nr. 161a (Beilage) vom 28.8.1999
- [4] Calabrese EJ, Pastides H, Stanek EJ, Gilbert CE, Barnes R, Edwards CA, Kostecki PT, Veneman P: How Much Soil Do Young Children Ingest. An Epidemiologic Study.  
In: Calabrese EJ, Kostecki PT: Petroleum Contaminated Soils. Vol. 2  
Chelsea: Lewis Publ. 1989, 363 – 398
- [5] Calabrese EJ, Stanek EJ, Pekow P, Barnes RM: Soil Ingestion Estimates for Children Residing on a Superfund Site.  
Ecotoxicology and Environmental Safety (1997) 36 (3), 258 – 268
- [6] Davis S, Waller P, Buschborn R, Ballou J, White P: Quantitative Estimates of Soil Ingestion in Normal Children Between the Ages of 2 and 7 Years: Population-Based Estimates Using Aluminium, Silicon, and Titanium as Soil Tracer Elements.  
Archives of Environmental Health (1990) 45 (2), 112 – 122
- [7] Jarvis, KE et al.: Handbook of Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry.  
Glasgow and London: Blackie & Son Ltd., 1992
- [8] Akinbami FO; Erinoso O, Akinwolere OA: Defaecation Pattern and Intestinal Transit in Nigerian Children.  
African Journal of Medicine and Medical Sciences (1995) 24 (4), 337 – 341
- [9] Fallingborg J, Christensen LA, Ingeman-Nielsen M, Jacobsen BA, Abildgaard K, Rasmussen HH, Rasmussen SN: Measurement of Gastrointestinal pH and Regional Transit Times in Normal Children.  
Journal of Pediatric Gastroenterology and Nutrition (1990) 11 (2), 211 – 214
- [10] Weaver LT, Steiner H: The Bowel Habit of Young Children.  
Archives of Disease in Childhood (1984) 59 (7), 649 – 652
- [11] DIN ISO 11464: Bodenbeschaffenheit – Probenvorbereitung für physikalisch-chemische Untersuchungen. 1996-12
- [12] E DIN ISO 14507: Bodenbeschaffenheit – Probenvorbereitung für die Bestimmung von organischen Verunreinigungen in Böden. 1996-02

- [13] Stanek EJ, Calabrese EJ: Daily Estimates of Soil Ingestion in Children.  
Environmental Health Perspectives (1995) 103 (3), 276 – 285
  
- [14] Exposure Factors Handbook.  
Washington: Environmental Protection Agency (EPA), 1997, EPA/600/P-95/002Fa
  
- [15] Heinemeyer G: Kinder, eine besondere Risikogruppe?  
Vortrag auf der „Fortbildungsveranstaltung für den öffentlichen Gesundheitsdienst“,  
Berlin, 13. – 15.05.2002  
(Folien im Internet unter [www.bgvv.de/sixcms\\_upload/media/98/heinemeyer.pdf](http://www.bgvv.de/sixcms_upload/media/98/heinemeyer.pdf))

# Literaturstudie

zum Förderprojekt

“Quantifizierung der Ingestion von Boden durch Kinder”

November 2001

**Fördernde Institutionen:**

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit  
Bundesamt für Strahlenschutz

**Förderkennzeichen:**

StSch 4286

**Forschungsnehmer:**

Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik  
Rossendorf e.V. (VKTA)  
PF 51 01 19  
01314 Dresden

**Bearbeiter:** Dipl.-Geol. Matthias Bothe

**Bearbeitungszeitraum:** 01.07.2001 - 30.11.2003

## Inhaltsverzeichnis

	Seite
Inhaltsverzeichnis	1
1 Einleitung	2
2 Studien mit Tracern	3
2.1 Prinzip	3
2.2 Annahmen	4
2.3 Tracer	6
2.4 Validierung der Methodik mit Erwachsenen	7
2.5 Probanden	9
2.5.1 Zahl, Alter und Geschlecht	9
2.5.2 Demographische Daten und Daten zum Verhalten	10
2.6 Studiendauer	11
2.7 Probenahme	11
2.7.1 Nahrung	12
2.7.2 Stuhl	12
2.7.3 Urin	12
2.7.4 Boden	12
2.7.5 Staub	13
2.7.6 sonstige Materialien	14
2.8 Transport und Lagerung der Proben	14
2.9 Probenvorbereitung	14
2.9.1 Nahrung	14
2.9.2 Stuhl	15
2.9.3 Urin	15
2.9.4 Boden	16
2.9.5 Staub	17
2.10 Analytik	17
2.10.1 Elementanalytik	17
2.10.2 Bestimmung des säureunlöslichen Rückstandes (AIR)	18
2.11 Auswertungsmethodik	18
2.12 Ergebnisse	21
2.12.1 Nahrung	21
2.12.2 Stuhl	22
2.12.3 Urin	22
2.12.4 Boden	23
2.12.5 Staub	23
2.12.6 Bodeningestion	24
2.13 Interpretation	26
2.14 Bewertung der Studien	27
2.14.1 Verbesserungen	27
2.14.2 Mängel	27
2.15 Anregungen für weitere Untersuchungen	28
3 Abschätzungen der Ingestion von Boden auf anderen Wegen	30
4 Übersichtsarbeiten	31
5 Schlussfolgerungen	32
Literatur	33
Tabellenanhang	35

## 1 Einleitung

Bei der Betrachtung der Exposition des Menschen sowohl durch Radionuklide, als auch durch konventionelle Schadstoffe müssen die verschiedenen Transferpfade berücksichtigt werden. Eine wichtige Rolle, insbesondere bei Kindern, spielt dabei der direkte Pfad Boden - Mensch. Hierbei kommen drei Wege in Betracht:

- die Aufnahme durch den Mund und das Verschlucken (orale Aufnahme)
- das Einatmen von Staub (pulmonale Aufnahme) und
- der Durchtritt durch die Haut (dermale Aufnahme)

Im folgenden soll entsprechend der Zielstellung nur die orale Aufnahme, d.h. die Ingestion betrachtet werden.

Für die Ableitung der zulässigen Schadstoffkonzentration im Boden aus der duldbaren täglichen Aufnahmemenge des Schadstoffs wird neben der Resorptionsrate im Körper auch die Menge des Bodens benötigt, der täglich durch die zu betrachtende Personengruppe aufgenommen wird.

Die Gruppe der Kinder ist die sensibelste Personengruppe für diesen Expositionspfad, da sie auf Grund ihres Verhaltens wahrscheinlich die größte Menge an Boden aufnimmt.

In dieser Literaturstudie sollen die wesentlichsten Arbeiten zusammengestellt werden, die sich mit der Ermittlung der Ingestionsrate von Boden durch Kinder beschäftigen. Sie dient damit der Planung und Vorbereitung eigener Untersuchungen zur Abschätzung der Größenordnung der Bodeningestion unter den geographischen und klimatischen Bedingungen in Deutschland.

Bei einer Recherche mittels STN in 122 Literaturlistenbanken wurden unter der Suchanfrage "soil ingestion" AND ("child" OR "adult") insgesamt über 200 Literaturstellen gefunden. In der überwiegenden Zahl der Literaturstellen wird die Ingestionsrate aber nur zur Abschätzung der Exposition bzw. zur Ermittlung der maximal zulässigen Schadstoffkonzentration im Boden genutzt. Nur sehr wenige Publikationen beschäftigen sich direkt mit der Ermittlung der Ingestionsraten und hierbei werden in vielen Fällen frühere experimentelle Untersuchungen unter neuen Gesichtspunkten betrachtet bzw. neu ausgewertet. Die Zahl der experimentellen Untersuchungen ist also sehr beschränkt.

In der folgenden Darstellung werden zunächst die neueren Arbeiten dargestellt, die sich mit der Bestimmung der Ingestionsraten über die Massebilanz von Tracern in Nahrung Boden und Ausscheidungen (Stuhl und Urin) beschäftigen (Kapitel 2).

Im Kapitel 3 sind die Ergebnisse der Arbeiten zusammengefasst, die sich mit der experimentellen Ermittlung der Ingestionsraten auf anderen Wegen befassen. Das Kapitel 4 beinhaltet einige Übersichtsdarstellungen, in denen vor allem ältere Untersuchungen kritisch gewürdigt werden.



## 2 Studien mit Tracern

### 2.1 Prinzip

In den jüngeren experimentellen Arbeiten zur Ermittlung der Ingestion von Boden durch Kinder wird vor allem die Massebilanz von Tracern bei der Aufnahme (Nahrung, Boden, Staub u.a.) und der Ausscheidung (Stuhl und Urin) genutzt. Hier wird also die ingestierte Bodenmenge indirekt bestimmt aus der Differenz zwischen der Aufnahme der Tracer mit der Nahrung und der Ausscheidung der Tracer mit Stuhl und Urin. Die Tracer sind dabei Elemente bzw. Komponenten, die natürlicherweise in den untersuchten Materialien vorkommen. Es werden also keine Stoffe gezielt als Tracer zugegeben.

In ihrer zeitlichen Reihenfolge wurden folgende Studien durchgeführt, die im weiteren Text unter den angegebenen Kurztiteln erwähnt werden. In Klammern sind das Jahr der Durchführung und die untersuchte Region angegeben.

<u>Kurztitel</u>	<u>Studie</u>
BINDER	Binder S, Sokal D, Maughan D: Estimating Soil Ingestion: The use of Tracer Elements in Estimating the Amount of Soil Ingested by Young Children. [2] (1984, East Helena / Montana, USA)
CLAUSING	Clausing P, Brunekreef B, van Wijnen JH: A Method for Estimating Soil Ingestion by Children. [11] (ca. 1985, Niederlande)
WIJNEN	van Wijnen JH, Clausing P, Brunekreef B: Estimated Soil Ingestion by Children. [31] (1986, Amsterdam und Utrecht, Niederlande)
DAVIS	Davis S, Waller P, Buschbom R, Ballou J, White P: Quantitative Estimates of Soil Ingestion in Normal Children between the Ages of 2 and 7 Years: Population-based Estimates Using Aluminum, Silicon, and Titanium as Soil Tracer Elements. [14] (1987, Richland, Pasco und Kennewick / Washington, USA)
AMHERST	Calabrese EJ, Pastides H, Barnes R, Edwards C, KostECKI PT, Stanek EJ, Veneman P, Gilbert CE: How Much Soil Do Young Children Ingest: An Epidemiologic Study. [4], Kurzfassung in [5] (ca. 1987, Amherst / Massachusetts, USA)
ANACONDA	Calabrese EJ, Stanek EJ, Pekow P, Barnes RM: Soil Ingestion Estimates for Children Residing on a Superfund Site. [10] (1996, Anaconda / Montana, USA, kontaminierter Standort)

Zum Teil wurde das Studiendesign vorher mit erwachsenen Probanden getestet, um die Eignung für die Bestimmung der Ingestion von Boden zu validieren. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind im Abschnitt 2.4 dargestellt.

## 2.2 Annahmen

Diese Herangehensweise geht von einigen grundsätzlichen Annahmen aus, die beim Studiendesign und bei der Auswahl der Tracer berücksichtigt werden müssen. Diese Annahmen sind zwar zum Teil fraglich, sie dienen aber der Vereinfachung der Studiendurchführung und werden in der Diskussion der Ergebnisse durch die Autoren zum größten Teil berücksichtigt. Im folgenden sollen auch einige kritische Bemerkungen zu Annahmen wiedergegeben werden.

1. Die Tracer werden im Gastrointestinaltrakt nicht resorbiert.

Eine Resorption der Elemente, die als Tracer verwendet wurden, im Gastrointestinaltrakt findet doch statt, wenn auch in geringem Maße. Das zeigen neben Angaben in der Literatur über die Konzentration der Elemente im menschlichen Körper und ihre bekannte toxische Wirkung (Al) auch die bei DAVIS ermittelten Mengen für Al, Si und Ti im Urin. Der größte Teil der mit der Nahrung und mit dem Boden aufgenommenen Elementmenge wird aber im Gastrointestinaltrakt nicht resorbiert. So dass diese Annahme zu keiner wesentlichen Verfälschung der Ingestionsraten führt.

2. Die Tracerkonzentration im ingestierten Boden entspricht der Tracerkonzentration in der untersuchten Bodenprobe des jeweiligen Probanden.  
D.h. die Tracerkonzentration im Boden an den verschiedenen Spielorten wird als gleich betrachtet oder gewichtet gemittelt.

Diese Annahme ist in zweifache Hinsicht problematisch. Zum einen variieren die Konzentrationen in den Böden an verschiedenen Spielorten eines Kindes doch beträchtlich und eine Korrektur durch gewichtetes Mittel über die relativen Aufenthaltszeiten bringt nur eine graduelle Verbesserung. Die Variation ist in den verschiedenen untersuchten Regionen aber sehr unterschiedlich, so dass die konkrete Situation berücksichtigt werden muss.

Zum anderen wurde mit Hilfe der Verhältnisse der Tracer untereinander festgestellt, dass die bei den meisten Studien untersuchte Bodenfraktion  $< 2$  mm nicht mit der ingestierten Bodenfraktion übereinstimmt. Eine bessere Näherung bringt die Fraktion  $< 250$   $\mu\text{m}$ . [9]

3. Die Inhalation und anschließende Ingestion wird vernachlässigt.

Der Anteil der inhalierten Partikel, die von der Nasen- bzw. Bronchialschleimhaut zurückgehalten werden und anschließend über das Nasen- oder Bronchialsekret in den Magen gelangen ist sicher im Vergleich zur direkten Ingestion sehr gering. Genauere Untersuchungen dazu sind allerdings nicht bekannt. [26]

4. Es hat keine andere Ingestion außer der beprobten Materialien und des Bodens stattgefunden.

Die großen systematischen Abweichungen der berechneten Bodeningestionsraten aus einzelnen Elementen, besonders Ti, von den meisten anderen Tracern deutet darauf hin, dass es noch andere Ingestionsquellen für diese Elemente gibt. Im Falle des Ti können das vor allem Farben, auch Druckerfarben sein. DAVIS, [9]

In einigen Studien werden weitere Annahmen zur Vereinfachung der Studiendurchführung gemacht.

5. Die mittlere tägliche Stuhlmenge bei Kindern von 2 - 4 Jahren beträgt 10 g TM (Trockenmasse). CLAUSING
6. Die mittlere tägliche Stuhlmenge bei Kindern von 2 - 4 Jahren beträgt 15 g TM (Trockenmasse). WIJNEN
7. Die mittlere tägliche Stuhlmenge bei Kindern von 1 - 3 Jahren beträgt 15 g TM (Trockenmasse). BINDER
8. Der Stuhl ist im Untersuchungszeitraum vollständig erfasst worden bzw. die entsprechenden Korrekturen mit der mittleren Masse je Stuhlgang und mittleren Konzentration der Tracer des jeweiligen Probanden ist korrekt. DAVIS, AMHERST, ANACONDA

zu den Annahmen 5 - 8:

Die Annahmen 5 und 6 sind, da es sich um die gleiche untersuchte Region handelt, widersprüchlich. Nach den Befunden bei DAVIS und AMHERST ist die Annahme 5 wahrscheinlicher.

Die bei DAVIS und AMHERST ermittelten mittleren täglichen Stuhlmengen zeigen eine deutliche Altersabhängigkeit. Die Stuhlmengen nehmen mit zunehmendem Alter zu. Die bei BINDER vorgenommene Korrektur der mittleren täglichen Stuhlmenge von den bei seinen Probanden beobachteten 7,5 g auf 15 g auf Grund von Literaturdaten hat wahrscheinlich zu einer Verfälschung der Ingestionsraten um den Faktor 2 geführt. Für die bei BINDER untersuchte Altersgruppe wurde bei AMHERST eine mittlere tägliche Stuhlmenge von 6,7 g ermittelt. Das entspricht den von BINDER gemessenen Mengen, so dass der von BINDER vermutete Verlust von Stuhlproben nicht wahrscheinlich ist.

Für die Zuverlässigkeit von Studien ist es günstiger den Stuhl möglichst vollständig zu sammeln und keine normierten täglichen Stuhlmengen zu verwenden. So wird die große Variabilität zwischen den Probanden und auch die zeitlichen Schwankungen von Menge und Zusammensetzung des Stuhl besser berücksichtigt.

9. Die Ingestion von Hausstaub wird vernachlässigt bzw. die Konzentration der Tracer im Hausstaub wird gleich der im Boden angesehen. BINDER, CLAUSING, WIJNEN, DAVIS, ANACONDA

Die Ingestion von Hausstaub kann sicherlich nicht vernachlässigt werden. Die Untersuchungen des Hausstaubs zeigen auch, dass sich die Zusammensetzung des Hausstaubs deutlich vom jeweiligen Boden unterscheidet. BINDER, DAVIS, AMHERST, ANACONDA

Eine Unterscheidung zwischen Hausstaub- und Bodeningestion kann nur auf Grund charakteristischer Elementmuster in beiden Kompartimenten vorgenommen werden.

10. Die niedrigste berechnete Bodeningestion aus den verschiedenen Tracern bei einem Probanden entspricht der maximal aufgenommenen Bodenmenge (limiting tracer method, LTM). (siehe Abschnitt 2.11) BINDER, CLAUSING, WIJNEN

11. Die Aufnahme von Tracern mit der Nahrung wird vernachlässigt. Die Verfälschung der Ergebnisse wird dadurch begrenzt, dass die "limiting tracer method" (LTM) angewendet wird. BINDER
12. Die berechnete scheinbare Bodeningestion der Vergleichsgruppe (bettlägrige Kinder im Krankenhaus) entspricht der Tracermenge, die mit der Nahrung aufgenommen wird. CLAUSING, WIJNEN
13. Die Nahrungsduplikatsproben sind identisch mit der von den Probanden verzehrten Nahrung, fehlende Nahrungsproben werden durch ihre geschätzte Masse und Literaturangaben ergänzt. DAVIS
14. Die Nahrungsduplikatsproben sind vollständig und identisch mit der von den Probanden verzehrten Nahrung. AMHERST, ANACONDA

zu den Annahmen 11 bis 14:

Die Höhe und die große Variabilität der mit der Nahrung aufgenommenen Tracermengen zeigt, dass eine Vernachlässigung oder pauschale Korrektur mit Hilfe von Kontrollgruppen problematisch ist. DAVIS, AMHERST, ANACONDA

15. Die gastrointestinale Transitzeit wird mit einem Tag angenommen. DAVIS, AMHERST, ANACONDA

Als normale Stuhlgangshäufigkeit bei Kindern wird der Bereich von dreimal täglich bis zu einmal alle drei Tage angesehen [1], [20], [32]. Die angenommene gastrointestinale Transitzeit von einem Tag kann daher nur als Näherung angesehen werden, da die Transitzeiten von Proband zu Proband und zeitlich variieren. Das ist sicher auch einer der Gründe für die negativen Bilanzen beim Vergleich Nahrung - Stuhl in der ANACONDA-Studie.

### 2.3 Tracer

Als Tracer für die Ingestion von Boden eignen sich Elemente oder Komponenten, die folgende Bedingungen möglichst gut erfüllen:

1. hohe Konzentration im Boden
2. geringe Konzentration in der Nahrung
3. keine Resorption im Gastrointestinaltrakt
4. keine zusätzlichen Quellen außer Nahrung und Boden
5. möglichst geringe Variationsbreite in den relevanten Böden jedes Probanden
6. möglichst geringe Variationsbreite in den Korngrößenklassen
7. sicher zu bestimmen in den relevanten Kompartimenten

Bei den hier besprochenen Studien wurden folgende Tracer verwendet:

Tabelle 1: Verwendete Tracer

Studie	Al	Si	Ti	V	Mn	Y	Zr	Ba	La	Ce	Nd	AIR
BINDER	X	X	X									
CLAUSING	X		X									X
WIJNEN	X		X									X
DAVIS	X	X	X									
AMHERST	X	X	X	X	X	X	X	X				
ANACONDA	X	X	X			X	X		X	X	X	

AIR acid insoluble residue (säureunlöslicher Rückstand)

Die Tendenz bei den Studien geht zur Untersuchung einer größeren Tracerzahl, weil

- dann eine bessere Kontrolle untereinander möglich ist,
- für den jeweiligen Probanden die günstigsten Tracer ausgewählt werden können, d.h. die mit den größten Unterschieden zwischen den Konzentrationen in Nahrung und Boden (best tracer method, BTM) und
- unterschiedliche Elementmuster zur Unterscheidung von Boden und Staub und zwischen verschiedenen Korngrößenfraktionen genutzt werden können.

#### 2.4 Validierung der Methodik mit Erwachsenen

Bei zwei Studien (AMHERST, ANACONDA) wurde das Studiendesign vorher mit Erwachsenen validiert. Dazu haben Freiwillige Gelatinekapseln mit sterilem und kontaminationsfreiem Boden in definierten Mengen (Testproben) geschluckt und es wurde die Wiederfindungsrate im Stuhl bestimmt. Dabei wurde die Zufuhr der Tracer mit der Nahrung durch die Sammlung und Analyse von Nahrungsduplikatproben berücksichtigt.

Die Validierungen wurden unter folgenden Bedingungen durchgeführt:

##### AMHERST:

6 Probanden (je 3 Männer und Frauen) im Alter von 25 - 41 Jahren

die Gelatinekapseln wurden jeweils Montag bis Mittwoch zum Frühstück und Abendessen gegeben

die Nahrungsduplikatproben wurden jeweils Montag bis Donnerstag gesammelt

die Stuhlproben wurden jeweils Montag bis Freitag gesammelt

1. Woche 2 mal täglich eine leere Gelatinekapsel

2. Woche 2 mal täglich eine Gelatinekapsel mit 50 mg Boden (= 100 mg/d, gesamt 300 mg)

3. Woche 2 mal täglich eine Gelatinekapsel mit 250 mg Boden (= 500 mg/d, gesamt 1500 mg)

## ANACONDA

10 Probanden (je 5 Männer und Frauen) im Alter von 25 - 41 Jahren  
die Gelatinekapseln wurden jeweils Montag bis Sonntag zum Frühstück gegeben  
die Nahrungsduplikatproben wurden jeweils Montag bis Sonntag gesammelt  
die Stuhlproben wurden jeweils Dienstag bis Montag gesammelt

1. Woche täglich eine leere Gelatinekapsel
3. Woche täglich eine Gelatinekapsel mit 20 mg Boden
5. Woche täglich eine Gelatinekapsel mit 100 mg Boden
7. Woche täglich eine Gelatinekapsel mit 500 mg Boden

Die Prozeduren der Sammlung, Vorbereitung und Analytik der Proben entsprechen denen bei den Kindern der jeweiligen Studie und sind in den Abschnitten 2.6 bis 2.9 dargestellt.

Bei der AMHERST-Studie wurden starke Schwankungen der Mengen der Elemente sowohl zeitlich als auch zwischen den Probanden beobachtet. Dadurch treten vor allem bei den Elementen mit hoher Konzentration in Nahrungsmitteln und bei der kleineren ingestierten Bodenmenge in der 2. Woche (300 mg) große Unterschiede in der Wiederfindungsraten auf. Die Wiederfindungsraten gehen von 81 % (Zr) bis 2300 % (Ba). Auch die Variationskoeffizienten der Wiederfindungsraten sind sehr unterschiedlich: von 35 % (Y) bis 195 % (Ba). Bei der größeren ingestierten Bodenmenge in der 3. Woche sind die Schwankungen bedeutend kleiner, da die ingestierten Mengen der Tracer in einem günstigeren Verhältnis zu den mit der Nahrung aufgenommenen Mengen liegen. Hier wurden folgende Mittelwerte und Variationskoeffizienten (VK) für die einzelnen Elemente gefunden: (geordnet nach steigender Wiederfindungsrate)

	Wiederfindungsrate
Zr	55 % (VK 60 %)
Y	88 % (VK 15 %)
Si	92 % (VK 18 %)
Al	94 % (VK 17 %)
V	148 % (VK 45 %)
Ba	150 % (VK 47 %)
Mn	248 % (VK 74 %)
Ti	290 % (VK 131 %)

Auf Grund dieser Untersuchung erscheinen nur die Elemente Al, Si und Y als geeignete Tracer.

Die niedrige Wiederfindungsrate bei Zr ist durch den unvollständigen Aufschluss der Proben für die Analytik bedingt. Die hohen Raten bei Ti, V, Mn und Ba werden durch die hohen Gehalte dieser Elemente in der Nahrung und den kurzen Untersuchungszeitraum, durch den sich kein Gleichgewicht in der Massebilanz einstellen konnte, erklärt. Diese Elemente sind daher als Tracer nur bedingt geeignet.

Es konnte aber gezeigt werden, dass sich durch die gezielte Bodeningestion die Menge der Tracer im Stuhl erhöht und die Ingestion von Boden im Bereich von 500 mg pro Tag sicher bestimmbar ist.

Bei der Validierung in der ANACONDA-Studie ist die Situation auf Grund des günstigeren Studiendesigns (längerer Untersuchungszeitraum, größerer Abstand der Etappen, z.T. andere Tracer) besser. Zwischen den Tracern und Probanden gibt es trotzdem eine beträchtliche Variation. In der Tabelle 2 sind die Differenzen zwischen dem Median der berechneten Bodeningestion (nach Abzug der Nahrung) und der in den Kapseln enthaltenen Bodenmenge für die einzelnen Studienwochen dargestellt.

Tabelle 2: Differenzen zwischen dem Median der berechneten Bodeningestion (nach Abzug der Nahrung) und der in den Kapseln enthaltenen Bodenmenge [mg/d]

Testprobe [mg/d]	Al	Ce	La	Nd	Si	Ti	Y	Zr
0	2,6	84,4	691,1	127,3	- 24,8	82,3	- 10,5	- 21,5
20	10,4	18,4	181,1	28,3	- 2,9	226,4	22,2	- 41,0
100	24,5	36,9	238,2	49,0	- 1,9	245,6	49,5	- 30,7
500	-64,5	- 49,0	366,6	- 45,7	- 113,5	25,5	49,4	- 273,6

Für die Tracer Al, Si, Y, Ce und Nd ergibt sich für die Wochen mit gezielter Bodeningestion eine gute Übereinstimmung der Wiederfindung. Bei Zr macht sich wieder ein negativer analytischer Fehler, bedingt durch den unvollständigen Aufschluss bemerkbar. Für La scheint noch eine andere Quelle für die Ingestion zu existieren.

Die Variationskoeffizienten der Mittelwerte der berechneten Bodeningestionen liegen bei den Testproben von 20 und 100 mg/d bei den meisten Elementen im Bereich von 70 bis 130 % und bei den Testproben von 500 mg/d bei 25 bis 55 %. Das heißt erst bei größeren Ingestionsraten liegen die Tracermengen außerhalb des Schwankungsbereiches der Nahrung.

## 2.5 Probanden

### 2.5.1 Zahl, Alter, Geschlecht

In der Tabelle 3 sind die wichtigsten Daten zu den Probanden der einzelnen Studien zusammengestellt.

Tabelle 3: Probanden der Studien

Studie	Alter	Anzahl	Anteil Jungen	Aufenthaltort	Besonderheiten
BINDER	1 - 3	65	65 %	zu Hause	alle mit Windeln
CLAUSING	2 - 4	18	-	Kindergarten	
	2 - 4	6	-	Krankenhaus	Vergleichsgruppe
WIJNEN	0 - 5	292	48 %	Kindergarten	
	1 - 5	78	54 %	Campingplatz	
	1 - 5	15	60 %	Krankenhaus	Vergleichsgruppe
DAVIS	2 - 7	101	50 %		keine Windeln repräsentative Stichprobe
AMHERST	1 - 4	64	47 %	Kindergarten	
ANACONDA	1 - 4	64	56 %	zu Hause	repräsentative Stichprobe

Die Vergleichsgruppen der Kinder, die sich im Krankenhaus aufhielten, sollten der Korrektur des mit der Nahrung aufgenommenen Anteils der Tracer dienen. Die Gruppe der Kinder auf dem Campingplatz wurde ausgewählt, um eine Situation mit möglichst großem Kontakt zum Boden und damit guter Ingestionsmöglichkeit zu studieren.

Bei den Studien DAVIS und ANACONDA wurde versucht eine für die jeweilige Region repräsentative Stichprobe zu untersuchen.

Die Studie von CLAUSING war als Pilotstudie gedacht und hat daher eine geringere Probandenzahl.

Nur eine geringe Zahl an Probanden stammt aus der Altersgruppe 6 bis 7 Jahre.

## 2.5.2 Demographische Daten und Daten zum Verhalten

Mit Ausnahme der Studien von BINDER und CLAUSING wurden bei allen Studien von den Eltern der Probanden demographische Daten und Daten zum Verhalten ihrer Kinder erfragt. Dabei wurden unter anderem folgende demographische Daten der Eltern erfasst:

- Familienstand
- Familiengröße
- Geburtsreihenfolge der Kinder
- Alter
- Ausbildung, Beruf
- Jahreseinkommen (in Klassen)
- Rasse (nur in den USA)
- Religion
- Haustiere
- Merkmale des Hauses und der Spielorte im Freien

Zum allgemeinen Verhalten der Kinder wurden z. B. erfragt:

- Berühren von Gegenständen mit dem Mund (im Englischen mit "mouthing" bezeichnet)
- Fingerlutschen
- Nägelkauen
- Möbel und Fenster belecken
- Schmutz verschlucken
- Verzehr von rohem bzw. ungewaschenem Gemüse und Obst
- Häufigkeit des Zähneputzens
- Verschlucken von Zahnpasta
- Händewaschen vor dem Essen bzw. vor dem Schlafen
- Gesichtwaschen vor dem Essen bzw. vor dem Schlafen
- Stofftier mit ins Freie nehmen

Während der Beprobung wurden durch die Eltern bzw. im Kindergarten oder Krankenhaus unter anderem folgende Angaben registriert:

- Veränderungen im Gesundheitsstatus
- Medikamenteneinnahme
- Wachzeit
- Aktivitäten im Haus und im Freien
- fehlende oder verlorengegangene Proben

Bei einigen Studien wurde versucht, die ermittelten Ingestionsraten zu diesen demographischen und Verhaltensdaten in Beziehung zu setzen und Abhängigkeiten abzuleiten. Darauf wird im Abschnitt 2.13 eingegangen.



## 2.6 Studiendauer

In der Tabelle 4 sind die Untersuchungszeiträume und Häufigkeiten der Beprobung aufgelistet.

Tabelle 4: Untersuchungszeiträume und Beprobungshäufigkeiten der Studien

Studie	Zeitraum	Beprobung	
		Nahrung	Stuhl / Urin
BINDER	Sommer	-	3 Tage, Sammelprobe
CLAUSING		-	5 Tage, nur während des Aufenthalts im Kindergarten
WIJNEN	Juni/Juli Aug./Sept. Juni-Aug. Sept.-Juni	-	Kindergarten: 2 x 3 - 5 Tage  Campingplatz: 3 - 5 Tage Krankenhaus: 1 Tag
DAVIS	Juli-Sept.	4 Tage (2. - 5. Tag)	4 Tage (3. - 6. Tag) Sammelprobe
AMHERST	Sept./Okt.	2 x Montag - Donnerstag	2 x Montag - Freitag
ANACONDA	Sept.	Montag - Sonntag	Dienstag - Montag

## 2.7 Probenahme

Bei den Studien wurden die in Tabelle 5 aufgeführten Materialien beprobt und analysiert.

Tabelle 5: Beprobte Materialien

Studie	Nahrung	Stuhl	Urin	Boden	Staub	sonstiges
BINDER		X		X		
CLAUSING		X		X		
WIJNEN		X		X		
DAVIS	X	X	X	X	X	Zahnpasta
AMHERST	X	X		X	X	Zahnpasta, Körperpflegemittel
ANACONDA	X	X		X	X	Zahnpasta, Körperpflegemittel

Weitere Angaben zur den Modalitäten der Beprobung sind in den folgenden Abschnitten zu finden. Alle Probengefäße wurden vorher getestet, dass die Proben durch die Behälter nicht mit Tracern kontaminiert werden können.

### 2.7.1 Nahrung

Bei den jüngeren Studien wurden von den Nahrungsmitteln und Getränken der Probanden entsprechende Duplikatproben tagesweise gesammelt. Diese Duplikatproben schlossen auch Medikamente und Nahrungsergänzungstoffe, wie Vitamine mit ein. Die Proben wurden in PE-Behältern gesammelt. Diese Behälter wurden in Plastebeuteln mit Reißverschluss aufbewahrt.

### 2.7.2 Stuhl

Bei der BINDER-Studie wurden ausschließlich Windeln beprobt. Es wurde zwar versucht an 3 Tagen eine möglichst große Stuhl- und Urinmenge zu erfassen, aber eine vollständige Probe nicht erreicht.

In der Untersuchung von CLAUSING erfolgte die Sammlung der Stuhlproben ausschließlich in der Zeit des Aufenthalts im Kindergarten. Es wurden also der Stuhl nicht vollständig beprobt.

Für die Untersuchungen von DAVIS wurden nur Kinder ausgewählt, die keine Windeln tragen. Die Probenahme erfolgte mit Hilfe von Plasteschüsseln mit Deckel, die mit Hilfe eines Rahmens auf die Toilettenbrille gesetzt werden konnten. Das Toilettenpapier wurde in einem separaten Plastebeutel gesammelt.

Für die Studien AMHERST und ANACONDA wurden Baumwollwindeln und wasserdichte Windelhöschen verwendet. Der Windelwechsel erfolgte nach einer vorgegebenen Prozedur zur Verringerung von direkten Kontamination der Stuhlproben. Die benutzten Windeln wurden in Reißverschlussbeuteln aus Plaste gesammelt und in Kühltaschen aufbewahrt. Das benutzte Toilettenpapier und Wischtücher wurden nicht gesammelt.

### 2.7.3 Urin

Bei BINDER wurde der Urin gemeinsam mit dem Stuhl in den Windeln gesammelt und auch gemeinsam analysiert.

Nur in der Studie von DAVIS erfolgte eine separate Sammlung des Urins. Dabei wurde der Urin vom 3. bis zum 6. Tag der jeweiligen Beprobungsperiode jeweils eine halbe Stunde nach dem Aufwachen bzw. vor dem zu Bett gehen gesammelt. Von DAVIS wird angenommen, dass es sich um etwa die Hälfte des 24-Stunden-Urins handelt.

### 2.7.4 Boden

Für die Herstellung einer möglichst repräsentativen Bodenprobe wurden an den Spielorten der Kinder meist mehrere Proben entnommen. Die Tabelle 6 enthält eine Zusammenstellung der Probenahmemodalitäten für die einzelnen Studien.

Tabelle 6: Entnahme der Bodenproben

Studie	Probenahmeorte	Teilproben	Mischprobe	Entnahmetiefe
BINDER	vor und hinter dem Wohnhaus	5	ja	2,5 cm
CLAUSING	im Kindergarten (Spielplatz, Garten und Sandkasten)	1	nein	5 cm
WIJNEN	Kindergarten bzw. Campingplätze	1	nein	5 cm
DAVIS	Spielorte im Wohngrundstück	5	ja	2,5 cm
AMHERST	3 Spielorte in der Nähe des Wohnhauses und am Kindergarten	8 je Ort	gewichtet nach Aufenthaltszeit an den Spielorten	7,5 cm
ANACONDA	bis zu 3 Spielorte in der Nähe des Wohnhauses	8 je Ort	gleiche Anteile der Trockenmasse	7,5 cm

Für die Entnahme der Bodenproben wurde, soweit angegeben, Entnahmegeräte aus rostfreiem Stahl verwendet.

Bei CLAUSING und WIJNEN wurden für die Gruppe der Kindergartenkinder nur die Umgebung des Kindergartens beprobt, die Umgebung der Wohnhäuser blieb unberücksichtigt.

Bei einigen Studien wurden die Teilproben auf den Spielflächen jeweils nach einem festen Plan entnommen:

DAVIS            Eckpunkte und Mitte eines Rechtecks oder bei unregelmäßigen bzw. teilweise bewachsenen oder gepflasterten Flächen auf einer Traverse in 1 m Abständen

AMHERST,  
ANACONDA    in den 8 Haupthimmelsrichtungen

#### 2.7.5 Staub

Bei den Studien DAVIS, AMHERST und ANACONDA wurden die mit einem modifizierten Staubsauger auf den Flächen entnommen, auf denen sich die Probanden aufgehalten hatten.

Bei DAVIS wurde zusätzlich noch eine Probe aus dem Staubbeutel des Staubsaugers der Familie des Probanden entnommen.

## 2.7.6 sonstige Materialien

Folgende Materialien wurden beprobt und analysiert.

DAVIS Zahnpaste

AMHERST,  
ANACONDA Zahnpaste, Körperpflegemittel (Puder, Hautcrem, Seife)

Es wurden den Probanden dieser Studien ausschließlich Materialien zur Benutzung während der Studien übergeben, die die Tracer in geringen Mengen enthielten.

## 2.8 Transport und Lagerung der Proben

Die temperaturempfindlichen Materialien (Nahrung, Stuhl, Urin) wurden gekühlt transportiert und zumindest gekühlt (4 °C), aber meist eingefroren (-20 °C) bis zur Probenvorbereitung gelagert.

## 2.9 Probenvorbereitung

### 2.9.1 Nahrung

Die Nahrungsproben der verschiedenen Tage wurden bei DAVIS zu einer Probe vereinigt, bei AMHERST und ANACONDA aber getrennt bearbeitet.

Die Probenvorbereitung lief nach den in Tabelle 7 aufgeführten Schemata ab.

Tabelle 7: Vorbereitung der Nahrungsproben

Schritt	DAVIS	AMHERST, ANACONDA
Homogenisierung	Mischer aus rostfreiem Stahl	
Trocknung	Aliquot 72 h bei 80 - 100 °C	Gefriertrocknung 2 d bei -12 bis -7 °C und 2,05 - 2,15 Torr
Homogenisierung		Küchenmaschine mit Blättern aus rostfreiem Stahl
Veraschung	16 - 24 h bei 900 - 1000 °C	10 g TM in Pt- oder Quarztiegel im Muffelofen
Zerkleinerung	im Mörser auf < 37 µm	
Tablette gepresst	mit 25 t auf 50 mg/cm <sup>2</sup>	
Aufschluss		mit HNO <sub>3</sub> und HF

### 2.9.2 Stuhl

Bei BINDER und DAVIS wurden die Stuhlproben des gesamten Beprobungszeitraumes vereinigt und nur diese Mischprobe untersucht. Bei den anderen Studien wurden die Tagesproben einzeln verarbeitet.

Die Probenvorbereitung bei DAVIS lief nach dem gleichen Schema wie die der Nahrungsproben (siehe 2.9.1).

Die Pläne für die Probenvorbereitung der Stuhlproben der anderen Studien sind in der Tabelle 8 zusammengestellt.

Tabelle 8: Vorbereitung der Stuhlproben

Schritt	BINDER	CLAUSING	WIJNEN	AMHERST, ANACONDA
Trocknung	Gefriertrocknung			
Zerkleinerung und Homogenisierung	Küchenmaschine	Mahlung		
Veraschung	?	0,5 g 4 h bei 550 °C	0,5 g ca. 12 h bei 500 °C im Porzellantiegel	10 g im Quarztiegel im Muffelofen
Aufschluss	?	mit HCl + HF bei 90 °C	in mehreren Schritten mit HCl und HF bei 90 °C	Li-Metaborat-Schmelzaufschluss, Lösung mit HNO <sub>3</sub>

Bei allen Proben wurden die Trocken- und Glührückstände bestimmt.

### 2.9.3 Urin

Bei DAVIS wurden die Urinproben der 4 Tage vereinigt, gewogen in Kristallisierschalen bei 80 bis 100 °C zu einem hygroskopischem Sirup eingedampft und anschließend verascht.

#### 2.9.4 Boden

Bei BINDER werden keine Angaben zur Vorbereitung der Bodenproben gemacht.

Die Prozeduren zur Vorbereitung der Bodenproben bei den anderen Studien sind in der Tabelle 9 aufgeführt.

Tabelle 9: Vorbereitung der Bodenproben

Schritt	CLAUSING	WIJNEN	DAVIS	AMHERST, ANACONDA
Trocknung	Lufttrocknung	bei 105 °C	mehrere Tage bei 125 °C	Lufttrocknung
Mischen				im Trommelmischer bzw. von Hand
Teilen				durch "Vierteln" in 2 Hälften
Absieben grober Bestandteile	2 mm		0,83 und 0,25 mm	2 mm
Zerkleinerung	Mahlung			ca. 30 g in Scheibenschwing- mühle auf < 74 µm
Veraschung	0,1 g 4 h bei 550 °C	0,1 g ca. 12 h bei 500 °C im Porzellantiegel		
Aufschluss	mit HCl + HF bei 90 °C	in mehreren Schritten mit HCl und HF bei 90 °C		Li-Metaborat- Schmelzaufschluss, Lösung mit HNO <sub>3</sub>

Bei den berechneten Ingestionsraten gibt es z.T. gravierende Inkonsistenzen zwischen den verschiedenen Tracern. Eine Ursache dafür wird von Calabrese und Mitarbeitern [9] in unterschiedlichen Tracerkonzentrationen in den verschiedenen Korngrößenfraktionen des Bodens gesehen. Die bisherigen Berechnungen beruhten immer auf den Konzentrationen in der Fraktion < 2 mm. Da aber Kinder vor allem die an den Händen besser haftenden kleineren Korngrößenfraktionen aufnehmen. Wurden die Bodenproben der ANACONDA-Studie erneut untersucht. Dabei wurde die Fraktion < 250 µm abgesiebt, aufgeschlossen und analysiert. Wenn die Tracerkonzentrationen in dieser Korngrößenfraktion von der Fraktion < 2 mm abweicht, kommt es auch zu einer entsprechenden Verschiebung der berechneten Ingestionsraten für diese Elemente.

## 2.9.5 Staub

Für die Studie DAVIS, AMHERST und ANACONDA wurden die Staubproben entsprechend der in Tabelle 10 aufgeführten Schritte vorbereitet.

Tabelle 10: Vorbereitung der Staubproben

Schritt	DAVIS	AMHERST	ANACONDA
Trocknung			Lufttrocknung
Siebung	0,83 und 0,25 mm zur Entfernung von Fremdkörpern		Abtrennung der größeren Bestandteile
Veraschung		im Muffelofen	nur die größeren Bestandteile
Siebung		0,21 mm	
Mahlung		Fraktion > 0,21 mm	nur die Asche
Vereinigung und Mischung		Fraktion < 0,21 mm und aufgemahlene Fraktion > 0,21 mm	feinere Bestandteile und aufgemahlene Asche
Aufschluss		0,2 g mit Li-Metaborat-Schmelzaufschluss, Lösung mit HNO <sub>3</sub>	

## 2.10 Analytik

### 2.10.1 Elementanalytik

Für die Bestimmung der Elementkonzentrationen in den Proben kamen folgende Analyseverfahren zu Einsatz (siehe auch Tabelle 11).

ICP-AES	Atomemissionsspektalanalyse mit induktiv gekoppeltem Plasma
ICP-MS	Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma
RFA	Röntgenfluoreszenzanalyse
EDRFA	energiedispersive Röntgenfluoreszenzanalyse
WDRFA	wellenlängendispersive Röntgenfluoreszenzanalyse

Tabelle 11: Analyseverfahren

Studie	Nahrung, Stuhl, Urin	Boden, Staub
BINDER	ICP-AES	RFA
CLAUSING	ICP-AES	ICP-AES
WIJNEN	ICP-AES	ICP-AES
DAVIS	WDRFA	EDRFA
AMHERST	ICP-AES, ICP-MS	ICP-AES, ICP-MS
ANACONDA	ICP-AES, ICP-MS	ICP-AES, ICP-MS

Zur Qualitätssicherung der Analysenergebnisse wurden verschiedene Verfahren eingesetzt:

- Mehrfachbestimmungen
- Standardadditionsverfahren
- Untersuchung von zertifizierten Standardreferenzmaterialien
- Parallelbestimmung der Proben mit anderen Analysenverfahren

### 2.10.2 Bestimmung des säureunlöslichen Rückstandes (AIR)

Für die Bestimmung des säureunlöslichen Rückstandes (acid soluble residue, AIR) wurde in folgender Weise vorgegangen:

- Veraschung der getrockneten Proben (0,1 g Boden bzw. 1 g Stuhl) 4 bis 12 Stunden bei 550 °C
- Zugabe von 5 ml HCl (37 %) und eindampfen zur Trockne
- Lösen in 10 ml 2 M HNO<sub>3</sub> und verdünnen mit dest. Wasser
- Filtration über einen Papierfilter
- Trocknung des Filters mit Rückstand bei 105 °C über Nacht
- Veraschung des Filters mit Rückstand bei 550 °C über Nacht
- Zugabe von dest Wasser und 2 ml HCl (37 %) und eindampfen zur Trockne
- abkühlen und wiegen
- Berechnung des AIR

### 2.11 Auswertungsmethodik

Die der Auswertung allgemein bzw. speziell bei bestimmten Studien zugrunde liegenden Annahmen wurde im Abschnitt 2.2 bereits ausführlich und kritisch dargestellt. Deshalb werden sie hier im entsprechenden Zusammenhang nur nochmal ohne weitere Erläuterung aufgeführt.

Unter der Annahme, dass ein Tracer im Gastrointestinaltrakt nicht oder nur in vernachlässigbarer Menge aufgenommen wird, ist die Summe der Tracermassen in allen Ausscheidungen (Stuhl und Urin) eines betrachteten Zeitabschnitts gleich der Summe der Tracermassen in allen oralen Aufnahmen (Nahrung, Staub- und Bodeningestion) eines zuzuordnenden Zeitabschnitts. Dabei wird auch davon ausgegangen, dass es keine weiteren Quellen der Aufnahme für diesen Tracer gibt. Der betrachtete Zeitabschnitt der Ausscheidungen soll dabei um die mittlere gastrointestinale Transitzeit gegenüber dem zugehörigen Zeitabschnitt der oralen Aufnahme verschoben sein. Die gastrointestinale Transitzeit wird bei den Studien mit einem Tag angenommen.

$$m_{i,F} + m_{i,U} = m_{i,N} + m_{i,B} + m_{i,S}$$

$m_{i,X}$  Masse des Tracers i im Kompartiment X [mg]

Kompartimente:

F Stuhl (feces)

U Urin

N Nahrung

B Bodeningestion

S Staubingestion



Auf Grund dieser Massebilanz kann die Tracermasse im ingestierten Boden und Staub aus der Differenz der Tracermassen in den Ausscheidungen und in der Nahrung berechnet werden.

$$m_{i,B} + m_{i,S} = m_{i,F} + m_{i,U} - m_{i,N}$$

Wenn man die ingestierte Staubmasse zunächst vernachlässigt, kann die Masse der Bodeningestion ermittelt werden, indem die Differenzmasse des Tracers durch die Tracerkonzentration im Boden dividiert wird.

$$m_B = (m_{i,F} + m_{i,U} - m_{i,N}) / c_{i,B}$$

$m_x$  Masse des Kompartiments X [g]

$c_{i,X}$  Konzentration des Tracers i im Kompartiment X [mg/g]

Die Masse des Tracers i in einem Kompartiment X wird allgemein nach der Formel

$$m_{i,X} = m_x * c_{i,X}$$

berechnet.

Eine Differenzierung der Ingestion von Boden bzw. Staub läßt sich nur durchführen, wenn sich Boden und Staub in den jeweiligen Konzentrationen einiger Tracer deutlich unterscheiden.

Bei den vorliegenden Studien wurden z.T. weitere vereinfachende Annahmen gemacht. Die daraus resultierenden Verfahren zur Berechnung der Bodeningestion werden nachfolgend erläutert.

#### BINDER

Die Tracermassen in Nahrung und Urin werden außer acht gelassen und die tägliche Trockenmasse des Stuhls ( $m_F$ ) wird mit 15 g angenommen.

$$m_B = (m_F * c_{i,F}) / c_{i,B}$$

Die Ingestionsraten werden für jeden Tag berechnet.

Die Aufnahme aus anderen Quellen (Nahrung, Staub) wird die Mengen der einzelnen Elemente um unterschiedliche Beträge vergrößern. Deshalb ist anzunehmen, dass die tatsächliche Ingestionsrate maximal so groß ist, wie die niedrigste berechnete Ingestionsrate aus den verwendeten Tracern (limiting tracer method, LTM). So wird für jeden Probanden und jeden Untersuchungstag immer die niedrigste Ingestionsrate verwendet.

Auf Grund der geringen Streuung der Elementkonzentrationen im Boden wird zur Berechnung die mittlere Konzentration aller Böden herangezogen.

#### CLAUSING und WIJNEN

Die Berechnung erfolgt in der gleichen Weise wie bei BINDER. Die tägliche Trockenmasse des Stuhls wird aber mit 10 g bei CLAUSING und mit 15 g bei WIJNEN angenommen. Zur Berechnung werden die mittleren Elementkonzentrationen im Boden der Kindergärten für die Probandengruppen im Kindergarten und im Krankenhaus genutzt. Bei den Gruppen auf den 3 Campingplätzen verwendet WIJNEN die mittleren Elementkonzentrationen im Boden des jeweiligen Campingplatzes. Die Ingestionsraten werden auch hier für jeden Tag berechnet.

Zur Auswertung wird zunächst ebenfalls auf die "limiting tracer method" zurückgegriffen. Zum Schluß werden aber die scheinbaren Bodeningestionen der Vergleichsgruppe aus dem Krankenhaus zur Korrektur des Einflusses anderer Quellen (Nahrung, Staub) subtrahiert.

#### DAVIS

Bei der Berechnung der Ingestionsraten werden die Elementmengen in Nahrung und Urin berücksichtigt. Fehlende Proben bei einigen Probanden werden mit Hilfe vorhandener Daten des jeweiligen Probanden korrigiert. Die Ingestionsraten werden für den Gesamtzeitraum von 4 Tagen berechnet und anschließend durch 4 geteilt.

Die Elementkonzentrationen im Boden wurden für jeden Probanden getrennt bestimmt und für die Berechnung nicht gemittelt.

Zusätzlich wurde eine Korrektur der Ingestion von Zahnpasta beim Zähneputzen durchgeführt bei den Kindern für die das Verschlucken in den Beobachtungsprotokollen angegeben war. Dafür wurden Literaturangaben und eigene Analysenwerte herangezogen.

Der Einfluß des Hausstaubs wurde versuchsweise mit berücksichtigt, indem zur Berechnung der Summe der Ingestionen von Boden und Staub ein gewichtetes Mittel der Elementkonzentrationen in Boden und Staub verwendet wurde. Als Wichtungsfaktoren wurden die relativen Aufenthaltszeiten im Haus und im Freien eingesetzt.

#### AMHERST

Die Berechnung der Ingestionsraten erfolgte sowohl ohne, als auch mit Berücksichtigung der Nahrung. Der Urin wurde nicht beprobt, da die meisten Tracer nur in geringen Konzentrationen auftreten. Die Ingestionsraten wurden für jeden Tag berechnet.

Für die Berechnung wurden die probandenspezifischen Elementkonzentrationen im Boden bzw. Staub verwendet.

Die Berechnungen erfolgten alternativ für folgende Fälle

- ausschließliche Ingestion von Boden
- ausschließliche Ingestion von Hausstaub
- kombinierte Ingestion von Boden und Staub (entsprechend der Aufenthaltszeiten)

#### ANACONDA

Bei der Berechnung der Ingestionsraten wurde die Nahrung mit berücksichtigt. Die Elementkonzentrationen im Boden waren probandenspezifisch. Die Bodeningestion wurde für den Gesamtzeitraum der Untersuchung (7 Tage) berechnet und wurde dann durch 7 geteilt.

Zur Einschätzung der Zuverlässigkeit der einzelnen Tracer wurde das Verhältnis der Tracer im Boden zur Nahrung verwendet. Je größer das Verhältnis Boden/Nahrung für einen Tracer ist, umso geringer ist die Anfälligkeit für zufällige Schwankungen. Die Tracer wurden in dieser Hinsicht für jeden Probanden bewertet und in eine entsprechende Rangfolge gebracht. In dieser Rangfolge wurden sie zur Abschätzung der Ingestionsraten herangezogen. Das Verfahren wurde unter dem Begriff "best tracer method" (BTM) eingeführt. Dieses Vorgehen ist biologisch begründet und verringert statistische Schwankungen.

Bei der ANACONDA-Studie wurde eine zweite Berechnung der Ingestionsraten auf der Basis der Bodenfraktion < 250 µm vorgenommen.

## 2.12 Ergebnisse

Bei der Vorstellung der Ergebnisse werden in den Studien verschiedene Kenngrößen der statistischen Verteilung der Einzelwerte angegeben. In dieser Literaturstudie werden, soweit vorhanden, die wichtigsten Größen angeführt und wie folgt bezeichnet:

n	Anzahl
Mittel	arithmetischer Mittelwert
SD	Standardabweichung
VK	Varianzkoeffizient (relative Standardabweichung)
Median	
GM	geometrisches Mittel
GSD	geometrische Standardabweichung
90 %	90 % Perzentil
95 %	95 % Perzentil
Min	Minimum
Max	Maximum

Umfangreichere Tabellen sind im Anhang zusammengestellt und mit einem A vor der Tabellenummer gekennzeichnet

### 2.12.1 Nahrung

Bei DAVIS sind die Frisch- und Trockenmassen der täglichen Nahrung einschließlich der Getränke angegeben (siehe Tab. A1). Die mittlere Frischmasse beträgt 918 g und die Trockenmasse 239 g (Trockenrückstand 26 %). Die Varianzkoeffizienten liegen mit 3 % sehr niedrig. Es wurden auch keine großen Unterschiede hinsichtlich des Alters (2 - 7 Jahre) und des Geschlechts gefunden.

Die Konzentrationen bzw. Mengen der einzelnen Tracer in den Nahrungsproben sind sehr unterschiedlich. Die bei in den Studien DAVIS, AMHERST und ANCONDA ermittelten Werte sind in der Tabelle A2 zusammengestellt.

Bei der ANACONDA-Studie lagen die Konzentrationen in der Nahrung zum Teil unter den Nachweisgrenzen, das betrifft bei

Ti	4,9 % der Proben,
Y	29,2 % der Proben,
La	42,2 % der Proben,
Ce	20,8 % der Proben und
Nd	37,5 % der Proben.

In dieser Studie wurden auch die Varianzkomponenten hinsichtlich der Unterschiede zwischen den Probanden und den Tagen ausgewertet. Dabei zeigt sich, dass bei La und Nd die Variabilität zwischen den Probanden und bei Al, Si, Ti und Y zwischen den Tagen überwiegt. Bei Zr und Ce sind die Komponenten etwa ausgewogen. Besonders hohe Variabilität besitzen Ti und La. Dadurch ist vor allem Ti empfindlich hinsichtlich der Fehler bei der Abschätzung der Transitzeit und damit der Zuordnung von Aufnahme und Ausscheidung.

### 2.12.2 Stuhl

Von BINDER wurden Stuhltrockenmassen von 1,8 bis 17,2 g gemessen. Der Mittelwert betrug 7,5 g und der Median 7,1 g. Diese Mengen erschienen ihm im Vergleich zu Literaturangaben [23] zu gering, so dass er entsprechende Probenverluste befürchtete und die tägliche Stuhlmenge auf den Wert von 15 g festsetzte.

In der Studie von DAVIS sind die Frisch- und Trockenmassen der täglichen Stuhlproben angegeben (siehe Tab. A3). Die mittlere Frischmasse beträgt 55,1 g und die Trockenmasse 12,7 g (Trockenrückstand 23 %). Die Varianzkoeffizienten liegen mit 6,4 bzw. 4,7 % recht niedrig. Hinsichtlich des Alters (2 - 7 Jahre) und des Geschlechts gibt es deutliche Unterschiede. Die Stuhlmasse nimmt mit zunehmendem Alter zu und ist bei Jungs größer als bei Mädchen. Die mittlere Stuhltrockenmasse aller Probanden betrug 12,7 g.

Bei der AMHERST-Studie wurde an den 8 Beobachtungstagen folgende Stuhlgangshäufigkeit beobachtet:

Anzahl der Tage mit Stuhlgang	Anteil der Probanden
3	1,8 %
4	18,8 %
5	18,8 %
6	14,1 %
7	21,9 %
8	25,0 %

Das zeigt, dass eine mittlere gastrointestinale Transitzeit von einem Tag nur eine Näherung sein kann.

Weiterhin wurde festgestellt, dass die täglichen Stuhlmassen mit zunehmendem Alter der Probanden größer werden. Die mittlere Stuhltrockenmasse aller Probanden betrug 12,6 g. Weitere Angaben zu den Stuhlmassen sind in der Tabelle A3 zu finden.

Die Konzentrationen bzw. Mengen der einzelnen Tracer im Stuhl sind in der Tabelle A4 zusammengestellt.

### 2.12.3 Urin

Der Urin wurde nur in der Studie von DAVIS separat untersucht. Dabei wurden folgende Tracermengen in den Urinproben (Summe über 4 Tage) gefunden (Tabelle 12).

Tabelle 12: Tracermengen im Urin [ $\mu\text{g}$ ]

Größe	Al	Si	Ti
Mittel	2440	19400	20,1
SD	140	910	1,9
Median	2030	17100	15,7
Min	643	3930	NWG
Max	7190	53400	87,1

Das zeigt, dass im Urin zumindest für Si und Al keine vernachlässigbar kleinen Mengen

enthalten sind. Da die Tracer nur über eine gastrointestinale Aufnahme in den Urin gelangen können, ist auch die Annahme, dass die gastrointestinale Resorption der Tracer nur in geringem Maße stattfindet, kritisch zu prüfen.

#### 2.12.4 Boden

Die Konzentrationen der einzelnen Tracer in den Bodenproben der Studien sind in Tabelle A5 zusammengefasst.

Bei BINDER variieren die Konzentrationen im Boden kaum, daher wurden die Mittelwerte zur Berechnung der Bodeningestion verwendet.

Auch bei CLAUSING und WIJNEN wurden die Mittelwerte der Tracerkonzentrationen im Boden der jeweiligen Probandengruppe zur Berechnung herangezogen. Für die Gruppen im Krankenhaus wurden die Werte der Kindergartengruppe angewandt.

Die Variationskoeffizienten der meisten Elemente bei den Studien AMHERST und ANACONDA liegen im Bereich von 13 bis 35 %. Nur Zr und V zeigen bei der AMHERST-Studie größere Streuungen.

Für die ANACONDA-Studie sind auch die Konzentrationen in der Fraktion < 250 µm angegeben [9]. Bei den Elementen Al, Si, Ti, Y und Zr gibt es keine gravierenden Unterschiede der Konzentrationen. Die Verhältnisse der Konzentrationen der Fraktion < 250 µm zur Fraktion < 2 mm liegen für diese Elemente im Bereich von 0,89 bis 1,1. Für La, Ce und Nd sind diese Verhältnisse aber 2,2 bis 2,5. Dadurch verringern sich die berechneten Ingestionsraten auf der Basis von La, Ce und Nd auch um diesen Faktor.

Bei der späteren Untersuchung [30] der Fraktion 53 - 100 µm und dem Vergleich mit der Fraktion 100 - 250 µm kommt es nur beim Zr zu einer relevanten Veränderung der Konzentration von 178 µg/g in der Fraktion 100 -250 µm auf 309 µg/g in der Fraktion 53 - 100 µm. Bei der Siebanalyse wurden folgende Masseanteile in den Korngrößenfraktionen gefunden:

	Mittel	Min	Max
100 - 250 µm	72 %	50 %	94 %
53 - 100 µm	23 %	6 %	43 %
< 53 µm	5 %	0 %	14 %

#### 2.12.5 Staub

Eine Zusammenstellung der Tracerkonzentrationen in den Staubproben ist in der Tabelle A6 zu finden.

Bei DAVIS unterscheiden sich die gezielt entnommenen Staubproben von den Proben aus den Staubsaugerbeuteln der Probandenhaushalte und beide sind signifikant verschieden von den Bodenproben. Für die Einbeziehung des Staubs in die Ingestionsberechnung wurde entsprechend der Aufenthaltszeiten ein gewichtetes Mittel aus dem Mittelwert der beiden Staubproben einerseits und den Bodenproben andererseits gebildet.

Die Staubproben der Studien AMHERST und ANACONDA streuen erheblich stärker, als die entsprechenden Bodenproben.

## 2.12.6 Bodeningestion

Die Berechnung der Bodeningestionen wurden für die einzelnen Studien bereits im Abschnitt 2.11 beschrieben. Die berechneten Werte sind in der Tabelle A7 zusammengestellt.

In der Tabelle 13 sollen zum besseren Überblick noch einmal die zuverlässigsten Werte der einzelnen Studien zusammengestellt werden.

Tabelle 13: Zuverlässigste Werte der Bodeningestion [mg/d] (alle Studien)

Studie	Methode bzw. Gruppe	Mittel	SD	Median	GM
BINDER	LTM	108	121	88	
CLAUSING	LTM	105	67	82	
	korrigiert mit Krankenhausgruppe	56		35	
WIJNEN	Kindergarten Juni/Juli, 1 - 2 a				33 - 88
	Kindergarten Juni/Juli, $\geq 3$ a				12 - 62
	Kindergarten Aug./Sept., 1-2 a				0 - 19
	Kindergarten Aug./Sept., $\geq 3$ a				0 - 29
	Camping, $\leq 3$ a				150-200
	Camping, $> 3$ a				31 - 81
DAVIS	mit Korrektur der Zahnpasta	37	13		
AMHERST	Al, Si, Y (zuverlässigste Tracer)	(85-154)		9 - 40	
	Al, Si, Ti, V, Y, Zr	(21-459)		9 - 96	
ANACONDA	BTM, 1. Rang	65,5	120	20,1	
	BTM, 2. Rang	33,2	145	1,5	
	BTM, Median 1. - 4. Rang	6,8	74,5	- 2,4	
	Fraktion $< 250 \mu\text{m}$ Al, Si, Ti, Y, Zr, La, Ce, Nd			- 28 - 99	

Bei der Studie AMHERST wurde von den Autoren empfohlen, die Medianwerte zu nutzen, da die arithmetischen Mittel durch einzelne Extremwerte zu stark verzerrt wurden. Deshalb sind die Mittelwerte in Klammern angegeben.

Es ist zu sehen, dass trotz sehr unterschiedlichem Studiendesign sowohl die arithmetischen und geometrischen Mittelwerte als auch die Medianwerte der Bodeningestion in einem sehr engen Bereich von - 28 bis 108 mg/d liegen. Nur bei der Gruppe der bis zu 3 Jahre alten Kinder auf den Campingplätzen wurde auf Grund des intensiven Bodenkontakts beim Spiel ein etwas höherer geometrischer Mittelwert gefunden (150 - 200 mg/d).

Andererseits ist aber auch aus der Tabelle A7 zu entnehmen, dass die berechneten Einzelwerte der Bodeningestion eine extrem große Spannweite aufweisen. Diese ist sowohl auf die großen Unterschiede im Verhalten der Probanden, aber auch auf methodische Schwächen der Studien zurückzuführen. Vor allem die berechneten negativen Ingestionsraten zeigen, dass es im methodischen Bereich der Studien noch erhebliche Fehler gibt.

Calabrese und Stanek [8] unterziehen deshalb ihre AMHERST-Studie einer kritischen Analyse hinsichtlich eventueller Fehler. Sie finden dabei folgende Fehlermöglichkeiten:

positive Fehler können auftreten,

- wenn unmittelbar vor Studienbeginn die Aufnahme einer großen Tracermenge mit der Nahrung stattgefunden hat
- wenn die Aufnahme von Tracern aus anderen Quellen erfolgt, d.h. nicht über die Nahrung und nicht als Bodeningestion (eine Möglichkeit hierfür ist die Aufnahme von Farbpartikeln oder von Druckerfarbe mit hohen Titankonzentrationen)

negative Fehler können auftreten:

- wenn eine Aufnahme mit der Nahrung stattfindet, aber die zugehörige Ausscheidung wegen längerer Transitzeiten nicht mehr in der Studie erfasst wird, d.h. wenn an den letzten Studientagen keine entsprechende Stuhlprobe vorliegt
- wenn bei niedrigen Konzentrationen der Tracer im Stuhl die analytischen Fehler größer sind.

Deshalb sollte die Aufnahme von Tracern mit der Nahrung bei der Berechnung nur dann berücksichtigt werden, wenn eine zugehörige Stuhlprobe existiert.

Außerdem lassen sich die Fehler verringern, wenn die Ingestionsraten für jeden Tag und jeden Probanden einzeln auf der Basis aller Tracer berechnet und dann extreme Ausreißer bei der berechneten Ingestionsrate einzelner Tracer eliminiert werden [29].

Die Ergebnisse der Korrekturen sind in Tabelle 14 dargestellt.

Tabelle 14: Bodeningestion nach Fehlerkorrektur und Neuberechnung der Daten der AMHERST-Studie [mg/d]

Größe	Al	Si	Ti	V	Mn	Y	Zr	Ba
Originalstudie [4]								
Mittel	153	154	218	459	- 294	85	21	32
Median	29	40	55	96	- 261	9	16	- 37
95 %	223	276	1432	1903	788	106	110	283
Korrektur positiver und negativer Fehler [8]								
Mittel	136	133	208	148		97	113	
Berechnung auf der Basis der Tageswerte der Bodeningestion [29]								
Mittel	122	139	271	112	1053	165	23	655
Median	29	32	31	47	121	15	15	65
95 %	254	224	279	398	17400	144	117	518

Wenn man von Mn und Ba absieht, liegen die anderen Tracer nach den Korrekturen in ihren charakteristischen Größen relativ dicht beieinander. Die Abweichungen von Mn und Ba beruhen möglicherweise auf der größeren Bioverfügbarkeit dieser Elemente. Die niedrigeren Werte für Zr können durch den unvollständigen Aufschluss der zirkoniumhaltigen Minerale bedingt sein.

Stanek und Calabrese [29] haben für die AMHERST-Studie auch für die aus den einzelnen Tracern berechneten Tageswerte der Bodeningestion den Mittelwert über alle Tracer gebildet. Für diese Mittelwerte wurden folgende statistische Kenngrößen gefunden:

Mittelwert	179 mg/d
Median	45 mg/d
95 % Perzentil	208 mg/d

### 2.13 Interpretation

Bei den einzelnen Studien wurden folgende Abhängigkeiten hoher Ingestionsraten von Einflussfaktoren bemerkt (die Signifikanz wurde in Klammern angegeben):

Alter 1 - 2 Jahre	WIJNEN
weiblich	WIJNEN
männlich	DAVIS, Ti (p<0,09)
1. oder 2. Kind in der Geburtsreihenfolge	ANACONDA (p=0,18)
Einkommen der Eltern < 15000 \$/a	DAVIS, Si (p=0,018) Ti (p=0,08)
niedrige berufliche Qualifikation der Eltern	ANACONDA (p=0,04)
Kinder mit Windeln auf den Campingplätzen (Kontamination der Stuhlproben von außen? MB) "Mouthing"	WIJNEN (p<0,001)  WIJNEN (p<0,05) DAVIS, Al (p=0,12) Si (p=0,059) Ti (p=0,06)
Zahnpasta verschlucken	DAVIS, Si (p=0,006) Ti (p=0,09)
seltenes Händewaschen vor dem Essen	WIJNEN (p<0,1)
Gesichtwaschen vor dem Essen	DAVIS, Al (p=0,086) Ti (p=0,022)
selten gewischte Fußböden (hier liegt sicher eine Staubingestion vor! MB)	WIJNEN (p<0,05)
Katze als Haustier	ANACONDA (p=0,15)
trockenes Wetter	WIJNEN (p<0,001)

Für andere demographischen Daten oder Verhaltensmerkmale der Kinder konnten keine signifikanten Abhängigkeiten gefunden werden.

Auf Grund der geringen Zahl an Probanden und der großen Unsicherheiten bei der Ermittlung der Ingestionsraten ist eine Korrelation ohnehin sehr problematisch und mit viel Vorsicht zu betrachten.



## 2.14 Bewertung der Studien

### 2.14.1 Verbesserungen

Im Laufe der Zeit wurden am Studiendesign die nachfolgend genannten Verbesserungen vorgenommen.

- größere Probandenzahl
- Probanden als repräsentative Stichprobe ausgewählt
- längere Studiendauer
- möglichst vollständige Erfassung des Stuhl, keine normierten Stuhlmengen
- Einbeziehung der Nahrung in die Untersuchung
- Untersuchung des Einflusses von Hausstaub
- Erweiterung der Tracerpalette
- Berechnung der täglichen Ingestionsraten
- Berücksichtigung von Konzentrationsunterschieden zwischen den Korngrößenklassen des Bodens

### 2.14.2 Mängel

Folgende Mängel sind bei einzelnen oder allen Studien zu bemerken.

Bei CLAUSING und WIJNEN hat möglicherweise eine Überkorrektur durch Kombination von "limiting tracer method" und Korrektur der Nahrungsaufnahme mit Hilfe der Krankenhausgruppe stattgefunden, die zu einer Unterschätzung der Bodeningestion führt.

Bei WIJNEN lagen bei ca. einem Drittel der Kinder in den Kindergärten die berechneten Bodeningestionsraten um die Nachweisgrenzen oder unter den Nachweisgrenzen des Verfahrens von 16 - 32 mg/d.

Die Aufnahme der Tracer mit der Nahrung und deren Streuung wurde bei den Studien BINDER, CLAUSING und WIJNEN nicht ausreichend berücksichtigt.

Die Vollzähligkeit und Vollständigkeit der Stuhl- bzw. Nahrungsproben war zumindest bei den Studien BINDER, CLAUSING und DAVIS nicht gegeben.

Die Wiederfindungsraten der Validierungsstudien AMHERST und ANACONDA mit Erwachsenen sind nur bei einer Bodenaufnahme von 500 mg/d zufriedenstellend. Bei den niedrigeren Ingestionsmengen treten zu große Abweichungen auf. Der Bereich um 100 mg/d und darunter, in dem sich die Mittel- und Medianwerte der Bodeningestion der Kinder bewegen, ist damit nicht ausreichend validiert.

Die Ingestion von Tracern über das Verschlucken von Zahnpasta ist nur bei DAVIS quantitativ abgeschätzt und berücksichtigt. Die Tracerkonzentrationen in der zur Verfügung gestellten Zahnpasta der Studien AMHERST und ANACONDA ist nicht angegeben.

Bei einigen Studien wurde nur der Untersuchungszeitraum in Summe betrachtet und keine täglichen Schwankungen ermittelt. Dafür verringert sich aber der Zuordnungsfehler Aufnahme-Ausscheidung.

Die Studien AMHERST und ANACONDA wurden im September bis Oktober durchgeführt, nicht wie die anderen Studien im Sommer. Daher waren wahrscheinlich keine so günstigen Ingestionsbedingungen gegeben. Die Unterschiede durch den Einfluss des Wetters im Untersuchungszeitraum werden bei den beiden Untersuchungsperioden in der Studie von WIJNEN deutlich.

Die Analysen der einzelnen Kompartimente wurde z.Z. nach verschiedenen Analysenverfahren (einschließlich Probenvorbereitung) durchgeführt, dadurch kann es zu systematischen Abweichungen hinsichtlich der ermittelten Konzentrationen kommen.

In keiner der Studien wurden die Unsicherheiten der Analysenergebnisse und der berechneten Werte angegeben. Die Standardabweichungen beziehen sich nur auf die Mittelwertbildung.

## 2.15 Anregungen für weitere Untersuchungen

Für die Auswahl der Tracer werden folgende Kriterien empfohlen:

- hohe Konzentration im Boden
- geringe Konzentration in der Nahrung
- geringe Konzentration in anderen Quellen für die Aufnahme
- geringe gastrointestinale Aufnahme
- zuverlässiges Analysenverfahren (einschließlich Probenvorbereitung)
- geringe Unterschiede in der Konzentration im Boden zwischen den Spielorten \*)
- geringe Unterschiede in der Konzentration zwischen den Korngrößenfraktionen \*)
- geringe Unterschiede in der Konzentration zwischen Boden und Staub \*)

\*) Diese Unterschiede können aber auch gezielt zur Abschätzung dieser Anteile genutzt werden.

In den bisherigen Studien haben sich folgende Tracer als geeignet erwiesen: Al, Si, Y, AIR.  
Bedingt geeignet sind:

Ti                    möglicherweise noch andere Ingestionsquellen

Zr                    Probleme bei unvollständigem Aufschluss

La, Ce, Nd        unterschiedliche Konzentrationen in den Korngrößenfraktionen möglich

Als weniger geeignet haben sich V, Mn und Ba herausgestellt, weil diese Elemente in stark schwankenden Mengen in der Nahrung enthalten sind und der Umfang einer gastrointestinale Resorption nicht genau abzuschätzen ist.

Bisher ist es noch nicht gelungen den "idealen Tracer" zu finden. Vor allem die Tracermasse, die mit der Nahrung zugeführt wird, und ihre große Variation zwischen den Probanden und im zeitlichen Verlauf beeinflussen das Ergebnis in erheblichem Maße. Die mit der Nahrung aufgenommene Tracermasse liegt im Bereich von 20 bis fast 100 % der in den Ausscheidungen gefundenen Menge. Die Standardabweichung zwischen den Probanden und den Untersuchungstagen beträgt 50 bis über 500 %

Die Ermittlung der ingestierten Korngrößenfraktion spielt auch für die Schadstoffaufnahme eine entscheidende Rolle, da die Schadstoffkonzentrationen in den kleineren Korngrößen meist höher sind (Eintrag über luftgetragenen Staub, Schadstoffe an Partikel mit hoher spezifischer Oberfläche gebunden, Schadstoffe in Mineralen gebunden, die bei Verwitterung leichter zerkleinert werden).

Es sollte eine Massebilanz zwischen Aufnahme und Ausscheidung erstellt werden, die alle wesentlichen Einflussgrößen erfasst. Das sind zumindest: Nahrung (einschließlich Nahrungsergänzungsmitteln und Medikamenten), Stuhl und Hausstaub.

Die Probenahme der Nahrung und des Stuhls sollte möglichst vollständig und kontaminationsfrei sein. Dafür und für die Erfassung der Verhaltensdaten der Kinder im Untersuchungszeitraum ist eine hohe Compliance der Probanden und ihrer Eltern bzw. Betreuer erforderlich. Um das zu erreichen, sind sowohl das Studienteam, als auch die Eltern und Betreuer der Kinder entsprechend auf ihre Aufgaben vorzubereiten und zu motivieren. Dabei sind folgende Hinweise von Buckley und Mitarbeitern [3] hilfreich:

- Daten aus der Beobachtung des Verhaltens der Kinder sollen in die Planung und weitere Verbesserung der Studie, insbesondere der Probenahme einfließen. Dazu sind vor allem auch Beobachtungen aus früheren Studien und aus der Pilotphase zu nutzen.
- Der Studienablauf soll möglichst kindgerecht geplant werden. Die Kinder sollen als Subjekte, nicht als Objekte betrachtet werden. Dementsprechend sind Aufwandsentschädigungen nicht ausschließlich an die Eltern zu richten, sondern auch die Kinder mit zu bedenken.
- Die Verhaltensanweisungen sind möglichst klar und verständlich zu formulieren. Das gilt besonders für solche, die sich direkt an die Kinder richten. Hier sind vor allem Formulierungen zu wählen, die von Kindern auch verstanden werden. Eine klare Unterscheidung von “Gut” und “Schlecht” ist günstig.
- Zur Überprüfung des Studiendesigns auf Durchführbarkeit und mögliche Fehlerquellen sollte an einer kleineren Probandenzahl eine Pilotphase durchgeführt werden. Dazu können aber auch die Ergebnisse früherer Studien dienen.
- Wichtig für den Erfolg ist ein kompetentes und motiviertes Studienteam, das alle Arbeitsschritte bereits vor der Pilotphase trainiert hat. Die Mitarbeiter müssen flexibel und einfühlsam mit den Probanden und Eltern umgehen, das ist vor allem in unerwarteten Situationen notwendig.
- Die Probenahmetechnologien sollen so gewählt werden, dass sie mit möglichst wenig Aufwand von den Probanden bzw. den Eltern durchgeführt werden können.
- Alle Beobachtungen sollen sorgfältig protokolliert werden, weil sie später zur Verbesserung des Studiendesigns bzw. zur Interpretation der Ergebnisse dienen können. Das betrifft z.B. auch die kartenmäßige Darstellung der Spielorte und der Probenahmestellen.
- Die Studienpläne sollen entsprechend des Studienablaufs, der aufgetretenen Probleme und der Beobachtungen weiterentwickelt werden. Alle Änderungen des Plans bzw. punktuelle Abweichungen vom Plan sind entsprechend zu protokollieren.

Die Boden- und Staubproben müssen für die einzelnen Spielorte repräsentativ sein. Es sollte die Variabilität zwischen den Spielorten untersucht werden. Die Masse der Bodenprobe muß eine Untersuchung einzelner Korngrößenfraktionen zulassen. Es ist zu prüfen, ob eine Absaugung der feinen Bodenpartikel von der Bodenoberfläche zu einer repräsentativeren Bodenprobe hinsichtlich des ingestierten Bodens führt [26].

Die Abschätzung der Unsicherheiten der einzelnen Arbeitsschritte und der Ergebnisse ist zur besseren Beurteilung der Zuverlässigkeit erforderlich.

Die Einflussfaktoren, die zu positiven oder negativen Fehlern der Ingestionsraten führen müssen identifiziert, quantifiziert und wenn möglich korrigiert werden.

Die Ermittlung der Veränderung der Ingestionsraten im Laufe des Jahres sind für die genauere Beurteilung des Risikos wünschenswert.

### 3 Abschätzungen der Ingestion von Boden durch andere experimentelle Untersuchungen

Neben der Berechnung der Ingestionsraten über die Massebilanz der Aufnahme und Ausscheidung von Tracern, wie sie im Kapitel 2 dargestellt wurde, gibt es noch andere methodische Ansätze die Ingestion von Boden durch Kinder auf experimentellem Wege quantitativ abzuschätzen.

Lepow und Mitarbeiter [24] haben mit Klebeband von 22 Kinderhänden die Staubpartikel entfernt und ausgewogen. Die mittlere Masse der abgenommenen Partikel war 10 mg. Aus der Annahme, dass Kinder etwa zehn Mal am Tag diesen Staub vollständig aufnehmen, schlossen sie auf eine tägliche Ingestionsmenge von 100 mg.

Von Day und Mitarbeitern [15] wurde untersucht, wieviel Schmutz an einer klebrigen Süßigkeit (Bonbon o.ä.) hängen bleibt. Sie fanden 5 bis 50 mg Staub pro Süßigkeit. Die Aufnahme von 2 bis 20 solcher Süßigkeiten am Tag würde zu einer Ingestion von 10 bis 1000 mg Staub führen.

Duggan und Williams [17] ermittelten, dass beim Verreiben von Staub zwischen Daumen und Zeigefinger etwa 4 mg (2 - 7 mg) auf den beiden Fingern verbleiben. Daraus berechneten sie, dass bei zehnmaligem Ablecken eines Fingers 20 mg Staub aufgenommen werden.

Diese drei Untersuchungen basieren aber auf einfachsten Modellen, so dass sie nicht zu einer qualifizierten Abschätzung der Bodeningestion dienen können.

Ein anderer Ansatz [16] zur Abschätzung der Bodeningestion durch Kinder geht von der Beobachtung aus, dass bei zunehmender Konzentration von Blei im Boden auch die Konzentration von Blei im Blut der dort wohnenden Kinder ansteigt, nämlich um 0,6 µg/dl Blut bei einem Anstieg von 1000 mg/kg Boden. Außerdem ist aus experimentellen Untersuchungen bekannt, dass die Aufnahme von 1 µg Pb/d zu einem Anstieg der Pb-Konzentration im Blut von 0,16 - 0,19 µg/dl führt. Andererseits wurde festgestellt, dass die Bleimenge im Stuhl der Kinder unabhängig von der Bleikonzentration im Boden der Wohnumgebung ist. Deshalb vermutet de Silva, dass nur sehr geringe Mengen an Boden ingestiert werden können, da die Ingestion bei den hohen Bleikonzentrationen im Boden im Stuhl zu entsprechenden Erhöhungen führen müßten. Das luftgetragene Blei kann auf Grund der geringen Menge keine Rolle spielen. Aus diesen Daten wird eine mittlere Bodeningestion von 4 mg/d berechnet.

Bei der Nutzung von Blei als Tracer ist aber unbedingt zu beachten, dass die Bioverfügbarkeit von Blei und damit auch die Möglichkeit der gastrointestinalen Resorption sehr stark von der chemischen Bindungsform des Bleis abhängig ist, d.h. von den Mineralen in denen das Blei gebunden ist. [12], [13]

Außer der bisher betrachteten zufälligen, unabsichtlichen Aufnahme von Boden durch Kinder insbesondere beim Spiel gibt es auch die absichtliche Aufnahme von Boden. Diese absichtliche Aufnahme geschieht, vor allem in den ersten Lebensjahren, zur Erkundung des Geschmacks, der Konsistenz oder Essbarkeit oder aber aus Gewohnheit, die meist auf psychischen Störungen beruht. Dieses Verhalten der absichtlichen Bodenaufnahme wird in der Literatur als Geophagie oder im Englischen als "soil pica" bezeichnet. Die bei der Geophagie aufgenommenen Bodenmengen liegen häufig im Bereich von mehreren Gramm pro Tag. Über die Häufigkeit gibt es je nach der untersuchten Region und der Altersgruppe sehr unterschiedliche Aussagen. Da dieses Phänomen im Rahmen der geplanten Studie nicht gezielt untersucht werden soll, wir hier nur auf die einschlägige Literatur verwiesen. [6], [7], [18], [21], [22], [25], [27]

#### 4 Übersichtsarbeiten

Ruck [26] empfiehlt nach kritischer Sichtung der bis 1994 vorliegenden Untersuchungen folgende Größen als Grundlage für Expositionsrechnungen:

einmalige Bodenaufnahme (10 kg Körpergewicht (KG))	30 g
kurzfristige Bodenaufnahme (über mehrere Monate, 10 kg KG)	1 g/d (150 g/150 d)
langfristige Bodenaufnahme (ca. vom 2. - 7. Lebensjahr, 15 kg KG)	0,5 g/d (900 g/6 a)
lebenslange Bodenaufnahme (15 kg KG)	0,1 g/d (2500 g/70 a)

Die Environmental Protection Agency führt in ihrem Exposure Factors Handbook [19] im Kapitel zu Bodeningestion eine kritische Analyse der bis 1997 erschienen experimentellen Studien und der Nutzung der Daten für Neuberechnungen im Rahmen anderer Studien durch. Abschließend werden folgende Ingestionsraten zur Gefährdungsabschätzung empfohlen:

Kinder	Mittelwert	100 mg/d
	95 %-Perzentil	400 mg/d
Erwachsene	Mittelwert	50 mg/d
Pica	Mittelwert	10 g/d

Einen Überblick über die mit der Ingestion von Boden verbundenen Risikoabschätzungen bei radioaktiv kontaminierten Böden gibt Simon [28]. Neben der unabsichtlichen Ingestion von Boden wird vor allem die Problematik der Geophagie ausführlich dargestellt. Außerdem werden die Einflussfaktoren und die Berechnungsformeln für die Abschätzung der Strahlenexposition bei der Ingestion von radioaktiv kontaminiertem Boden erläutert.

## 5 Schlussfolgerungen

Wenn man die zuverlässigsten Abschätzungen der Bodeningestion der einzelnen Studien zusammenfasst erhält man folgende Bereiche für die Kenngrößen, die recht gut mit den im Exposure Factors Handbook (EFH) [19] der EPA empfohlenen Werten übereinstimmen:

	Studien	EFH
Mittelwert	30 - 180 mg/d	100 mg/d
Median	10 - 50 mg/d	
95 %-Perzentil	140 - 380 mg/d	400 mg/d

Diese Werte gelten allerdings nur für die jeweils untersuchte Region mit ihren speziellen Klima- und Lebensbedingungen und für den untersuchten Zeitabschnitt. Die regionale und jahreszeitliche Variation ist noch nicht erfasst worden. Die Untersuchungszeiträume sind aber immer so gewählt worden, dass eine möglichst große Ingestionsmöglichkeit bestand.

Für den Vergleich mit anderen Gebieten sollte daher der Untersuchungszeitraum ähnlich gewählt werden.

Die Untersuchung sollte einen möglichst langen Zeitraum umfassen, d.h. mindestens eine Woche, um den Zuordnungsfehler zwischen Nahrungsaufnahme und Ausscheidung zu minimieren. Die richtige Zuordnung der Ausscheidungen zur Nahrungsaufnahme für jeden Probanden ist bisher nur näherungsweise möglich, bestimmt aber entscheidend die Richtigkeit der Massebilanz der Tracer.

Zur Verringerung von Fehlern ist die vollständige Erfassung der Stuhlproben im Untersuchungszeitraum erforderlich.

Die zu untersuchenden Bodenproben sollten so gewählt sein, dass sie möglichst gut den von den Kindern ingestierten Boden widerspiegeln. Das betrifft sowohl die repräsentative Auswahl der Probenahmeorte, als auch die Wahl der Korngrößenfraktion.

Um den Einfluss der in der Nahrung enthaltenen Tracermasse auf das Gesamtergebnis gering zu halten, sind die Nahrungsmittel für die Probanden, so weit das möglich ist, gezielt auszuwählen und im erforderlichen Umfang zu untersuchen.

Der Einfluss der Ingestion von Hausstaub und der Ausscheidung der Tracer mit dem Urin sollte zumindest begleitend mit untersucht und hinsichtlich seiner Relevanz beurteilt werden.

Neben den bekannten Tracern Al, Si, Ti, Y, Zr, La, Ce und Nd deren Eignung schon in anderen Studien überprüft wurde, sollte auch versucht werden, weitere geeignete Tracer zu finden. Bei der Auswahl ist vor allem auf die Grundkriterien zu achten:

- hohe Konzentration im Boden
- geringe Konzentration in der Nahrung
- geringe gastrointestinale Aufnahme
- möglichst keine andere Quellen für die Aufnahme
- zuverlässiges Analysenverfahren.

Die Konzentrationsunterschiede im Boden zwischen den Spielorten und den Korngrößenfraktionen sowie zwischen Boden und Staub sollen bei der Auswertung berücksichtigt werden.

## Literatur

- [1] Akinbami FO, Erinoso O, Akinwolere OA: Defaecation Pattern and Intestinal Transit in Nigerian Children.  
*Afr J Med Med Sci* (1995) 24, 337-341
- [2] Binder S, Sokal D, Maughan D: Estimating Soil Ingestion - The Use of Tracer Elements in Estimating the Amount of Soil Ingested by Young Children.  
*Archives of Environmental Health* (1986) 41 (6), 341-345
- [3] Buckley B, Ettinger A, Hore P, Liroy P, Freeman N: Using Observational Information in Planning and Implementation of Field Studies with Children as Subjects.  
*Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology* (2000) 10, 695-702
- [4] Calabrese EJ, Pastides H, Stanek EJ, Gilbert CE, Barnes R, Edwards CA, Kostecki PT, Veneman P: How Much Soil Do Young Children Ingest. An Epidemiologic Study. In: Calabrese EJ, Kostecki PT: *Petroleum Contaminated Soils*. Vol. 2. Chelsea: Lewis Publ., 1989, 363-398
- [5] Calabrese EJ, Barnes R, Stanek EJ, Pastides H, Gilbert CE, Veneman P, Wang X, Laszity A, Kostecki PT: How Much Soil Do Young Children Ingest: An Epidemiologic Study.  
*Regulatory Toxicology and Pharmacology* (1989) 10, 123-137
- [6] Calabrese EJ, Stanek EJ, Gilbert CE: Evidence of Soil-Pica Behaviour and Quantification of Soil Ingested.  
*Human & Experimental Toxicology* (1991) 10 (4), 245-249
- [7] Calabrese EJ, Stanek EJ: Soil Pica - Not a Rare Event.  
*Journal of Environmental Science and Health, Part A - Environmental Science and Engineering* (1993) 28 (2), 373-384
- [8] Calabrese EJ, Stanek EJ: Resolving Intertracer Inconsistencies in Soil Ingestion Estimation.  
*Environmental Health Perspectives* (1995) 103 (5), 454-457
- [9] Calabrese EJ, Stanek EJ, Barnes R: Methodology to Estimate the Amount and Particle Size of Soil Ingested by Children: Implications for Exposure Assessment at Waste Sites.  
*Regulatory Toxicology and Pharmacology* (1996) 24, 264-268
- [10] Calabrese EJ, Stanek EJ, Pekow P, Barnes RM: Soil Ingestion Estimates for Children Residing on a Superfund Site.  
*Ecotoxicology and Environmental Safety* (1997) 36 (3), 258-268
- [11] Clausing P, Brunekreef B, van Wijnen JH: A Method for Estimating Soil Ingestion by Children.  
*International Archives of Occupational and Environmental Health* (1987) 59 (1), 73-82
- [12] Davis A, Drexler JW, Ruby MV, Nicholson A: Micromineralogy of Mine Wastes in Relation to Bioavailability, Butte, Montana.  
*Environmental Science & Technology* (1993) 27 (7), 1415-1425
- [13] Davis A, Ruby MV, Bergstrom PD: Factors Controlling Lead Bioavailability in the Butte Mining District, Montana, USA.  
*Environmental Geochemistry and Health* (1995) 16 (3-4), 147-157
- [14] Davis S, Waller P, Buschborn R, Ballou J, White P: Quantitative Estimates of Soil Ingestion in Normal Children Between the Ages of 2 and 7 Years: Population-Based Estimates Using Aluminum, Silicon, and Titanium as Soil Tracer Elements.  
*Archives of Environmental Health* (1990) 45 (2), 112-122
- [15] Day JP, Hart M, Robinson MS: Lead in Urban Street Dust.  
*Nature* (1975) 253, 343-346
- [16] De Silva PE: How Much Soil do Children Ingest - A New Approach.  
*Applied Occupational and Environmental Hygiene* (1994) 9 (1), 40-43
- [17] Duggan MJ, Williams S: Lead-in-Dust in City Streets.  
*Sci Total Environ* (1977) 7, 91-97

- [18] EPA: Superfund Public Health Evaluation Manual. Washington, EPA/540/1-86/060, 1986
- [19] EPA: Exposure Factors Handbook. Washington: EPA/600/P-95/002Fa, 1997
- [20] Fallingborg J, Christensen LA, Ingeman-Nielsen M, Jacobsen BA, Abildgaard K, Rasmussen HH, Rasmussen SN: Measurement of Gastrointestinal pH and Regional Transit Times in Normal Children. *J Pediatr Gastroenterol Nutr* (1990) 11, 211-214
- [21] Geissler PW, Mwaniki DL, Thiongo F, Friis H: Geophagy Among School Children in Western Kenya. *Tropical Medicine & International Health* (1997) 2 (7), 624-630
- [22] Geissler PW: The Significance of Earth-Eating: Social and Cultural Aspects of Geophagy Among Luo Children. *Africa* (2000) 70 (4), 653-682
- [23] Lemoh JN, Brooke OG: Frequency and Weight of Normal Stools in Infancy. *Arch Dis Child* (1979) (54), 719-720
- [24] Lepow ML et al.: Role of Airborne Lead in Increased Body Burden of Lead in Hartford Children. *Environmental Health Perspectives* (1974) 7, 99-102
- [25] Ruck A: Bodenaufnahme durch Kinder - Abschätzungen und Annahmen. In: Rosenkranz D, Eisele G, Harreß HM (Hrsg.): *Bodenschutz - Ergänzbares Handbuch*. Berlin: Erich Schmidt Verlag, 1990
- [26] Ruck A: Die Beurteilung von Bodenkontaminationen über den Boden-Kind-Pfad - Kenntnisstand, Bewertung und Empfehlungen zur Berücksichtigung der Bodenaufnahme von Kindern. In: Kreysa G, Wiesner J (Hrsg.): *Die Beurteilung von Schwermetallen in Böden in Ballungsgebieten: Arsen, Blei, Cadmium*. Frankfurt/Main: DECHEMA, 1994, S. 253 - 273
- [27] Sheppard SC, Larocque ACL, Rasmussen PE: Geophagy: Who Eats Soil and Where Do Possible Contaminants Go? *Environmental Geology* (1998) 33 (2-3), 109-114
- [28] Simon SL: Soil Ingestion by Humans: A Review of History, Data, and Etiology With Application to Risk Assessment of Radioactively Contaminated Soil. *Health Physics* (1998) 74 (6), 647-672
- [29] Stanek EJ, Calabrese EJ: Daily Estimates of Soil Ingestion in Children. *Environmental Health Perspectives* (1995) 103 (3), 276-285
- [30] Stanek EJ, Calabrese EJ, Barnes RM: Soil Ingestion Estimates for Children in Anaconda Using Trace Element Concentrations in Different Particle Size Fractions. *Human and Ecological Risk Assessment* (1999) 5 (3), 547-558
- [31] Van Wijnen JH, Clausing P, Brunekreef B: Estimated Soil Ingestion by Children. *Environmental Research* (1990) 51 (2), 147-162
- [32] Weaver LT, Steiner H: The Bowel Habit of Young Children. *Arch Dis Child* (1984) 59, 649-652



Tabelle A1: Frisch- und Trockenmassen der Nahrung (DAVIS)

Gruppe	n	Frischmasse [g/d]				Trockenmasse [g/d]			
		Mittel	SD	Min	Max	Mittel	SD	Min	Max
alle	104	918,4	27,5	349	1988	238,7	7,1	59	514
2 - 3 a	26	806	59	454	1156	209	15	124	297
4 - 7 a	78	960	67	349	1988	250	17	59	514
männl.	52	965	40	561	1732	249	10	59	394
weibl.	52	872	37	349	1988	228	10	105	514

Tabelle A2: Konzentrationen bzw. Tagesmengen der Tracer in der Nahrung (DAVIS, AMHERST, ANACONDA)

Größe	Al	Si	Ti	V	Mn	Y	Zr	Ba	La	Ce	Nd
DAVIS, Konzentrationen in der Nahrung [ $\mu\text{g/g}$ ]											
Mittel	30,2	98,6	8,6								
SD	1,9	9,2	1,4								
Median	23,6	84,3	2,7								
Min	3,2	43,8	0,3								
Max	91,6	899,5	70,4								
AMHERST, Menge im der Nahrung pro Tag [ $\mu\text{g/d}$ ]											
Mittel	1870	16600	1010	9,0	1452	1,9	6,7	266			
SD	2520	9300	1900	11,6	793	4,6	18,1	341			
Median	1210	14200	200	5,3	1288	1,1	2,5	224			
Min	100	4600	NWG	NWG	412	NWG	NWG	71			
Max	15600	59100	8120	60,1	4287	36,0	112	2867			
ANACONDA, Menge im der Nahrung pro Tag [ $\mu\text{g/d}$ ]											
Mittel	3200	15400	3000			1,1	14,2		1,8	1,2	1,1
SD	6000	14300	9300			3,0	8,3		10,1	1,5	1,5
Min	NWG	900	NWG			NWG	NWG		NWG	NWG	NWG
Max	54000	156300	105000			54,8	62,5		104,7	18,7	7,2

Tabelle A3: Frisch- und Trockenmassen der Stuhlproben (DAVIS, AMHERST)

Gruppe	n	Frischmasse [g/d]				Trockenmasse [g/d]			
		Mittel	SD	Min	Max	Mittel	SD	Min	Max
DAVIS									
alle	74	55,1	3,5	11,6	225,8	12,7	0,6	4,3	31,2
2 a	7	38,1	6,3	21,3	63,4	8,9	1,1	5,9	12,6
3 a	12	51,7	7,7	19,1	103,2	11,3	1,6	4,3	21,8
4 a	13	52,1	6,7	23,0	117,1	12,5	1,1	8,0	19,5
5 a	16	57,1	4,8	26,4	91,9	12,8	0,8	6,8	17,4
6 a	15	57,8	7,2	11,6	102,3	14,7	1,8	4,8	31,2
7 a	11	66,9	16,4	29,5	225,8	13,9	1,4	6,9	18,8
männl.	37	58,6	3,6	19,1	103,2	14,3	0,9	4,3	31,2
weibl.	37	51,7	6,0	11,6	225,8	11,1	0,6	4,8	19,2
AMHERST									
alle	64					12,6		1,7	37,4
männl.	30					12,9		3,8	37,4
weibl.	34					12,4		1,7	33,1

Tabelle A4: Konzentrationen bzw. Tagesmengen der Tracer im Stuhl (BINDER, CLAUSING, DAVIS, AMHERST, ANACONDA)

Größe	Al	Si	Ti	V	Mn	Y	Zr	Ba	AIR
BINDER, Konzentrationen im Stuhl [ $\mu\text{g/g}$ ]									
Mittel	830	3650	340						
SD	820	3450	540						
Median	530	2560	120						
Min	110	660	< 10						
Max	5100	14880	2830						
CLAUSING, Kindergartenkinder, Konzentrationen im Stuhl [ $\mu\text{g/g}$ ]									
Median	150		12						10400
Min	37		3						4400
Max	1580		575						34400
CLAUSING, Krankenhauskinder, Konzentrationen im Stuhl [ $\mu\text{g/g}$ ]									
Median	92		89						10400
Min	41		1						4400
Max	151		325						34400
DAVIS, Konzentrationen im Stuhl [ $\mu\text{g/g}$ ]									
Mittel	734	3355	293						
SD	57	288	39						
Median	582	2500	151						
Min	102	896	10						
Max	3700	20900	2140						
AMHERST, Konzentration im Stuhl [ $\mu\text{g/g}$ ]									
Mittel	830	3650	340	2,9	113	0,21	0,75	21,5	
Median	530	2560	120	1,4	93	0,13	0,64	18,3	
Min	110	660	< 10	0,2	3,7	0,03	0,04	2,4	
Max	5100	14900	2830	58	403	4,2	5,9	97	
AMHERST, Menge im Stuhl [ $\mu\text{g/d}$ ]									
Mittel	8900	67500	1610	38	1220	3,7	10,1	265	
Median	2800	24600	580	12,6	975	1,12	5,7	200	

Tabelle A5: Konzentrationen der Tracer im Boden (alle Studien)

Größe	Al	Si	Ti	V	Mn	Y	Zr	Ba	La	Ce	Nd	AIR
BINDER, Konzentrationen im Boden (59 Proben) [ $\mu\text{g/g}$ ]												
Mittel	66600	302500	2980									
SD	9200	18300	420									
Median	67000	302200	2930									
Min	45100	243100	2380									
Max	111400	332200	4010									
CLAUSING, Konzentrationen im Boden (9 Proben) [ $\mu\text{g/g}$ ]												
Mittel	17000		550									950000
SD	1170		118									11000
Min	15000		380									939000
Max	18300		690									980000
WIJNEN, Kindergarten, Konzentrationen im Boden (20 Proben) [ $\mu\text{g/g}$ ]												
Mittel	11800		343									936000
SD	2100		90									19000
WIJNEN, Campingplatz 1, Konzentrationen im Boden (9 Proben) [ $\mu\text{g/g}$ ]												
Mittel	20600		883									921000
SD	6600		454									35000
WIJNEN, Campingplatz 2, Konzentrationen im Boden (9 Proben) [ $\mu\text{g/g}$ ]												
Mittel	17300		636									918000
SD	7100		381									41000
WIJNEN, Campingplatz 3, Konzentrationen im Boden (2 Proben) [ $\mu\text{g/g}$ ]												
Mittel	12500		238									937000
SD	850		42									18000
DAVIS, Konzentrationen im Boden (101 Proben) [ $\mu\text{g/g}$ ]												
Mittel	66000	289000	5800									
SD	400	1600	100									
Median	66000	292000	5800									
Min	51000	250000	3100									
Max	76000	319000	8500									

Größe	Al	Si	Ti	V	Mn	Y	Zr	Ba	La	Ce	Nd	AIR
AMHERST, Konzentration im Boden (62 Proben) [µg/g]												
Mittel	54000	307000	3410	86,6	731	24,0	196	356				
SD	7800	42000	800	111	187	3,7	82	124				
VK	14,4 %	13,7 %	22,5 %	128 %	25,6 %	15,4 %	41,8 %	34,8 %				
Median	55100	316000	3430	64,6	729	23,5	187	331				
Min	14300	91000	1300	23	249	15,8	55	90				
Max	76600	367000	5200	706	1209	32,6	451	705				
ANACONDA, Konzentration im Boden, Fraktion < 2 mm (64 Proben) [µg/g]												
Mittel	50500	234000	1900			15,7	140		12,6	21,0	9,7	
SD	12200	52000	400			3,3	42		4,1	6,5	2,5	
VK	21,4 %	22,4 %	22,8 %			21,2 %	29,9 %		32,5 %	30,8 %	25,9 %	
Min	19100	104000	800			9,7	32		4,8	7,9	3,9	
Max	75600	367000	3300			25,0	244		25,2	39,6	15,9	
ANACONDA, Konzentration im Boden, Fraktion < 250 µm (62 Proben) [µg/g]												
Mittel	48400	203800	2100			15,8	136		26,2	49,8	21,2	
SD	11800	47000	500			4,2	50		9,8	19,6	7,4	
VK	24,4 %	23,1 %	23,8 %			26,6 %	36,8 %		37,4 %	39,4 %	34,9 %	
ANACONDA, Konzentration im Boden, Fraktion 0 - 2 mm (49 Proben) [µg/g]												
Mittel	51600	238000	1900			15,8	140		12,9	21,4	9,7	
SD	13300	56400	430			3,4	41		4,4	6,8	2,6	
VK	25,8 %	23,7 %	22,9 %			21,5 %	29,2 %		33,8 %	32,0 %	26,8 %	
ANACONDA, Konzentration im Boden, Fraktion 100 - 250 µm (49 Proben) [µg/g]												
Mittel	54200	245000	2120			18,7	178		29,7	55,3	23,2	
SD	13000	39900	480			5,15	94		10,7	20,6	9,1	
VK	23,9 %	16,3 %	22,7 %			27,0 %	52,8 %		36,1 %	37,3 %	39,4 %	
ANACONDA, Konzentration im Boden, Fraktion 53 - 100 µm (49 Proben) [µg/g]												
Mittel	53200	243000	2360			21,7	309		30,3	57,4	24,1	
SD	11100	33200	590			6,04	245		10,8	21,0	7,9	
VK	20,9 %	13,7 %	25,1 %			27,8 %	79,4 %		35,8 %	36,6 %	32,8 %	

Tabelle A6: Konzentrationen in den Staubproben (DAVIS, AMHERST, ANACONDA)

Größe	Al	Si	Ti	V	Mn	Y	Zr	Ba	La	Ce	Nd
DAVIS, Konzentrationen in den gezielt entnommenen Staubproben (101 Proben) [ $\mu\text{g/g}$ ]											
Mittel	19000	79000	3600								
DAVIS, Konzentrationen in den Proben aus den Staubsaugerbeuteln (101 Proben) [ $\mu\text{g/g}$ ]											
Mittel	31000	137000	4300								
AMHERST, Konzentration im Staub (62 Proben) [ $\mu\text{g/g}$ ]											
Mittel	47200	234000	5760	59,6	690	17,2	228	624			
SD	15100	92000	5800	27	401	4,9	247	942			
VK	32,0 %	39,3 %	101 %	45,0 %	58,0 %	28,5 %	108 %	151 %			
Median	48900	260000	4230	54,4	628	16,5	168	503			
Min	NWG	36000	2000	28	NWG	8,4	51	32			
Max	68800	389000	45000	203	1908	40,4	1865	7820			
ANACONDA, Konzentration im Staub (64 Proben) [ $\mu\text{g/d}$ ]											
Mittel	22200	99400	1900			4,5	116		4,9	11,1	4,8
SD	11100	49700	1200			7,8	71		3,4	15,0	5,9
VK	50,2 %	50,0 %	60,7 %			172 %	61,3 %		69,6 %	134 %	124 %
Min	1900	8800	200			0,5	18,7		0,9	1,8	0,7
Max	63400	214200	7500			62,2	401		17,3	121,3	47,6

Tabelle A7: Berechnete Bodeningestionen (alle Studien), Angaben, wenn nicht anders vermerkt, in mg/d

Gruppe	Methode	n	Mittel	SD	VK [%]	Median	GM	GSD	90 %	95 %	Min	Max
BINDER												
	Al	59	181	203	112	121				584	25	1324
	Si		184	175	95	136				578	31	799
	Ti		1834	3091	169	618				9590	4	17100
	LTM		108	121	112	88				386	4	708
CLAUSING												
Kindergarten	Al	18	232	263	113	92					23	979
	Ti		1430	3010	210	269					64	11620
	AIR		129	69	53	108					48	362
	LTM		105	67	64	82	90				23	362
Krankenhaus	Al	6	56	24	43	57					26	94
	Ti		2290	2460	107	1790					28	6570
	LTM		49	22	45	47	45				26	94
Korrektur mit Krankenhaus		18	56			35	45					
WIJNEN, ohne Korrektur mit der Krankenhausgruppe												
Kindergarten Juni/Juli	LTM	292	232			124	145	2,24				
Kindergarten Aug./Sept.	LTM	187	106			90	92	1,69				
Kindergarten gesamt	LTM	166					111	1,60				
Campingplätze	LTM	78	213			160	174	1,73				
Krankenhaus	LTM	15	93	46	49	110	74	2,34				149
WIJNEN, mit Korrektur mit 95 %-Intervall der Krankenhausgruppe (70-120 mg/d) , Berechnung nach LTM												
Kindergarten Juni/Juli	1 - 2 a	108					33 - 88		190			
	≥ 3 a	115					12 - 62					
Kindergarten Aug./Sept.	1 - 2 a	104					0 - 19		300			
	≥ 3 a	70					0 - 29					
Campingplätze	≤ 3 a	20					150 - 200		300			
	> 3 a	51					31 - 81					



Gruppe	Methode	n	Mittel	SD	VK [%]	Median	GM	GSD	90 %	95 %	Min	Max
DAVIS												
	Al	101	38,9	14,4	50	25,3					279	904
	Si		82,4	12,2	15	59,4					- 404	535
	Ti		246	120	49	81,3					- 5820	6180
Korrektur Zahnpasta	Al	101	37,1	14,5	39							
	Si		37,0	12,3	33							
	Ti		245	120	49							
Ingestion von Boden und Staub	Al	101	64,5			51,8						
	Si		160			112,4						
	Ti		268			116,6						
AMHERST, ohne Berücksichtigung der Nahrung												
	Al	64	187	850		59			190	243	1	6860
	Si		211	692		81			310	402	6	5580
	Ti		577	1220		192			1365	2350	10	6910
	V		587	1056		194			1493	2220	5	6020
	Mn		1807	1412		1329			3390	3930	29	9240
	Y		175	864		45			148	167	15	6850
	Zr		63	178		31			87	135	1	1412
	Ba		785	937		593			1265	1600	50	7220
AMHERST, mit Berücksichtigung der Nahrung												
	Al	64	153	852		29			138	223	- 75	6840
	Si		154	693		40			219	276	- 53	5550
	Ti		218	1150		55			702	1432	- 3070	6710
	V		459	1037		96			1366	1903	- 650	5680
	Mn		- 294	1266		- 261			595	788	- 3300	7280
	Y		85	890		9			91	106	- 1733	6740
	Zr		21	209		16			67	110	- 597	1391
	Ba		32	1002		- 37			228	283	- 3610	6770

Gruppe	Methode	n	Mittel	SD	VK [%]	Median	GM	GSD	90 %	95 %	Min	Max
ANACONDA, mit Berücksichtigung der Nahrung, auf der Basis der Bodenfraktion < 2 mm												
	Al	64	2,7	95,8		- 3,3			66,6	94,3	- 203	461
	Si		- 16,5	57,3		- 18,2			36,9	68,9	- 129	262
	Ti		- 544	2510		11,9			1238	1378	- 15700	4070
	Y		42,3	113,7		32,1			201	243	- 441	299
	Zr		- 19,6	92,5		- 30,8			94,6	123	- 298	376
	La		8,6	1377		84,5			461	639	- 10700	1090
	Ce		117	186		44,9			425	456	- 220	862
	Nd		270	305		220			813	875	- 387	994
ANACONDA, Auswertung nach "best tracer method" (BTM)												
	1. Rang	64	65,5	120,3		20,1			224	282	- 53,4	610
	2. Rang		33,2	144,8		1,5			120	262	- 116	928
	3. Rang		31,2	200		- 18,8			155	376	- 170	1293
	4. Rang		- 34,6	79,7		- 29,3			74,8	117	- 298	139
	Median 1. - 4. Rang		6,8	74,5		- 2,4			73,1	160	- 101	380
ANACONDA, mit Berücksichtigung der Nahrung, auf der Basis der Bodenfraktion < 250 µm												
	Al	62	1	90		- 3			52	97	- 201	403
	Si		- 19	64		- 22			39	87	- 147	288
	Ti		- 590	2606		12			838	1246	- 17200	3030
	Y		39	116		28			209	220	- 493	270
	Zr		- 17	97		- 28			121	151	- 189	394
	La		22	456		39			233	274	- 3420	464
	Ce		43	72		19			135	158	- 109	323
	Nd		117	131		99			310	389	- 114	467

Anlage 2: Übersicht über die Lebensmittel, die den Probanden zur Verfügung gestellt wurden

Probe Nr.	Produkt	Hersteller / Marke	Bezeichnung	Masse [g]	Vol. [ml]
L 1	Zahnpasta	Schwarzkopf & Henkel	Theramed junior		50
L 2	Zahnpasta	Dental Kosmetik GmbH	Putzi		50
L 3	Zahnpasta	Blend-a-med	Blendi		50
L 4	Zahnpasta	Lever Faberge	Signal Kids Zahngel mit Fluor		50
L 5	Zahnpasta	GABA GmbH	Elmex Kinder-Zahnpasta		50
L 6	Zahnpasta	Schwarzkopf & Henkel	Thera-med junior 2 in 1		75
L 7	Zahnpasta	Dental Kosmetik GmbH	Kauboy happyfrucht Zahngel		100
L 11	Milchbrei	Hipp	Bio-Milchbrei Apfel-Banane-Zwieback 4. Mon.	200	
L 12	Milchbrei	Hipp	Bio-Milchbrei Früchte 6. Mon.	200	
L 13	Getreidebrei	Hipp	Bio-Getreide-Brei Bircher-Müesli 6. Mon.	175	
L 14	Grießbrei	Hipp	Bio-Grießbrei	200	
L 15	Hypoallergen Nahrung	Hipp	HA 2 (5 Messlöffel)		
L 16	Obstbrei	Hipp	Obstbrei Williams-Christ-Birne 4. Mon.	190	
L 17	Obstbrei	Hipp	Obstbrei Bio-Banane 4. Mon.	190	
L 18	Obstbrei	Hipp	Obstbrei Baby-Apfel 4. Mon.	190	
L 19	Vollkorn-Obstbrei	Hipp	Vollkorn-Früchte-Brei Bio-Banane 6. Mon.	190	
L 20	Vollkorn-Obstbrei	Hipp	Vollkorn-Früchte-Brei Feines Bircher-Müesli 6. Mon.	190	
L 21	Vollkorn-Obstbrei	Hipp	Babys Lieblingsfrüchte Feines Bircher-Müesli 6. Mon.	250	
L 22	Vollkorn-Obstbrei	Hipp	Babys Lieblingsfrüchte Feiner Obst-Brei 6. Mon.	190	
L 23	Vollkorn-Obstbrei	Hipp	Frucht & Getreide Feiner Obst-Brei 6. Mon.	250	
L 24	Gemüsebrei	Hipp	Penne mit Tomaten und Zucchini 4. Mon.	190	
L 25	Gemüsebrei	Hipp	Schinkennudeln mit Gemüse 4. Mon.	190	
L 26	Gemüsebrei	Hipp	Reis-Gemüsecreme mit Bio-Hühnchen 4. Mon.	190	
L 27	Gemüsebrei	Hipp	Feiner Mais mit Kartoffelpüree und Bio-Pute 4. Mon.	190	
L 28	Gemüsebrei	Hipp	Gemüse-Lasagne 8. Mon.	220	
L 29	Gemüsebrei	Hipp	Feiner Reis mit Karotten und Bio-Pute 8. Mon.	220	
L 30	Gemüsebrei	Hipp	Bunter Kartoffel-Auflauf 8. Mon.	220	
L 31	Gemüsebrei	Hipp	Karotten und Kartoffeln mit Bio-Rindfleisch 12. Mon.	250	
L 32	Gemüsebrei	Hipp	Spaghetti in Sauce Bolognese 12. Mon.	250	
L 33	Gemüsebrei	Hipp	Rigatoni Napoli 12. Mon.	250	
L 34	Gemüsebrei	Hipp	Gemüse und Nudeln mit Bio-Hühnchen 12. Mon.	250	
L 35	Zwieback	milupa	Kinder-Zwieback 6. Mon.	200	
L 36	Keks	Spreeback	Cottbuser Keks	200	
L 37	Keks	Alete	Kinderkeks 6. Mon.	200	
L 38	Brot	Peter & Paul	Malzkornbrot	500	
L 39	Toastbrot	Golden Toast	Buttertoast	500	
L 40	Toastbrot	Golden Toast	Vollkorntoast	500	
L 41	Cornflakes	Kellogs	Smacks	500	
L 42	Cornflakes	Kellogs	Toppas Vollkorn	375	
L 43	Cornflakes	Kellogs	Chocos	500	
L 44	Eierteigwaren	Arrighi	Fussilini	500	
L 45	Kartoffelpüree	Maggi	Kartoffelpüree flockenlocker		
L 46	Pommes frites	McCain	Home Fries Backofen Pommes frites	750	
L 47	Kartoffelpuffer	Bernhard Werner	Werner's Kartoffelpuffer		
L 48	Reis	Wurzener	Langkorn-Reis	4 x 125	
L 49	Milchreis	Dr. Oetker	Milchreis Zimt-Apfel	125	
L 50	Eierkuchen	komet	Eierkuchmehl	125	
L 51	Kuchen	Bäckerei Röthig	Mohnkuchen mit Schecke		
L 52	Kuchen	Bäckerei Röthig	Mohnkuchen mit Streusel		
L 53	Pizza	Wagner	Steinofenpizza Salami	320	
L 54	Fischstäbchen	Iglo	15 Stück	450	
L 55	Hähnchenschnitzel	Iglo	Lustiger Bauernhof	300	
L 56	Bratwurst	Eichkamp			
L 57	Würstchen	Halberstädter		550	

Anlage 2: Übersicht über die Lebensmittel, die den Probanden zur Verfügung gestellt wurden

Probe Nr.	Produkt	Hersteller / Marke	Bezeichnung	Masse [g]	Vol. [ml]
L 58	Leberwurst	Eberswalder	Leberwurst fein	125	
L 59	Salami	Könecke	Putensalami	300	
L 60	Lyoner	Sickendiek		200	
L 61	Kochschinken	Westfalia	Delikatess Hinterkochschinken	200	
L 62	Eier	Ost-Ei EZG	Braune Eier		
L 63	Schnittkäse	Heinrichsthaler	Butterkäse	250	
L 64	Schmelzkäse	Milkana	Käse-Vielfalt	8 x 25	
L 65	Frischkäse	Mireé	Mireé mit franz. Kräutern	150	
L 66	Fruchtjoghurt	Ehrmann	Almighurt Erdbeere	150	
L 67	Fruchtjoghurt	Ehrmann	Almighurt Himbeere	150	
L 68	Fruchtjoghurt	Ehrmann	Almighurt Banane		
L 69	Fruchtquark	Danone	Fruchtzwerge classic	6 x 50	
L 70	Fruchtquark	Danone	Fruchtzwerge weniger süß	6 x 50	
L 71	Fruchtquark	Danone	Fruchtzwerge Waldbeeren	6 x 50	
L 72	Fruchtquark	Danone	Fruchtzwerge 6. Monat	6 x 50	
L 73	Pudding	Landliebe	Sahne-Pudding Vanille	125	
L 74	Pudding	Landliebe	Sahne-Pudding Kakao	125	
L 75	Eis	Pegi	Sandwich		8 x 90
L 76	Sauce	Knorr	Knorr Fix für Spaghetti Napoli	50	
L 77	Sauce	Knorr	Spaghetteria Sahne Sauce Carbonara		
L 78	Ketchup	Develey	Bautz'ner Tomaten Ketchup		450
L 79	Sauerkraut	Schweizer Sauerkonserven	Thüringer Landgarten	680	
L 80	Erbsen	Récamier	Junge Erbsen fein	560	
L 81	Gurke				
L 82	Tomate				
L 83	Paprika		Holland Paprika Mix		
L 84	Möhre				
L 85	Apfel	Brasilien	Royal Gala 60 - 70, geschält und entkernt	8 x 125	
L 86	Banane	Chiquita			
L 87	Birne	Südafrika	Forelle		
L 88	Nektarine				
L 89	Erdbeere			500	
L 90	Kompott	Spreewaldkonserve Golßen	Lausitzer Gold Pflaumen	680	
L 91	Kompott	Rio Bravo	Pfirsiche	820	
L 92	Kompott	Spreewaldkonserve Golßen	Lausitzer Gold Apfelmus		
L 93	Marmelade	Mühlhäuser	Erdbeer-Konfitüre	225	
L 94	Nuß-Nougatcreme	Nutella		400	
L 95	Nußnougatwaffel	Dickmann	Knoppers	8 x 25	
L 96	Schokolade	Ferrero	Kinder-Schokolade	3 x 12,5	
L 97	Schokolade	Ferrero	Kinder-Überraschung		
L 98	Gummibären	Haribo	Goldbären		
L 99	Bonbons	Storck	Campino Erdbeer-Sahne	125	
L 100	Kartoffelsnack	Wolf	Pom-Bär	75	
L 101	PE-Beutel	quickpack	Mülleimer-Beutel 60 l für Schwingdeckel-Eimer		
L 102	Gemüsebrei	Hipp	Karottengemüse mit Bio-Pute 4. Mon.	190	
L 103	Milchbrei	Hipp	Bio-Milchbrei Hafer-Apfel-Vanille	275	
L 104	Dinkel	Alnatura	Dinkel-Brei		
L 105	Tabletten	Novartis Consumer Health GmbH	Zymafleur D 500		
L 106	Obstbrei	Hipp	Apfel mit Reis	190	
L 107	Tabletten	Ingelheim Pharma KG	Mucosolvan Filmtabletten		
L 108	Filinchen	Gutena Apolda	Filinchen	75	
L 109	Reiswaffeln	Gut & Billig		100	
L 110	Tabletten	Novartis Consumer Health GmbH	Zymafleur 1 mg		








## Legende zur Anlage 4

H	Zeitdifferenz zwischen dem bilanzierten Ereignis und dem Startpunkt (Startpunkt = 1. Studientag 0 Uhr)
Ort	Spielort (Angabe mit Nr. des beprobten Spielorts oder x für sonstige Orte)
LM	Lebensmittel
Dupl.	Nahrungsduplikat
FM	Frischmasse
AM	Aschemasse
ges.	gesamt
fert.	verzehrfertig zubereitet
roh	im Originalzustand (nicht zubereitet)
verz.	verzehrt

### Farbcodierung

	Kopfzeile für Nahrungsduplikate
	Kopfzeile für Lebensmittel
	nicht den Stuhlproben zuzuordnende Nahrung (bei der Bilanzierung in der Zeile "Nahrung (von ... bis ...)" nicht berücksichtigt)

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35		Stuhlgang												Spiel im Freien			
Datum	Uhr	H	Probe	ausgeschiedene Elementmasse [µg] (verlustkorrigiert)										H	Ort	Zeit [h]	
				Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd			
20.06.02	0																
20.06.02	9																
20.06.02	9																
20.06.02	9																
20.06.02	9																
20.06.02	11														11	1	1,00
20.06.02	13																
20.06.02	13																
20.06.02	15																
20.06.02	18																
20.06.02	20																
20.06.02	20																
20.06.02	20																
20.06.02	20																
20.06.02	20	20															
<b>20.06.02</b>	<b>Summe</b>			0	0	0,00	0	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00			
21.06.02	9																
21.06.02	9																
21.06.02	9																
21.06.02	10	34	35 S 34	2.176	55.639	0,26	341	0,71	0,00	12,75	0,00	1,15	2,41	0,76			
21.06.02	12														36	1	0,75
21.06.02	13																
21.06.02	13																
21.06.02	17																
21.06.02	17																
21.06.02	19														43	1	0,25
21.06.02	19																
21.06.02	19																
21.06.02	19																
21.06.02	20	44	35 S 44	975	8.603	0,13	111	0,36	0,00	1,96	0,00	0,55	1,08	0,34			
<b>21.06.02</b>	<b>Summe</b>			3.152	64.242	0,38	452	1,07	0,00	14,71	0,00	1,70	3,49	1,10			
22.06.02	9																
22.06.02	9																
22.06.02	9																
22.06.02	9																
22.06.02	11														59	1	1,00
22.06.02	13																



Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35		Stuhlgang													Spiel im Freien		
Datum	Uhr	H	Probe	ausgeschiedene Elementmasse [µg] (verlustkorrigiert)											H	Ort	Zeit [h]
				Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd			
22.06.02	13																
22.06.02	13																
22.06.02	13	61	35 S 61	732	13.431	0,04	16	0,19	0,00	1,18	0,00	0,39	0,88	0,27			
22.06.02	18																
22.06.02	18														66	1	0,75
22.06.02	19																
22.06.02	19																
22.06.02	19																
22.06.02	19																
22.06.02	19																
<b>22.06.02 Summe</b>				732	13.431	0,04	16	0,19	0,00	1,18	0,00	0,39	0,88	0,27			
23.06.02	8																
23.06.02	8																
23.06.02	8																
23.06.02	8																
23.06.02	9														81	1	1,25
23.06.02	12																
23.06.02	12																
23.06.02	15																
23.06.02	15																
23.06.02	15	87	35 S 87	748	8.801	0,03	88	0,26	0,00	1,63	0,00	0,38	0,73	0,21			
23.06.02	16														88 x		3,00
23.06.02	17																
23.06.02	18																
23.06.02	18																
23.06.02	18																
23.06.02	18																
<b>23.06.02 Summe</b>				748	8.801	0,03	88	0,26	0,00	1,63	0,00	0,38	0,73	0,21			
24.06.02	9																
24.06.02	9																
24.06.02	9																
24.06.02	9																
24.06.02	9																
24.06.02	11																
24.06.02	12	108	35 S 108	879	7.018	0,08	98	0,33	0,00	3,04	0,00	0,57	1,04	0,31			
24.06.02	13																

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35		Stuhlgang													Spiel im Freien		
Datum	Uhr	H	Probe	ausgeschiedene Elementmasse [µg] (verlustkorrigiert)											H	Ort	Zeit [h]
				Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd			
24.06.02	13																
24.06.02	16																
24.06.02	16																
24.06.02	17														113	1	1,50
24.06.02	18																
24.06.02	18																
24.06.02	18																
24.06.02	18																
<b>24.06.02</b>	<b>Summe</b>			879	7.018	0,08	98	0,33	0,00	3,04	0,00	0,57	1,04	0,31			
25.06.02	9																
25.06.02	9																
25.06.02	9																
25.06.02	9														129	x	2,75
25.06.02	13																
25.06.02	13																
25.06.02	13	133	35 S 133	1.129	12.445	0,14	130	0,36	0,00	3,92	0,00	0,64	1,36	0,45			
25.06.02	16																
25.06.02	16														136	1	1,75
25.06.02	17																
25.06.02	18																
25.06.02	18																
25.06.02	18																
25.06.02	18																
25.06.02	18																
25.06.02	20	140	35 S 140	392	4.344	0,05	36	0,08	0,00	1,04	0,00	0,24	0,47	0,16			
<b>25.06.02</b>	<b>Summe</b>			1.520	16.789	0,19	166	0,44	0,00	4,96	0,00	0,88	1,83	0,60			
26.06.02	8																
26.06.02	8																
26.06.02	8																
26.06.02	9																
26.06.02	13																
26.06.02	13																
26.06.02	13																
26.06.02	13	157	35 S 157	2.241	20.651	0,30	295	0,58	0,00	8,59	0,00	1,17	2,50	0,79			
26.06.02	16																
26.06.02	16														160	1	2,00

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35		Stuhlgang												Spiel im Freien			
Datum	Uhr	H	Probe	ausgeschiedene Elementmasse [µg] (verlustkorrigiert)										H	Ort	Zeit [h]	
				Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd			
26.06.02	19																
26.06.02	19																
26.06.02	20																
26.06.02	20																
26.06.02	20																
26.06.02	20																
26.06.02	20																
<b>26.06.02 Summe</b>				2.241	20.651	0,30	295	0,58	0,00	8,59	0,00	1,17	2,50	0,79			
27.06.02	9																
27.06.02	9																
27.06.02	9																
27.06.02	13																
27.06.02	13																
27.06.02	13	181	35 S 181	550	9.620	0,02	95	0,20	0,00	1,94	0,00	0,30	0,58	0,18			
27.06.02	16														184	1	2,00
27.06.02	18																
27.06.02	18																
27.06.02	18																
27.06.02	18																
<b>27.06.02 Summe</b>				550	9.620	0,02	95	0,20	0,00	1,94	0,00	0,30	0,58	0,18			
28.06.02	8																
28.06.02	8																
28.06.02	8																
28.06.02	8																
28.06.02	9	201	35 S 201	989	14.524	0,04	141	0,29	0,00	3,10	0,00	0,46	0,89	0,28			
28.06.02	10																
28.06.02	13																
28.06.02	13																
28.06.02	13																
28.06.02	16																
28.06.02	16																
28.06.02	17																
28.06.02	17	209	35 S 209	1.145	23.867	0,04	136	0,32	0,00	3,43	0,00	0,49	0,98	0,31			
28.06.02	17														209	1	4,50
28.06.02	19																
28.06.02	19																

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35		Stuhlgang												Spiel im Freien			
Datum	Uhr	H	Probe	ausgeschiedene Elementmasse [µg] (verlustkorrigiert)										H	Ort	Zeit [h]	
				Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd			
28.06.02	19																
28.06.02	19																
28.06.02	19																
28.06.02	19																
<b>28.06.02</b>	<b>Summe</b>			2.134	38.391	0,08	277	0,61	0,00	6,52	0,00	0,95	1,87	0,59			
29.06.02	10																
29.06.02	10																
29.06.02	10																
29.06.02	10																
29.06.02	11	227	35 S 227	1.294	13.082	0,17	221	0,45	0,00	5,88	0,00	0,76	1,64	0,50			
29.06.02	13																
29.06.02	13																
29.06.02	13																
29.06.02	16																
29.06.02	16																
29.06.02	21																
29.06.02	21																
<b>29.06.02</b>	<b>Summe</b>			1.294	13.082	0,17	221	0,45	0,00	5,88	0,00	0,76	1,64	0,50			
30.06.02	9																
30.06.02	9																
30.06.02	9																
30.06.02	9																
30.06.02	10	250	35 S 250	1.369	17.036	0,09	189	0,43	0,00	4,26	0,00	0,71	1,52	0,45			
30.06.02	12																
30.06.02	12																
30.06.02	13	253	35 S 253	1.007	8.576	0,11	124	0,28	0,00	7,84	0,00	0,58	1,28	0,38			
30.06.02	15																
30.06.02	15																
30.06.02	16														256	2	1,75
30.06.02	18																
<b>30.06.02</b>	<b>Summe</b>			2.376	25.612	0,20	313	0,71	0,00	12,10	0,00	1,29	2,80	0,83			
01.07.02	9																
01.07.02	9	273	35 S 273	819	11.119	0,09	103	0,30	0,00	3,09	0,00	0,43	0,86	0,23			
01.07.02	12																
01.07.02	19																
<b>01.07.02</b>	<b>Summe</b>			819	11.119	0,09	103	0,30	0,00	3,09	0,00	0,43	0,86	0,23			

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

<b>Proband:</b>	<b>35</b>																			
		<b>Stuhlgang</b>													<b>Spiel im Freien</b>					
Datum	Uhr	H	Probe	ausgeschiedene Elementmasse [µg] (verlustkorrigiert)																
				Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd	H	Ort	Zeit [h]			
<b>Gesamtergebnis</b>				16.445	228.757	1,56	2.125	5,15	0,00	63,66	0,00	8,82	18,23	5,62						
<b>Nahrung (0 - 255)</b>																				

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35																				
		Nahrungsaufnahme																		
		Duplikat		FM verz.	FM Dupl.	Probe	AM Dupl.	Konzentration im der Aschemasse des Nahrungsduplikats [µg/gAM]												
Datum	Uhr	H	LM	Probe	ges. roh	ges. fert.	verz. fert.	Konzentration im der Frischmasse des Lebensmittels [µg/gFM]												
					[g]	[g]	[g]	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	Ba	La	Ce	Nd	
20.06.02	0																			
20.06.02	9	9		39	18,00	18,00	18,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
20.06.02	9	9		94	3,00	3,00	3,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	0,00	
20.06.02	9	9		51	10,00	10,00	10,0	18,54	181,15	0,00	1,40	0,00	0,00	0,02	0,00	1,42	0,01	0,01	0,01	
20.06.02	9	9		41	10,00	10,00	10,0	7,98	12,99	0,01	0,61	0,01	0,02	0,01	0,00	2,76	0,01	0,02	0,01	
20.06.02	11																			
20.06.02	13	13		85	28,00	28,00	28,0	0,14	0,93	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,60	0,00	0,00	0,00	
20.06.02	13	13		41	10,00	10,00	10,0	7,98	12,99	0,01	0,61	0,01	0,02	0,01	0,00	2,76	0,01	0,02	0,01	
20.06.02	15	15		96	25,00	25,00	25,0	2,30	103,17	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	0,00	
20.06.02	18	18		98	34,00	34,00	34,0	0,21	3,50	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	
20.06.02	20	20		98	9,00	9,00	9,0	0,21	3,50	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	
20.06.02	20	20		39	7,00	7,00	7,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
20.06.02	20	20		60	16,00	16,00	16,0	0,00	40,87	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
20.06.02	20	20		81	46,00	46,00	46,0	0,01	18,70	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	
20.06.02	20																			
<b>20.06.02 Summ</b>																				
21.06.02	9	33		39	50,00	50,00	50,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
21.06.02	9	33		94	3,00	3,00	3,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	0,00	
21.06.02	9	33		93	6,00	6,00	6,0	2,02	38,75	0,00	0,19	0,01	0,00	0,01	0,01	0,42	0,00	0,00	0,00	
21.06.02	10																			
21.06.02	12																			
21.06.02	13	37		92	150,00	150,00	150,0	0,27	9,36	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00	0,01	0,10	0,00	0,00	0,00	
21.06.02	13	37		50	125,00	360,00	130,0	5,38	0,00	0,00	0,44	0,00	0,00	0,00	0,00	0,93	0,00	0,00	0,00	
21.06.02	17	41		96	12,00	12,00	12,0	2,30	103,17	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	0,00	
21.06.02	17	41		98	23,00	23,00	23,0	0,21	3,50	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	
21.06.02	19																			
21.06.02	19	43		50	125,00	360,00	100,0	5,38	0,00	0,00	0,44	0,00	0,00	0,00	0,00	0,93	0,00	0,00	0,00	
21.06.02	19	43		92	150,00	150,00	150,0	0,27	9,36	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00	0,01	0,10	0,00	0,00	0,00	
21.06.02	19	43		81	45,00	45,00	45,0	0,01	18,70	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	
21.06.02	20																			
<b>21.06.02 Summ</b>																				
22.06.02	9	57		41	25,00	25,00	25,0	7,98	12,99	0,01	0,61	0,01	0,02	0,01	0,00	2,76	0,01	0,02	0,01	
22.06.02	9	57		62	50,00	50,00	50,0	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,00	0,62	0,00	0,00	0,00	
22.06.02	9	57		39	12,00	12,00	12,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
22.06.02	9	57		94	2,00	2,00	2,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	0,00	
22.06.02	11																			
22.06.02	13	61		53	15,00	15,00	15,0	1,48	0,00	0,00	0,13	0,00	0,00	0,00	0,00	0,63	0,00	0,00	0,00	

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35																				
		Nahrungsaufnahme																		
		Duplikat		FM verz.	FM Dupl.	Probe	AM Dupl.	Konzentration im der Aschemasse des Nahrungsduplikats [µg/gAM]												
Datum	Uhr	H	LM	Probe	ges. roh	ges. fert.	verz. fert.	Konzentration im der Frischmasse des Lebensmittels [µg/gFM]												
					[g]	[g]	[g]	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	Ba	La	Ce	Nd	
22.06.02	13	61		81	50,00	50,00	50,0	0,01	18,70	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	
22.06.02	13	61		75	51,00	51,00	51,0	2,71	7,01	0,00	0,39	0,00	0,00	0,01	0,00	0,26	0,00	0,01	0,00	
22.06.02	13																			
22.06.02	18	66		96	12,00	12,00	12,0	2,30	103,17	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	0,00	
22.06.02	18																			
22.06.02	19	67		39	12,00	12,00	12,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
22.06.02	19	67		60	16,00	16,00	16,0	0,00	40,87	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
22.06.02	19	67		97	20,00	20,00	20,0	1,37	63,55	0,00	0,25	0,00	0,00	0,00	0,00	0,44	0,00	0,00	0,00	
22.06.02	19	67		69	45,00	45,00	45,0	0,17	0,00	0,00	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	
22.06.02	19	67		68	20,00	20,00	20,0	0,00	3,11	0,00	0,09	0,00	0,00	0,00	0,00	0,14	0,00	0,00	0,00	
22.06.02 Summ																				
23.06.02	8	80		39	42,00	42,00	42,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
23.06.02	8	80		94	6,00	6,00	6,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	0,00	
23.06.02	8	80		93	9,00	9,00	9,0	2,02	38,75	0,00	0,19	0,01	0,00	0,01	0,01	0,42	0,00	0,00	0,00	
23.06.02	8	80		69	45,00	45,00	45,0	0,17	0,00	0,00	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	
23.06.02	9																			
23.06.02	12	84		41	20,00	20,00	20,0	7,98	12,99	0,01	0,61	0,01	0,02	0,01	0,00	2,76	0,01	0,02	0,01	
23.06.02	12	84		96	12,00	12,00	12,0	2,30	103,17	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	0,00	
23.06.02	15	87		75	51,00	51,00	51,0	2,71	7,01	0,00	0,39	0,00	0,00	0,01	0,00	0,26	0,00	0,01	0,00	
23.06.02	15	87			2,00	2,00	35 D 87	0,1	1.147,90	9.620,50	0,10	163,66	0,00	0,00	2,29	0,00	0,00	0,66	1,57	
23.06.02	15																			
23.06.02	16																			
23.06.02	17	89		85	18,00	18,00	18,0	0,14	0,93	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,60	0,00	0,00	0,00	
23.06.02	18	90		56	70,00	70,00	70,0	5,69	47,33	0,00	0,72	0,00	0,01	0,00	0,00	0,08	0,00	0,01	0,00	
23.06.02	18	90		39	6,00	6,00	6,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
23.06.02	18	90		81	10,00	10,00	10,0	0,01	18,70	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	
23.06.02	18	90		69	45,00	45,00	45,0	0,17	0,00	0,00	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	
23.06.02 Summ																				
24.06.02	9	105		96	12,00	12,00	12,0	2,30	103,17	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	0,00	
24.06.02	9	105		39	25,00	25,00	25,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
24.06.02	9	105		94	12,00	12,00	12,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	0,00	
24.06.02	9	105		93	6,00	6,00	6,0	2,02	38,75	0,00	0,19	0,01	0,00	0,01	0,01	0,42	0,00	0,00	0,00	
24.06.02	9	105		98	11,00	11,00	11,0	0,21	3,50	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	
24.06.02	11	107		85	73,00	73,00	73,0	0,14	0,93	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,60	0,00	0,00	0,00	
24.06.02	12																			
24.06.02	13	109		44	80,00	210,00	100,0	3,39	0,00	0,00	0,21	0,00	0,00	0,00	0,00	1,34	0,00	0,00	0,00	

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband:		35																		
		Nahrungsaufnahme																		
		Duplikat		FM verz.	FM Dupl.	Probe	AM Dupl.	Konzentration im der Aschemasse des Nahrungsduplikats [ $\mu\text{g}/\text{gAM}$ ]												
Datum	Uhr	H	LM	Probe	ges. roh	ges. fert.	verz. fert.	Konzentration im der Frischmasse des Lebensmittels [ $\mu\text{g}/\text{gFM}$ ]												
					[g]	[g]	[g]	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	Ba	La	Ce	Nd	
24.06.02	13	109		76	50,00	305,00	20,0	23,55	727,63	0,00	1,93	0,00	0,00	0,03	0,00	1,20	0,02	0,05	0,02	
24.06.02	16	112		97	20,00	20,00	20,0	1,37	63,55	0,00	0,25	0,00	0,00	0,00	0,00	0,44	0,00	0,00	0,00	
24.06.02	16	112		92	45,00	45,00	45,0	0,27	9,36	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00	0,01	0,10	0,00	0,00	0,00	
24.06.02	17																			
24.06.02	18	114		39	12,00	12,00	12,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
24.06.02	18	114		64	5,00	5,00	5,0	6,20	11,48	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,20	0,00	0,00	0,00	
24.06.02	18	114		60	4,00	4,00	4,0	0,00	40,87	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
24.06.02	18	114		81	70,00	70,00	70,0	0,01	18,70	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	
24.06.02 Summ																				
25.06.02	9	129		39	50,00	50,00	50,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
25.06.02	9	129		94	12,00	12,00	12,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	0,00	
25.06.02	9	129		93	6,00	6,00	6,0	2,02	38,75	0,00	0,19	0,01	0,00	0,01	0,01	0,42	0,00	0,00	0,00	
25.06.02	9																			
25.06.02	13	133		50	250,00	640,00	135,0	5,38	0,00	0,00	0,44	0,00	0,00	0,00	0,00	0,93	0,00	0,00	0,00	
25.06.02	13	133		92	109,00	109,00	109,0	0,27	9,36	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00	0,01	0,10	0,00	0,00	0,00	
25.06.02	13																			
25.06.02	16	136		75	51,00	51,00	51,0	2,71	7,01	0,00	0,39	0,00	0,00	0,01	0,00	0,26	0,00	0,01	0,00	
25.06.02	16																			
25.06.02	17	137		98	14,00	14,00	14,0	0,21	3,50	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	
25.06.02	18	138		39	12,00	12,00	12,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
25.06.02	18	138		64	6,00	6,00	6,0	6,20	11,48	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,20	0,00	0,00	0,00	
25.06.02	18	138		83	42,00	42,00	42,0	0,00	2,83	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	
25.06.02	18	138		73	35,00	35,00	35,0	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	
25.06.02	18	138		96	12,00	12,00	12,0	2,30	103,17	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	0,00	
25.06.02	20																			
25.06.02 Summ																				
26.06.02	8	152		39	25,00	25,00	25,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
26.06.02	8	152		94	6,00	6,00	6,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	0,00	
26.06.02	8	152		93	6,00	6,00	6,0	2,02	38,75	0,00	0,19	0,01	0,00	0,01	0,01	0,42	0,00	0,00	0,00	
26.06.02	9	153		98	7,00	7,00	7,0	0,21	3,50	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	
26.06.02	13	157		45	166,00	1150,00	85,0	6,54	10,21	0,00	0,42	0,01	0,00	0,06	0,00	0,69	0,01	0,01	0,00	
26.06.02	13	157		54	50,00	50,00	50,0	1,43	0,00	0,00	0,15	0,00	0,00	0,00	0,00	0,12	0,00	0,00	0,00	
26.06.02	13	157		80	50,00	50,00	50,0	0,12	0,00	0,00	0,03	0,00	0,00	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	
26.06.02	13																			
26.06.02	16	160		75	51,00	51,00	51,0	2,71	7,01	0,00	0,39	0,00	0,00	0,01	0,00	0,26	0,00	0,01	0,00	
26.06.02	16																			



Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35																				
		Nahrungsaufnahme																		
		Duplikat		FM verz.	FM Dupl.	Probe	AM Dupl.	Konzentration im der Aschemasse des Nahrungsduplikats [ $\mu\text{g}/\text{gAM}$ ]												
Datum	Uhr	H	LM	Probe	ges. roh	ges. fert.	verz. fert.	Konzentration im der Frischmasse des Lebensmittels [ $\mu\text{g}/\text{gFM}$ ]												
					[g]	[g]	[g]	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	Ba	La	Ce	Nd	
26.06.02	19	163		98	2,00	2,00	2,0	0,21	3,50	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	
26.06.02	19	163		96	12,00	12,00	12,0	2,30	103,17	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	0,00	
26.06.02	20	164		38	40,00	40,00	40,0	5,88	27,65	0,00	0,27	0,00	0,00	0,00	0,00	0,89	0,00	0,01	0,00	
26.06.02	20	164		64	6,00	6,00	6,0	6,20	11,48	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,20	0,00	0,00	0,00	
26.06.02	20	164		60	9,00	9,00	9,0	0,00	40,87	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
26.06.02	20	164		81	51,00	51,00	51,0	0,01	18,70	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	
26.06.02	20	164		69	45,00	45,00	45,0	0,17	0,00	0,00	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	
<b>26.06.02 Summ</b>																				
27.06.02	9	177		39	15,00	15,00	15,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
27.06.02	9	177		94	6,00	6,00	6,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	0,00	
27.06.02	9	177		62	50,00	50,00	50,0	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,00	0,62	0,00	0,00	0,00	
27.06.02	13	181		44	50,00	150,00	30,0	3,39	0,00	0,00	0,21	0,00	0,00	0,00	0,00	1,34	0,00	0,00	0,00	
27.06.02	13	181		78	40,00	40,00	40,0	1,21	0,00	0,00	0,17	0,00	0,01	0,00	0,00	0,03	0,00	0,00	0,00	
27.06.02	13																			
27.06.02	16																			
27.06.02	18	186		38	18,00	18,00	18,0	5,88	27,65	0,00	0,27	0,00	0,00	0,00	0,00	0,89	0,00	0,01	0,00	
27.06.02	18	186		60	5,00	5,00	5,0	0,00	40,87	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
27.06.02	18	186		59	5,00	5,00	5,0	0,00	16,94	0,00	0,00	0,00	0,03	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	
27.06.02	18	186		69	45,00	45,00	45,0	0,17	0,00	0,00	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	
<b>27.06.02 Summ</b>																				
28.06.02	8	200		39	36,00	36,00	36,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	0,00	
28.06.02	8	200		94	6,00	6,00	6,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	0,00	
28.06.02	8	200		93	6,00	6,00	6,0	2,02	38,75	0,00	0,19	0,01	0,00	0,01	0,01	0,42	0,00	0,00	0,00	
28.06.02	8	200		96	12,00	12,00	12,0	2,30	103,17	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	0,00	
28.06.02	9																			
28.06.02	10	202		95	26,00	26,00	26,0	6,08	100,54	0,00	0,77	0,00	0,00	0,01	0,00	1,26	0,00	0,01	0,00	
28.06.02	13	205		48	250,00	820,00	116,0	0,18	17,23	0,00	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	
28.06.02	13	205		55	67,00	67,00	67,0	0,75	3,84	0,00	0,08	0,00	0,00	0,00	0,00	0,15	0,00	0,00	0,00	
28.06.02	13	205		78	20,00	20,00	20,0	1,21	0,00	0,00	0,17	0,00	0,01	0,00	0,00	0,03	0,00	0,00	0,00	
28.06.02	16	208		75	51,00	51,00	51,0	2,71	7,01	0,00	0,39	0,00	0,00	0,01	0,00	0,26	0,00	0,01	0,00	
28.06.02	16	208		98	7,00	7,00	7,0	0,21	3,50	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	
28.06.02	17	209		96	12,00	12,00	12,0	2,30	103,17	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	0,00	
28.06.02	17																			
28.06.02	17																			
28.06.02	19	211			1,00	1,00	35 D 211	0,6	206,83	5,077,43	0,00	10,62	0,00	0,00	0,00	0,00	0,06	0,20	0,02	
28.06.02	19	211		81	50,00	50,00		50,0	0,01	18,70	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35																				
		Nahrungsaufnahme																		
		Duplikat		FM verz.	FM Dupl.	Probe	AM Dupl.	Konzentration im der Aschemasse des Nahrungsduplikats [µg/gAM]												
Datum	Uhr	H	LM	Probe	ges. roh	ges. fert.	verz. fert.	Konzentration im der Frischmasse des Lebensmittels [µg/gFM]												
					[g]	[g]	[g]	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	Ba	La	Ce	Nd	
28.06.02	19		211		83	21,00	21,00		21,0	0,00	2,83	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	
28.06.02	19		211		98	7,00	7,00		7,0	0,21	3,50	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	0,05	0,00	
28.06.02	19		211		69	45,00	45,00		45,0	0,17	0,00	0,00	0,06	0,00	0,00	0,00	0,04	0,00	0,00	
28.06.02	19		211		52	15,00	15,00		15,0	17,00	160,53	0,00	1,64	0,00	0,00	0,03	0,00	4,89	0,01	
<b>28.06.02 Summ</b>																				
29.06.02	10		226		39	36,00	36,00		36,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	
29.06.02	10		226		94	6,00	6,00		6,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	
29.06.02	10		226		93	6,00	6,00		6,0	2,02	38,75	0,00	0,19	0,01	0,00	0,01	0,42	0,00	0,00	
29.06.02	10		226		96	12,00	12,00		12,0	2,30	103,17	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	
29.06.02	11																			
29.06.02	13		229		44	1,00	2,80		40,0	3,39	0,00	0,00	0,21	0,00	0,00	0,00	1,34	0,00	0,00	
29.06.02	13		229			2,90	38,00	35 D 229/1	4,6	106,48	10.143,99	0,00	7,41	0,00	0,00	0,00	0,00	0,11	0,29	
29.06.02	13		229			7,00	7,00	35 D 229/2	0,1	0,00	7.192,85	0,00	6,34	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,07	
29.06.02	16		232		95	26,00	26,00		26,0	6,08	100,54	0,00	0,77	0,00	0,00	0,01	0,00	1,26	0,01	
29.06.02	16		232			8,00	2,00	35 D 87	0,1	1.147,90	9.620,50	0,10	163,66	0,00	0,00	2,29	0,00	0,00	0,66	
29.06.02	21		237			1,00	1,00	35 D 237	2,0	117,65	4.507,94	0,00	5,15	0,00	0,00	0,00	0,00	0,03	0,16	
29.06.02	21		237		69	45,00	45,00													
<b>29.06.02 Summ</b>																				
30.06.02	9		249		62	50,00	50,00		50,0	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,62	0,00	0,00	
30.06.02	9		249		39	36,00	36,00		36,0	2,23	0,00	0,00	0,18	0,00	0,00	0,00	0,74	0,00	0,00	
30.06.02	9		249		94	6,00	6,00		6,0	7,52	94,05	0,00	0,69	0,00	0,03	0,00	2,16	0,00	0,01	
30.06.02	9		249		93	6,00	6,00		6,0	2,02	38,75	0,00	0,19	0,01	0,00	0,01	0,42	0,00	0,00	
30.06.02	10																			
30.06.02	12		252		41	20,00	20,00		20,0	7,98	12,99	0,01	0,61	0,01	0,02	0,01	0,00	2,76	0,01	
30.06.02	12		252		97	20,00	20,00		20,0	1,37	63,55	0,00	0,25	0,00	0,00	0,00	0,44	0,00	0,00	
30.06.02	13																			
30.06.02	15		255		95	13,00	13,00		13,0	6,08	100,54	0,00	0,77	0,00	0,00	0,01	0,00	1,26	0,01	
30.06.02	15		255			1,00	2,00	35 D 87	0,1	1.147,90	9.620,50	0,10	163,66	0,00	0,00	2,29	0,00	0,00	0,66	
30.06.02	16																			
30.06.02	18		258		53	60,00	60,00		60,0	1,48	0,00	0,00	0,13	0,00	0,00	0,00	0,63	0,00	0,00	
<b>30.06.02 Summ</b>																				
01.07.02	9		273																	
01.07.02	9																			
01.07.02	12		276																	
01.07.02	19		283																	
<b>01.07.02 Summ</b>																				

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

<b>Proband:</b>	<b>35</b>																			
<b>Nahrungsaufnahme</b>																				
			Duplikat		FM verz.	FM Dupl.	Probe	AM Dupl.	Konzentration im der Aschemasse des Nahrungsduplikats [ $\mu\text{g/gAM}$ ]											
Datum	Uhr	H	LM	Probe	ges. roh	ges. fert.		verz. fert.	Konzentration im der Frischmasse des Lebensmittels [ $\mu\text{g/gFM}$ ]											
					[g]	[g]		[g]	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	Ba	La	Ce	Nd
<b>Gesamtergebnis</b>																				
<b>Nahrung (0 - 2:</b>																				

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35												
		Nahrungsaufnahme										
Datum	Uhr	verzehrte Masse des Elements [µg]										
		Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
20.06.02	0											
20.06.02	9	40,17	0,00	0,00	3,16	0,00	0,09	0,00	0,00	0,03	0,07	0,01
20.06.02	9	22,56	282,16	0,00	2,06	0,00	0,00	0,10	0,00	0,01	0,02	0,01
20.06.02	9	185,42	1.811,51	0,03	14,00	0,00	0,00	0,25	0,00	0,07	0,14	0,05
20.06.02	9	79,80	129,92	0,07	6,08	0,14	0,23	0,05	0,00	0,12	0,24	0,08
20.06.02	11											
20.06.02	13	3,80	26,02	0,00	0,32	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
20.06.02	13	79,80	129,92	0,07	6,08	0,14	0,23	0,05	0,00	0,12	0,24	0,08
20.06.02	15	57,51	2.579,18	0,00	5,63	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,03	0,01
20.06.02	18	7,20	118,93	0,00	0,36	0,05	0,76	0,07	0,09	0,07	0,04	0,01
20.06.02	20	1,90	31,48	0,00	0,09	0,01	0,20	0,02	0,02	0,02	0,01	0,00
20.06.02	20	15,62	0,00	0,00	1,23	0,00	0,03	0,00	0,00	0,01	0,03	0,00
20.06.02	20	0,00	653,87	0,00	0,06	0,00	0,11	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
20.06.02	20	0,29	860,29	0,00	0,30	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
20.06.02	20											
<b>20.06.02 Summ</b>		494,06	6.623,29	0,17	39,38	0,34	1,68	0,54	0,11	0,46	0,83	0,25
21.06.02	9	111,57	0,00	0,00	8,78	0,00	0,24	0,00	0,00	0,10	0,20	0,02
21.06.02	9	22,56	282,16	0,00	2,06	0,00	0,00	0,10	0,00	0,01	0,02	0,01
21.06.02	9	12,12	232,50	0,00	1,14	0,06	0,01	0,03	0,04	0,01	0,02	0,01
21.06.02	10											
21.06.02	12											
21.06.02	13	41,03	1.403,93	0,00	2,95	0,70	0,00	0,00	0,88	0,02	0,03	0,02
21.06.02	13	242,90	0,00	0,00	19,82	0,00	0,00	0,00	0,00	0,12	0,21	0,06
21.06.02	17	27,60	1.238,01	0,00	2,70	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00
21.06.02	17	4,87	80,45	0,00	0,24	0,03	0,51	0,05	0,06	0,05	0,02	0,01
21.06.02	19											
21.06.02	19	186,85	0,00	0,00	15,25	0,00	0,00	0,00	0,00	0,09	0,16	0,05
21.06.02	19	41,03	1.403,93	0,00	2,95	0,70	0,00	0,00	0,88	0,02	0,03	0,02
21.06.02	19	0,29	841,59	0,00	0,29	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
21.06.02	20											
<b>21.06.02 Summ</b>		690,82	5.482,55	0,00	56,18	1,50	0,80	0,19	1,86	0,40	0,72	0,19
22.06.02	9	199,50	324,81	0,17	15,21	0,34	0,56	0,13	0,00	0,30	0,61	0,20
22.06.02	9	0,00	0,00	0,00	0,53	0,00	0,71	0,00	0,00	0,01	0,20	0,05
22.06.02	9	26,78	0,00	0,00	2,11	0,00	0,06	0,00	0,00	0,02	0,05	0,01
22.06.02	9	15,04	188,10	0,00	1,37	0,00	0,00	0,07	0,00	0,01	0,01	0,00
22.06.02	11											
22.06.02	13	22,23	0,00	0,00	1,90	0,00	0,00	0,00	0,00	0,02	0,03	0,01

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35												
		Nahrungsaufnahme										
Datum	Uhr	verzehrte Masse des Elements [µg]										
		Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
22.06.02	13	0,32	935,10	0,00	0,32	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
22.06.02	13	138,34	357,72	0,01	19,84	0,00	0,00	0,29	0,00	0,14	0,26	0,07
22.06.02	13											
22.06.02	18	27,60	1.238,01	0,00	2,70	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00
22.06.02	18											
22.06.02	19	26,78	0,00	0,00	2,11	0,00	0,06	0,00	0,00	0,02	0,05	0,01
22.06.02	19	0,00	653,87	0,00	0,06	0,00	0,11	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
22.06.02	19	27,36	1.270,99	0,00	4,94	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
22.06.02	19	7,82	0,00	0,00	2,90	0,00	0,00	0,00	0,00	0,03	0,04	0,01
22.06.02	19	0,00	62,15	0,00	1,83	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00
<b>22.06.02 Summ</b>		491,76	5.030,74	0,19	55,81	0,34	1,54	0,49	0,00	0,55	1,25	0,35
23.06.02	8	93,72	0,00	0,00	7,38	0,00	0,20	0,00	0,00	0,08	0,17	0,02
23.06.02	8	45,11	564,31	0,00	4,12	0,00	0,00	0,21	0,00	0,02	0,04	0,01
23.06.02	8	18,18	348,75	0,00	1,72	0,08	0,02	0,05	0,06	0,02	0,03	0,01
23.06.02	8	7,82	0,00	0,00	2,90	0,00	0,00	0,00	0,00	0,03	0,04	0,01
23.06.02	9											
23.06.02	12	159,60	259,85	0,14	12,17	0,27	0,45	0,10	0,00	0,24	0,49	0,16
23.06.02	12	27,60	1.238,01	0,00	2,70	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00
23.06.02	15	138,34	357,72	0,01	19,84	0,00	0,00	0,29	0,00	0,14	0,26	0,07
23.06.02	15	114,79	962,05	0,01	16,37	0,00	0,00	0,23	0,00	0,07	0,16	0,04
23.06.02	15											
23.06.02	16											
23.06.02	17	2,44	16,73	0,00	0,20	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
23.06.02	18	398,53	3.312,87	0,00	50,09	0,00	0,85	0,33	0,00	0,23	0,48	0,17
23.06.02	18	13,39	0,00	0,00	1,05	0,00	0,03	0,00	0,00	0,01	0,02	0,00
23.06.02	18	0,06	187,02	0,00	0,06	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
23.06.02	18	7,82	0,00	0,00	2,90	0,00	0,00	0,00	0,00	0,03	0,04	0,01
<b>23.06.02 Summ</b>		1.027,41	7.247,29	0,16	121,48	0,36	1,56	1,21	0,06	0,86	1,74	0,50
24.06.02	9	27,60	1.238,01	0,00	2,70	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00
24.06.02	9	55,79	0,00	0,00	4,39	0,00	0,12	0,00	0,00	0,05	0,10	0,01
24.06.02	9	90,23	1.128,62	0,00	8,23	0,00	0,00	0,42	0,00	0,03	0,08	0,02
24.06.02	9	12,12	232,50	0,00	1,14	0,06	0,01	0,03	0,04	0,01	0,02	0,01
24.06.02	9	2,33	38,48	0,00	0,12	0,02	0,25	0,02	0,03	0,02	0,01	0,00
24.06.02	11	9,90	67,83	0,00	0,83	0,00	0,02	0,00	0,00	0,01	0,01	0,00
24.06.02	12											
24.06.02	13	128,96	0,00	0,00	7,95	0,00	0,05	0,00	0,00	0,16	0,14	0,05

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35												
		Nahrungsaufnahme										
Datum	Uhr	verzehrte Masse des Elements [µg]										
		Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
24.06.02	13	77,20	2.385,68	0,00	6,34	0,00	0,00	0,11	0,00	0,08	0,15	0,05
24.06.02	16	27,36	1.270,99	0,00	4,94	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
24.06.02	16	12,31	421,18	0,00	0,88	0,21	0,00	0,00	0,26	0,00	0,01	0,01
24.06.02	17											
24.06.02	18	26,78	0,00	0,00	2,11	0,00	0,06	0,00	0,00	0,02	0,05	0,01
24.06.02	18	31,00	57,40	0,00	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
24.06.02	18	0,00	163,47	0,00	0,02	0,00	0,03	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
24.06.02	18	0,45	1.309,14	0,00	0,45	0,00	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<b>24.06.02 Summ</b>		502,01	8.313,29	0,00	40,16	0,28	0,59	0,58	0,34	0,39	0,59	0,16
25.06.02	9	111,57	0,00	0,00	8,78	0,00	0,24	0,00	0,00	0,10	0,20	0,02
25.06.02	9	90,23	1.128,62	0,00	8,23	0,00	0,00	0,42	0,00	0,03	0,08	0,02
25.06.02	9	12,12	232,50	0,00	1,14	0,06	0,01	0,03	0,04	0,01	0,02	0,01
25.06.02	9											
25.06.02	13	283,77	0,00	0,00	23,15	0,00	0,00	0,00	0,00	0,14	0,24	0,07
25.06.02	13	29,82	1.020,19	0,00	2,14	0,51	0,00	0,00	0,64	0,01	0,02	0,01
25.06.02	13											
25.06.02	16	138,34	357,72	0,01	19,84	0,00	0,00	0,29	0,00	0,14	0,26	0,07
25.06.02	16											
25.06.02	17	2,96	48,97	0,00	0,15	0,02	0,31	0,03	0,04	0,03	0,01	0,01
25.06.02	18	26,78	0,00	0,00	2,11	0,00	0,06	0,00	0,00	0,02	0,05	0,01
25.06.02	18	37,20	68,88	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
25.06.02	18	0,00	118,75	0,00	0,35	0,00	0,08	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
25.06.02	18	0,00	0,00	0,00	0,47	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
25.06.02	18	27,60	1.238,01	0,00	2,70	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00
25.06.02	20											
<b>25.06.02 Summ</b>		760,39	4.213,63	0,02	69,12	0,59	0,71	0,77	0,72	0,49	0,91	0,22
26.06.02	8	55,79	0,00	0,00	4,39	0,00	0,12	0,00	0,00	0,05	0,10	0,01
26.06.02	8	45,11	564,31	0,00	4,12	0,00	0,00	0,21	0,00	0,02	0,04	0,01
26.06.02	8	12,12	232,50	0,00	1,14	0,06	0,01	0,03	0,04	0,01	0,02	0,01
26.06.02	9	1,48	24,49	0,00	0,07	0,01	0,16	0,01	0,02	0,01	0,01	0,00
26.06.02	13	80,29	125,26	0,00	5,12	0,11	0,00	0,73	0,00	0,07	0,16	0,05
26.06.02	13	71,72	0,00	0,00	7,55	0,00	0,20	0,00	0,00	0,08	0,13	0,04
26.06.02	13	5,89	0,00	0,00	1,42	0,00	0,16	0,00	0,00	0,03	0,07	0,03
26.06.02	13											
26.06.02	16	138,34	357,72	0,01	19,84	0,00	0,00	0,29	0,00	0,14	0,26	0,07
26.06.02	16											

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35												
		Nahrungsaufnahme										
Datum	Uhr	verzehrte Masse des Elements [µg]										
		Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
26.06.02	19	0,42	7,00	0,00	0,02	0,00	0,04	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00
26.06.02	19	27,60	1.238,01	0,00	2,70	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00
26.06.02	20	235,37	1.106,17	0,02	10,99	0,00	0,00	0,00	0,00	0,19	0,41	0,11
26.06.02	20	37,20	68,88	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
26.06.02	20	0,00	367,80	0,00	0,04	0,00	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
26.06.02	20	0,32	953,80	0,00	0,33	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
26.06.02	20	7,82	0,00	0,00	2,90	0,00	0,00	0,00	0,00	0,03	0,04	0,01
<b>26.06.02 Summ</b>		719,49	5.045,93	0,04	60,69	0,18	0,80	1,29	0,07	0,63	1,25	0,35
27.06.02	9	33,47	0,00	0,00	2,63	0,00	0,07	0,00	0,00	0,03	0,06	0,01
27.06.02	9	45,11	564,31	0,00	4,12	0,00	0,00	0,21	0,00	0,02	0,04	0,01
27.06.02	9	0,00	0,00	0,00	0,53	0,00	0,71	0,00	0,00	0,01	0,20	0,05
27.06.02	13	33,85	0,00	0,00	2,09	0,00	0,01	0,00	0,00	0,04	0,04	0,01
27.06.02	13	48,38	0,00	0,00	6,91	0,00	0,51	0,00	0,00	0,04	0,02	0,01
27.06.02	13											
27.06.02	16											
27.06.02	18	105,92	497,78	0,01	4,95	0,00	0,00	0,00	0,00	0,08	0,19	0,05
27.06.02	18	0,00	204,33	0,00	0,02	0,00	0,03	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
27.06.02	18	0,00	84,71	0,00	0,00	0,00	0,15	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
27.06.02	18	7,82	0,00	0,00	2,90	0,00	0,00	0,00	0,00	0,03	0,04	0,01
<b>27.06.02 Summ</b>		274,56	1.351,13	0,01	24,14	0,00	1,49	0,21	0,00	0,25	0,58	0,15
28.06.02	8	80,33	0,00	0,00	6,32	0,00	0,17	0,00	0,00	0,07	0,15	0,02
28.06.02	8	45,11	564,31	0,00	4,12	0,00	0,00	0,21	0,00	0,02	0,04	0,01
28.06.02	8	12,12	232,50	0,00	1,14	0,06	0,01	0,03	0,04	0,01	0,02	0,01
28.06.02	8	27,60	1.238,01	0,00	2,70	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00
28.06.02	9											
28.06.02	10	157,95	2.613,91	0,00	19,98	0,00	0,00	0,19	0,00	0,08	0,19	0,06
28.06.02	13	6,23	609,26	0,00	2,30	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
28.06.02	13	50,29	257,49	0,00	5,59	0,00	0,30	0,00	0,00	0,11	0,11	0,05
28.06.02	13	24,19	0,00	0,00	3,46	0,00	0,26	0,00	0,00	0,02	0,01	0,01
28.06.02	16	138,34	357,72	0,01	19,84	0,00	0,00	0,29	0,00	0,14	0,26	0,07
28.06.02	16	1,48	24,49	0,00	0,07	0,01	0,16	0,01	0,02	0,01	0,01	0,00
28.06.02	17	27,60	1.238,01	0,00	2,70	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00
28.06.02	17											
28.06.02	17											
28.06.02	19	119,96	2.944,91	0,00	6,16	0,00	0,00	0,00	0,00	0,04	0,11	0,01
28.06.02	19	0,32	935,10	0,00	0,32	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35

Proband: 35												
		Nahrungsaufnahme										
Datum	Uhr	verzehrte Masse des Elements [µg]										
		Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
28.06.02	19	0,00	59,38	0,00	0,17	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
28.06.02	19	1,48	24,49	0,00	0,07	0,01	0,16	0,01	0,02	0,01	0,01	0,00
28.06.02	19	7,82	0,00	0,00	2,90	0,00	0,00	0,00	0,00	0,03	0,04	0,01
28.06.02	19	254,97	2.407,96	0,01	24,53	0,00	0,00	0,48	0,00	0,10	0,22	0,08
<b>28.06.02 Summ</b>		955,81	13.507,53	0,03	102,37	0,08	1,18	1,24	0,08	0,65	1,19	0,33
29.06.02	10	80,33	0,00	0,00	6,32	0,00	0,17	0,00	0,00	0,07	0,15	0,02
29.06.02	10	45,11	564,31	0,00	4,12	0,00	0,00	0,21	0,00	0,02	0,04	0,01
29.06.02	10	12,12	232,50	0,00	1,14	0,06	0,01	0,03	0,04	0,01	0,02	0,01
29.06.02	10	27,60	1.238,01	0,00	2,70	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00
29.06.02	11											
29.06.02	13	48,36	0,00	0,00	2,98	0,00	0,02	0,00	0,00	0,06	0,05	0,02
29.06.02	13	36,97	3.522,37	0,00	2,57	0,00	0,00	0,00	0,00	0,04	0,10	0,02
29.06.02	13	0,00	719,29	0,00	0,63	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00
29.06.02	16	157,95	2.613,91	0,00	19,98	0,00	0,00	0,19	0,00	0,08	0,19	0,06
29.06.02	16	459,16	3.848,20	0,04	65,46	0,00	0,00	0,92	0,00	0,27	0,63	0,16
29.06.02	21	229,41	8.790,48	0,00	10,04	0,00	0,00	0,00	0,00	0,05	0,30	0,01
29.06.02	21	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<b>29.06.02 Summ</b>		1.097,02	21.529,06	0,04	115,95	0,06	0,21	1,35	0,04	0,60	1,50	0,29
30.06.02	9	0,00	0,00	0,00	0,53	0,00	0,71	0,00	0,00	0,01	0,20	0,05
30.06.02	9	80,33	0,00	0,00	6,32	0,00	0,17	0,00	0,00	0,07	0,15	0,02
30.06.02	9	45,11	564,31	0,00	4,12	0,00	0,00	0,21	0,00	0,02	0,04	0,01
30.06.02	9	12,12	232,50	0,00	1,14	0,06	0,01	0,03	0,04	0,01	0,02	0,01
30.06.02	10											
30.06.02	12	159,60	259,85	0,14	12,17	0,27	0,45	0,10	0,00	0,24	0,49	0,16
30.06.02	12	27,36	1.270,99	0,00	4,94	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
30.06.02	13											
30.06.02	15	78,98	1.306,96	0,00	9,99	0,00	0,00	0,10	0,00	0,04	0,09	0,03
30.06.02	15	57,40	481,02	0,01	8,18	0,00	0,00	0,11	0,00	0,03	0,08	0,02
30.06.02	16											
30.06.02	18	88,92	0,00	0,00	7,59	0,00	0,00	0,00	0,00	0,07	0,10	0,03
<b>30.06.02 Summ</b>		549,81	4.115,62	0,15	54,98	0,33	1,35	0,56	0,04	0,49	1,17	0,31
01.07.02	9											
01.07.02	9											
01.07.02	12											
01.07.02	19											
<b>01.07.02 Summ</b>		0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00



Anlage 4: Elementbilanz des Probanden 35





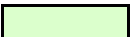
<b>Proband:</b>	<b>35</b>											
		<b>Nahrungsaufnahme</b>										
Datum	Uhr	verzehrte Masse des Elements [µg]										
		Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Gesamtergebnis</b>		7.563,13	82.460,07	0,81	740,27	4,05	11,93	8,43	3,32	5,77	11,72	3,10
<b>Nahrung (0 - 2)</b>		7.474,21	82.460,07	0,81	732,68	4,05	11,93	8,43	3,32	5,70	11,62	3,07

## Legende für die Anlage 5

VK	Varianzkoeffizient
Min	Minimum
Max	Maximum

Alle Masseangaben sind auf Trockenmasse bezogen.

Farbcodierung der Werte, die bei der Mittelung über die Elemente nicht berücksichtigt wurden:

	Element nicht oder nur in Spuren im Stuhl vorhanden
	unbekannte Zufuhrquelle neben Nahrung und Boden bzw. Hausstaub
	negative Differenz Stuhl - Nahrung
	hoher Anteil des Elements in der Nahrung, der zu einem Ausreißer führt
	Ausreißer im Vergleich mit den anderen Elementen

Anlage 5.1: Berechnung der Ingestion für den Probanden 11

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	6.905	56.701	0,49	622	0,00	1,96	36,99	0,00	7,87	13,05	4,97
Nahrung	7.877	16.634	0,17	623	0,14	1,81	23,33	52,06	6,87	11,91	3,45
Differenz	-972	40.067	0,32	-2	-0,14	0,15	13,66	-52,06	1,00	1,14	1,52
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
11 B 1 / 2	38.072	383.831	3,4	1.810	7,5	8,3	55	6,0	13	25	11
11 B 1 / 3	49.985	309.395	6,2	3.670	10,4	16,8	93	12,2	29	53	26
11 B 1 / 4	53.739	285.290	8,6	4.258	13,6	21,6	145	17,7	37	69	34
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
11 H 1	14.787	80.679	2,2	1.144	2,8	3,1	24	2,6	6,5	12,9	5,0

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
11 B 1 / 2	-26	104	93	-1	-19	18	247	-8.664	77	45	142	9,0	104	72	12
11 B 1 / 3	-19	130	51	0	-13	9	148	-4.266	34	22	58	9,0	65	83	7
11 B 1 / 4	-18	140	37	0	-10	7	94	-2.938	27	16	45	9,0	52	91	6
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
11 H 1	-66	497	147	-1	-50	49	570	-20.053	153	88	306	9,0	259	79	29
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
11 B 1 / 2	181	148	144	344	0	236	668	0	604	514	463	9,0	367	55	41
11 B 1 / 3	138	183	79	169	0	117	400	0	270	248	190	9,0	199	48	22
11 B 1 / 4	128	199	57	146	0	91	254	0	214	189	147	9,0	158	39	18
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
11 H 1	467	703	227	544	0	628	1.544	0	1.204	1.013	998	9,0	814	50	90

Anlage 5.2: Berechnung der Ingestion für den Probanden 12

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	10.464	102.884	3,82	980	2,17	1,97	67,71	2,87	11,89	24,84	8,42
Nahrung	6.884	19.222	0,17	573	0,12	6,64	9,39	8,69	4,92	10,05	2,16
Differenz	3.581	83.662	3,65	407	2,05	-4,67	58,32	-5,83	6,97	14,79	6,26
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
12 B 1 / 2	40.652	343.276	5,3	3.746	8,6	15,4	159	10,5	23	43	22
12 B 1 / 3	41.578	344.276	6,3	3.972	9,7	17,5	169	13,3	35	71	36
12 B 1 / 4	44.176	374.680	6,2	4.002	9,5	17,9	216	13,8	25	47	24
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
12 H 1	18.032	83.792	2,0	1.333	3,7	5,1	78	4,1	12	23	10,0

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
12 B 1 / 2	88	244	692	109	239	-303	366	-555	307	345	290	11,0	248	41	23
12 B 1 / 3	86	243	580	102	211	-266	344	-437	200	207	174	11,0	196	41	18
12 B 1 / 4	81	223	586	102	216	-261	270	-423	281	316	261	11,0	219	39	20
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
12 H 1	199	998	1.839	305	549	-923	751	-1.425	568	635	628	11,0	579	43	53
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
12 B 1 / 2	257	300	724	261	253	128	425	273	524	579	390	11,0	374	47	34
12 B 1 / 3	252	299	606	247	223	112	400	215	341	348	234	11,0	298	43	27
12 B 1 / 4	237	275	613	245	228	110	313	208	480	530	352	11,0	326	47	30
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
12 H 1	580	1.228	1.923	735	580	390	872	701	970	1.066	845	11,0	899	46	82

Anlage 5.3: Berechnung der Ingestion für den Probanden 13

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	4.907	125.100	3,67	1.033	0,08	0,00	12,97	3,68	10,85	20,13	6,55
Nahrung	1.644	76.176	0,02	141	0,00	0,86	0,00	0,30	1,06	2,20	0,38
Differenz	3.263	48.924	3,65	892	0,08	-0,86	12,97	3,38	9,79	17,93	6,17
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
13 B 1 / 2	46.248	313.410	4,9	3.515	11,3	14,8	121	10,3	27	53	25
13 B 1 / 3	49.363	308.905	5,9	4.186	13,1	17,3	141	14,1	35	71	33
13 B 1 / 4	46.995	353.827	5,3	4.113	11,7	15,4	167	13,5	37	78	36
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
13 H 1	12.445	81.252	1	1.397	3	4	33	3	10	20	8

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
13 B 1 / 2	71	156	743	254	7	-58	108	328	357	336	247	10,5	232	47	22
13 B 1 / 3	66	158	622	213	6	-50	92	239	276	251	187	10,5	185	41	18
13 B 1 / 4	69	138	694	217	7	-56	78	251	262	230	170	10,5	177	43	17
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
13 H 1	262	602	2.438	639	29	-229	395	1.008	962	911	808	10,5	698	39	67
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
13 B 1 / 2	106	399	747	294	7	0	108	357	395	378	262	10,5	287	42	27
13 B 1 / 3	99	405	626	247	6	0	92	261	306	282	198	10,5	236	44	22
13 B 1 / 4	104	354	698	251	7	0	78	274	290	258	180	10,5	224	42	21
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
13 H 1	394	1.540	2.453	740	29	0	395	1.097	1.067	1.022	857	10,5	889	43	85

Anlage 5.4: Berechnung der Ingestion für den Probanden 14

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	17.657	152.745	1,79	2.612	0,96	3,20	70,13	0,00	13,55	27,70	10,22
Nahrung	12.323	25.779	0,50	991	0,34	0,40	13,01	20,41	6,42	13,96	4,28
Differenz	5.334	126.966	1,29	1.621	0,62	2,79	57,12	-20,41	7,14	13,74	5,95
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
14 B 1 / 2	57.086	317.226	7,2	4.167	13,2	11,4	132	12,8	15	31	14
14 B 1 / 3	58.953	315.000	7,5	4.298	12,2	14,7	152	13,2	28	51	24
14 B 1 / 4	60.638	356.949	7,2	4.612	11,6	15,6	185	14,4	27	51	24
14 B 2 / 2	45.104	360.834	5,1	3.882	8,3	15,1	169	11,6	23	44	20
14 B 2 / 3	46.633	371.412	5,5	3.939	8,7	16,9	211	12,5	25	48	23
14 B 2 / 4	46.882	379.267	5,5	3.907	8,4	16,2	193	13,0	25	48	24
14 B 3 / 2	37.587	363.186	4,3	2.486	8,3	9,8	76	7,7	14	27	12
14 B 3 / 3	43.131	334.107	6,6	3.860	10,2	16,3	146	13,4	28	52	25
14 B 3 / 4	57.766	320.958	7,2	4.686	11,1	18,1	178	15,2	32	58	28
Boden Mittel 2	46.592	347.082	5,5	3.512	9,9	12,1	126	10,7	17	34	15
Boden Mittel 3	49.572	340.173	6,5	4.032	10,4	16,0	170	13,0	27	50	24
Boden Mittel 4	55.095	352.391	6,6	4.402	10,4	16,6	185	14,2	28	53	25
Boden VK 2 [%]	21	7	27	26	29	23	37	25	27	25	25
Boden VK 3 [%]	17	8	15	6	17	7	21	4	7	4	4
Boden VK 4 [%]	13	8	14	10	16	8	4	8	12	10	11
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
14 H 1	10.579	47.539	1	1.179	2	3	31	3	8	16	6

Anlage 5.4: Berechnung der Ingestion für den Probanden 14

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
14 B 1 / 2	93	400	180	389	47	245	432	-1.596	466	443	421	11,0	372	28	34
14 B 1 / 3	90	403	172	377	51	190	375	-1.541	258	269	246	11,0	286	31	26
14 B 1 / 4	88	356	180	351	54	179	308	-1.422	266	268	251	11,0	270	25	25
14 B 2 / 2	118	352	252	418	75	185	338	-1.755	314	314	299	11,0	309	22	28
14 B 2 / 3	114	342	235	412	72	165	271	-1.632	290	288	256	11,0	282	26	26
14 B 2 / 4	114	335	233	415	74	173	296	-1.573	281	285	252	11,0	284	25	26
14 B 3 / 2	142	350	303	652	75	286	751	-2.662	504	504	477	11,0	478	34	43
14 B 3 / 3	124	380	196	420	61	172	390	-1.525	255	266	234	11,0	289	33	26
14 B 3 / 4	92	396	179	346	56	154	321	-1.345	223	236	209	11,0	258	33	23
Boden Mittel 2	114	366	234	462	63	231	454	-1.908	410	404	384	11,0	368	24	33
Boden Mittel 3	108	373	198	402	60	175	336	-1.564	267	274	245	11,0	284	29	26
Boden Mittel 4	97	360	194	368	60	168	308	-1.441	254	261	236	11,0	269	27	24
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
14 H 1	504	2.671	1.052	1.375	278	896	1.850	-7.644	855	869	971	11,0	1317	49	120
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
14 B 1 / 2	309	482	250	627	73	281	531	0	886	893	724	11,0	554	45	50
14 B 1 / 3	300	485	238	608	79	217	461	0	491	542	423	11,0	418	33	38
14 B 1 / 4	291	428	249	566	83	205	379	0	504	541	432	11,0	399	32	36
14 B 2 / 2	391	423	349	673	116	212	415	0	596	633	515	11,0	467	32	42
14 B 2 / 3	379	411	325	663	110	189	333	0	550	581	441	11,0	430	34	39
14 B 2 / 4	377	403	323	669	114	198	363	0	533	574	433	11,0	430	33	39
14 B 3 / 2	470	421	420	1.051	116	327	922	0	957	1.015	820	11,0	711	42	65
14 B 3 / 3	409	457	272	677	94	196	479	0	483	537	403	11,0	435	32	40
14 B 3 / 4	306	476	248	558	86	177	394	0	424	475	360	11,0	380	32	35
Boden Mittel 2	379	440	324	744	97	264	558	0	779	814	661	11,0	551	38	50
Boden Mittel 3	356	449	274	648	93	200	413	0	507	553	422	11,0	425	32	39
Boden Mittel 4	320	433	269	593	92	192	378	0	483	527	405	11,0	400	32	36
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
14 H 1	1.669	3.213	1.458	2.216	429	1.024	2.271	0	1.624	1.751	1.671	11,0	1878	33	171

Anlage 5.5: Berechnung der Ingestion für den Probanden 15

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	9.486	72.660	0,11	450	0,00	0,00	1,31	0,00	2,51	6,00	2,02
Nahrung	0	6.228	0,00	0,23	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Differenz	9.486	66.433	0,11	450	0,00	0,00	1,31	0,00	2,51	6,00	2,02
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
15 B 1 / 2	28.332	342.595	3,4	1.984	7,7	8,2	81,15	5,5	13,72	27,26	12,60
15 B 1 / 3	41.861	355.244	4,2	3.318	8,2	10,1	111,87	6,7	15,98	33,34	15,60
15 B 1 / 4	52.627	311.364	8,3	4.766	12,7	16,0	186,19	16,5	24,21	49,28	22,15
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
15 H 1	16.092	111.181	2	1.798	4	2	85	5	8	17	6

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
15 B 1 / 2	335	194	32	227	0,00	0,00	16	0,00	183	220	160	12	220	28	18,3
15 B 1 / 3	227	187	26	136	0,00	0,00	12	0,00	157	180	130	12	169	21	14,1
15 B 1 / 4	180	213	13	94	0,00	0,00	7	0,00	104	122	91	12	134	38	11,2
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
15 H 1	590	598	52	250	0	0	15	0	325	358	322	12	407	37	33,9
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
15 B 1 / 2	335	212	32	227	0,00	0,00	16	0,00	183	220	160	12	223	27	18,6
15 B 1 / 3	227	205	26	136	0,00	0,00	12	0,00	157	180	130	12	172	22	14,4
15 B 1 / 4	180	233	13	94	0,00	0,00	7	0,00	104	122	91	12	137	42	11,5
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
15 H 1	590	654	52	250	0	0	15	0	325	358	322	12	416	39	34,7



Anlage 5.6: Berechnung der Ingestion für den Probanden 21

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	14.016	143.026	4,41	2.084	3,71	2,85	94,11	109,44	16,37	28,66	9,42
Nahrung	6.065	36.089	1,03	560	3,93	10,18	6,99	1,78	6,28	12,39	3,73
Differenz	7.951	106.937	3,38	1.524	-0,22	-7,33	87,12	107,66	10,09	16,27	5,70
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
21 B 1 / 2	34.565	394.583	4,2	2.163	7,7	8,3	72	6,6	15	28	13
21 B 1 / 3	44.730	364.010	6,8	3.778	10,2	12,9	111	12,4	20	41	19
21 B 1 / 4	55.224	321.941	9,2	5.189	12,9	19,0	189	17,9	31	64	31
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
21 H 1	19.799	135.959	3	2.284	4	5	56	5	10	23	8

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
21 B 1 / 2	230	271	809	704	-28	-888	1.212	16.242	678	584	434	11,0	615	52	56
21 B 1 / 3	178	294	495	403	-21	-570	786	8.674	508	401	293	11,0	420	44	38
21 B 1 / 4	144	332	369	294	-17	-385	461	6.010	322	253	184	11,0	295	34	27
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
21 H 1	402	787	1.289	667	-51	-1.530	1.556	19.751	1.003	719	686	11,0	888	42	81
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
21 B 1 / 2	405	362	1.056	963	485	345	1.309	16.512	1.100	1.029	717	11,0	777	46	71
21 B 1 / 3	313	393	646	552	363	222	849	8.818	825	707	485	11,0	535	41	49
21 B 1 / 4	254	444	481	402	287	150	498	6.110	522	445	305	11,0	379	33	34
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
21 H 1	708	1.052	1.681	912	866	595	1.681	20.079	1.627	1.267	1.134	11,0	1152	35	105

Anlage 5.7: Berechnung der Ingestion für den Probanden 22

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	19.390	235.303	7,61	1.320	0,21	0,21	35,33	3,24	15,59	29,29	10,34
Nahrung	3.698	39.507	0,25	498	8,39	6,48	22,64	23,27	3,30	5,06	1,24
Differenz	15.692	195.795	7,36	822	-8,18	-6,27	12,69	-20,03	12,29	24,23	9,10
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
22 B 1 / 2	30.456	379.993	3,1	1.762	6,5	5,1	47	4,7	5,1	11,6	6
22 B 1 / 3	37.110	297.924	5,7	3.297	8,9	11,1	82	9,9	21	40	19
22 B 1 / 4	47.971	270.382	7,9	3.901	11,8	16,5	137	14,6	33	59	29
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
22 H 1	15.226	91.021	2	1.602	4	2	44	4	13	26	9

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
22 B 1 / 2	515	515	2.366	467	-1.253	-1.236	272	-4.266	2.427	2.091	1.564	10,0	1421	64	142
22 B 1 / 3	423	657	1.294	249	-917	-562	154	-2.024	588	603	490	10,0	615	54	61
22 B 1 / 4	327	724	936	211	-695	-379	92	-1.371	374	410	318	10,0	472	55	47
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
22 H 1	1.031	2.151	4.180	513	-2.278	-3.496	290	-4.452	968	945	1.040	10,0	1108	49	111
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
22 B 1 / 2	637	619	2.448	749	32	42	758	690	3.078	2.528	1.778	10,0	1476	67	148
22 B 1 / 3	523	790	1.339	400	24	19	429	327	745	729	557	10,0	649	47	65
22 B 1 / 4	404	870	969	338	18	13	257	222	475	496	361	10,0	488	54	49
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
22 H 1	1.274	2.585	4.324	824	59	120	808	720	1.228	1.142	1.182	10,0	1565	75	157

Anlage 5.8: Berechnung der Ingestion für den Probanden 23

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	46.194	485.609	5,46	4.192	4,35	1,85	68,55	0,19	22,20	49,26	16,67
Nahrung	8.941	120.768	0,49	759	3,06	1,54	5,20	22,53	5,87	11,10	3,03
Differenz	37.253	364.841	4,98	3.433	1,29	0,31	63,35	-22,33	16,33	38,16	13,64
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
23 B 1 / 2	33.827	366.830	3,9	2.750	7,3	7,6	89	7,3	12	25	11
23 B 1 / 3	46.955	377.029	6,4	3.904	10,6	12,8	166	12,6	21	38	18
23 B 1 / 4	47.100	333.200	6,8	4.359	11,0	14,7	214	14,3	22	43	20
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
23 H 1	29.990	199.078	4,7	2.680	7,2	9,7	176	7,4	12,8	24	11,2

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittlung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
23 B 1 / 2	1.101	995	1.283	1.248	178	41	709	-3.058	1.335	1.533	1.237	10,5	1180	21	112
23 B 1 / 3	793	968	780	879	122	24	383	-1.772	794	999	744	10,5	851	12	81
23 B 1 / 4	791	1.095	736	788	117	21	297	-1.563	728	885	670	10,5	813	17	77
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
23 H 1	1.242	1.833	1.054	1.281	180	32	360	-3.009	1.272	1.583	1.217	10,5	1354	19	129
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
23 B 1 / 2	1.366	1.324	1.408	1.524	597	243	767	26	1.815	1.979	1.511	10,5	1561	16	149
23 B 1 / 3	984	1.288	856	1.074	411	144	414	15	1.079	1.289	909	10,5	1068	16	102
23 B 1 / 4	981	1.457	808	962	394	126	321	13	990	1.143	818	10,5	1023	22	97
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
23 H 1	1.540	2.439	1.157	1.564	606	191	389	26	1.729	2.043	1.487	10,5	1709	24	163

Anlage 5.9: Berechnung der Ingestion für den Probanden 24

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	15.005	394.648	9,49	4.464	0,56	0,00	26,81	4,48	9,25	19,98	7,28
Nahrung	8.199	174.465	1,21	1.148	2,07	7,51	12,23	6,07	4,29	9,46	2,79
Differenz	6.805	220.183	8,29	3.315	-1,52	-7,51	14,58	-1,59	4,96	10,52	4,49
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
24 B 1 / 2	31.120	366.015	3,7	2.218	8,2	9,3	81	4,9	16	33	15
24 B 1 / 3	42.871	313.602	5,9	3.675	10,7	14,4	157	11,5	21	45	21
24 B 1 / 4	45.824	263.060	6,6	4.125	11,5	18,2	229	13,5	28	56	27
24 B 3 / 2	38.848	358.902	5,5	3.585	10,5	9,4	43	5,3	13	28	14
24 B 3 / 3	52.103	293.488	8,2	5.622	14,8	14,4	75	10,8	21	42	21
24 B 3 / 4	57.958	255.649	10,1	7.215	16,8	17,3	97	13,4	27	55	29
Boden Mittel 2	34.984	362.458	4,6	2.902	9,4	9,4	62	5,1	15	31	15
Boden Mittel 3	47.487	303.545	7,0	4.649	12,7	14,4	116	11,1	21	43	21
Boden Mittel 4	51.891	259.355	8,3	5.670	14,2	17,7	163	13,4	28	56	28
Boden VK 2 [%]	16	1	26	33	17	1	43	5	11	11	2
Boden VK 3 [%]	14	5	24	30	23	0	50	4	2	4	2
Boden VK 4 [%]	17	2	30	39	27	4	57	1	3	1	4
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
24 H 1	22.314	193.310	3,1	3.044	5,3	6,2	68	5,4	9,4	18	8,4

Anlage 5.9: Berechnung der Ingestion für den Probanden 24

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittlung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
24 B 1 / 2	219	602	2.211	1.495	-184	-806	180	-322	318	318	301	10,5	705	105	67
24 B 1 / 3	159	702	1.415	902	-142	-522	93	-139	233	236	217	10,5	495	95	47
24 B 1 / 4	149	837	1.257	804	-132	-413	64	-118	176	188	167	10,5	455	98	43
24 B 3 / 2	175	613	1.519	925	-145	-797	336	-298	370	375	311	10,5	578	77	55
24 B 3 / 3	131	750	1.009	590	-102	-523	195	-148	240	249	211	10,5	422	76	40
24 B 3 / 4	117	861	821	460	-90	-435	150	-119	184	190	157	10,5	368	85	35
Boden Mittel 2	195	607	1.800	1.143	-162	-801	235	-309	342	344	306	10,5	621	91	59
Boden Mittel 3	143	725	1.178	713	-119	-522	126	-143	236	243	214	10,5	447	85	43
Boden Mittel 4	131	849	993	585	-107	-424	90	-118	180	189	162	10,5	397	91	38
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
24 H 1	305	1.139	2.708	1.089	-286	-1.207	213	-293	528	601	534	10,5	890	91	85
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
24 B 1 / 2	482	1.078	2.532	2.013	68	0	332	907	593	605	488	10,5	1003	76	96
24 B 1 / 3	350	1.258	1.622	1.215	52	0	171	391	434	449	353	10,5	694	75	66
24 B 1 / 4	327	1.500	1.440	1.082	48	0	117	332	328	357	271	10,5	639	85	61
24 B 3 / 2	386	1.100	1.740	1.245	53	0	617	841	689	711	505	10,5	871	49	83
24 B 3 / 3	288	1.345	1.156	794	37	0	358	417	447	473	342	10,5	624	62	59
24 B 3 / 4	259	1.544	940	619	33	0	276	335	342	361	255	10,5	548	79	52
Boden Mittel 2	429	1.089	2.063	1.538	59	0	431	873	638	654	496	10,5	912	62	87
Boden Mittel 3	316	1.300	1.350	960	44	0	231	403	441	461	347	10,5	645	68	61
Boden Mittel 4	289	1.522	1.138	787	39	0	165	334	335	359	263	10,5	577	82	55
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
24 H 1	672	2.042	3.102	1.466	105	0	392	826	985	1.141	867	10,5	1277	65	122

Anlage 5.10: Berechnung der Ingestion für den Probanden 26

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	49.908	700.807	3,13	2.355	2,31	1,56	74,42	3,11	34,67	69,15	22,03
Nahrung	5.371	33.814	0,54	544	1,34	1,76	0,93	16,64	3,42	8,68	1,78
Differenz	44.537	666.994	2,59	1.811	0,97	-0,20	73,49	-13,53	31,25	60,47	20,25
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
26 B 2 / 2	33.133	401.741	4	1.865	7	8	80	6	23	44	18
26 B 2 / 3	39.202	356.135	5	2.443	8	10	72	7	37	68	31
26 B 2 / 4	56.010	300.434	8	3.621	13	19	195	16	63	116	51
26 B 3 / 2	20.389	395.774	2	1.308	5	4	28	3	12	24	11
26 B 3 / 3	36.700	301.659	5	3.371	8	13	144	11	20	39	19
26 B 3 / 4	50.716	353.094	6	4.399	10	17	233	15	25	47	23
Boden Mittel 2	26.761	398.758	3	1.587	6	6	54	5	18	34	15
Boden Mittel 3	37.951	328.897	5	2.907	8	11	108	9	29	53	25
Boden Mittel 4	53.363	326.764	7	4.010	12	18	214	16	44	81	37
Boden VK 2 [%]	34	1	37	25	20	43	69	47	43	43	35
Boden VK 3 [%]	5	12	0	23	2	18	47	28	42	39	36
Boden VK 4 [%]	7	11	19	14	20	9	13	6	60	59	54
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
26 H 1	21.318	316.128	3	1.999	5	6	61	5	9	17	8
26 H 2	14.345	93.230	2	4.980	6	4	34	8	8	14	7
Staub Mittel	17.832	204.679	2	3.490	6	5	47	6	8	15	7
Staub VK [%]	28	77	23	60	21	22	41	32	11	14	13

Anlage 5.10: Berechnung der Ingestion für den Probanden 26

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
26 B 2 / 2	1.344	1.660	710	971	137	-25	915	-2.196	1.340	1.382	1.105	11,0	1178	26	107
26 B 2 / 3	1.136	1.873	534	741	118	-20	1.028	-1.866	837	896	649	11,0	832	25	76
26 B 2 / 4	795	2.220	312	500	73	-10	377	-831	498	523	396	11,0	486	32	44
26 B 3 / 2	2.184	1.685	1.214	1.384	183	-46	2.652	-4.400	2.508	2.571	1.828	11,0	2004	28	182
26 B 3 / 3	1.214	2.211	531	537	120	-16	512	-1.249	1.533	1.569	1.092	11,0	998	47	91
26 B 3 / 4	878	1.889	410	412	98	-12	316	-909	1.239	1.278	892	11,0	775	52	70
Boden Mittel 2	1.664	1.673	896	1.141	157	-32	1.360	-2.930	1.747	1.798	1.378	11,0	1457	22	132
Boden Mittel 3	1.174	2.028	533	623	119	-18	683	-1.496	1.083	1.140	815	11,0	864	31	79
Boden Mittel 4	835	2.041	354	452	84	-11	344	-868	710	742	549	11,0	569	35	52
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
26 H 1	2.089	2.110	1.014	906	204	-36	1.205	-2.699	3.498	3.654	2.596	11,0	2134	50	194
26 H 2	3.105	7.154	1.408	364	152	-49	2.191	-1.706	4.090	4.464	3.112	11,0	3062	37	278
Staub Mittel	2.498	3.259	1.179	519	174	-41	1.554	-2.090	3.771	4.019	2.831	11,0	2730	39	248
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
26 B 2 / 2	1.506	1.744	859	1.263	325	194	926	505	1.486	1.580	1.203	11,0	1321	24	120
26 B 2 / 3	1.273	1.968	646	964	279	158	1.041	429	929	1.024	706	11,0	940	23	85
26 B 2 / 4	891	2.333	377	650	174	81	382	191	552	598	431	11,0	555	33	50
26 B 3 / 2	2.448	1.771	1.469	1.800	433	363	2.686	1.013	2.783	2.940	1.989	11,0	2236	24	203
26 B 3 / 3	1.360	2.323	643	699	285	123	518	287	1.701	1.794	1.188	11,0	1129	46	103
26 B 3 / 4	984	1.985	496	535	231	92	320	209	1.375	1.461	970	11,0	877	51	80
Boden Mittel 2	1.865	1.757	1.084	1.484	371	253	1.377	674	1.937	2.056	1.499	11,0	1632	20	148
Boden Mittel 3	1.315	2.131	645	810	282	138	692	344	1.201	1.304	886	11,0	979	29	89
Boden Mittel 4	935	2.145	428	587	199	86	348	200	788	849	597	11,0	647	34	59
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
26 H 1	2.341	2.217	1.226	1.178	483	282	1.220	621	3.880	4.178	2.824	11,0	2383	50	217
26 H 2	3.479	7.517	1.704	473	360	385	2.219	393	4.537	5.105	3.385	11,0	3405	38	310
Staub Mittel	2.799	3.424	1.426	675	412	325	1.574	481	4.183	4.595	3.079	11,0	3012	40	274

Anlage 5.11: Berechnung der Ingestion für den Probanden 31

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	17.068	532.873	8,02	2.038	0,00	0,00	72,95	1,0	20,42	37,22	12,62
Nahrung	14.236	232.476	2,22	1.670	12,44	15,71	17,05	111	11,36	20,36	6,16
Differenz	2.832	300.396	5,80	368	-12,44	-15,71	55,90	-110	9,06	16,86	6,46
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
31 B 1 / 2	27.911	353.450	4,0	1.723	8,2	7,3	46	4,7	16	33	14
31 B 1 / 3	46.643	246.195	7,2	3.471	11,7	15,8	127	12,8	28	54	24
31 B 1 / 4	51.032	238.982	8,8	4.211	13,5	19,4	175	15,5	34	64	29
31 B 3 / 2	24.521	252.645	2,8	1.232	7,2	5,0	52	2,6	9	17	7
31 B 3 / 3	52.575	219.192	5,6	3.607	11,4	11,5	84	10,4	25	49	17
31 B 3 / 4	54.713	186.323	6,5	3.351	14,8	11,6	129	12,8	22	41	17
KG B 1 / 2	31.400	317.473	5,1	2.243	9,2	12,7	234	7,7	17	35	16
KG B 1 / 3	38.394	281.698	6,5	3.493	11,2	14,5	142	11,1	21	40	19
KG B 1 / 4	61.898	266.319	8,2	4.378	13,3	19,2	215	15,3	29	55	26
KG B 2 / 2	24.018	379.132	2,6	1.409	6,3	5,5	47	2,5	8	16	7
KG B 2 / 3	25.116	346.823	2,7	2.363	5,1	4,7	53	1,9	7	16	7
KG B 2 / 4	48.803	285.131	10,3	6.240	13,0	26,3	390	20,9	44	94	43
Boden Mittel 2	26.962	325.675	3,6	1.652	7,7	7,6	95	4,4	12	26	11
Boden Mittel 3	40.682	273.477	5,5	3.234	9,9	11,6	102	9,1	20	40	17
Boden Mittel 4	54.112	244.189	8,5	4.545	13,6	19,2	227	16,1	32	64	29
Boden VK 2 [%]	13	17	32	27	17	46	98	56	40	40	41
Boden VK 3 [%]	29	20	37	18	33	43	40	54	45	43	44
Boden VK 4 [%]	11	18	18	27	6	31	50	21	28	35	37
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
31 H 1	22.340	132.162	2,9	2.235	4,7	6,6	54	5,6	10,1	22	9,4
KG H 1	33.776	269.501	4	2.967	8	9	65	8	22	45	21
Staub Mittel	28.058	200.831	4	2.601	6	8	60	7	16	33	15
Staub VK [%]	29	48	29	20	33	20	13	24	53	50	54



Anlage 5.11: Berechnung der Ingestion für den Probanden 31

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittlung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
31 B 1 / 2	101	850	1.441	214	-1.518	-2.157	1.210	-23.354	563	505	453	10,5	837	49	80
31 B 1 / 3	61	1.220	801	106	-1.059	-994	440	-8.595	321	315	265	10,5	560	67	53
31 B 1 / 4	55	1.257	659	87	-919	-808	320	-7.097	270	263	224	10,5	347	51	33
31 B 3 / 2	115	1.189	2.059	299	-1.736	-3.122	1.081	-41.844	1.039	964	891	10,5	1204	36	115
31 B 3 / 3	54	1.370	1.028	102	-1.089	-1.365	662	-10.641	366	342	389	10,5	693	61	66
31 B 3 / 4	52	1.612	886	110	-840	-1.353	432	-8.622	407	408	369	10,5	500	43	48
KG B 1 / 2	90	946	1.129	164	-1.350	-1.241	239	-14.243	527	479	412	10,5	622	55	59
KG B 1 / 3	74	1.066	888	105	-1.108	-1.084	394	-9.900	426	419	347	10,5	590	52	56
KG B 1 / 4	46	1.128	707	84	-938	-817	260	-7.191	313	306	252	10,5	368	52	35
KG B 2 / 2	118	792	2.249	261	-1.984	-2.857	1.188	-44.261	1.196	1.046	900	10,5	1229	43	117
KG B 2 / 3	113	866	2.181	156	-2.461	-3.359	1.051	-57.363	1.221	1.086	955	10,5	1227	39	117
KG B 2 / 4	58	1.054	564	59	-959	-596	143	-5.265	207	180	151	10,5	249	71	24
Boden Mittel 2	105	922	1.594	223	-1.613	-2.062	589	-25.075	731	660	582	10,5	846	46	81
Boden Mittel 3	70	1.098	1.051	114	-1.261	-1.352	550	-12.167	444	425	389	10,5	660	49	63
Boden Mittel 4	52	1.230	686	81	-912	-820	246	-6.827	282	265	225	10,5	341	57	32
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
31 H 1	127	2.273	1.983	165	-2.640	-2.381	1.027	-19.514	895	778	687	10,5	1274	53	121
KG H 1	84	1.115	1.307	124	-1.648	-1.796	858	-13.758	406	374	307	10,5	728	59	69
Staub Mittel	101	1.496	1.575	142	-2.029	-2.047	935	-16.138	559	506	424	10,5	916	56	87

Anlage 5.11: Berechnung der Ingestion für den Probanden 31

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Obergrenze der Bodenigestion [mg Boden]</b>															
31 B 1 / 2	612	1.508	1.993	1.182	0	0	1.580	206	1.269	1.115	884	10,5	1268	34	121
31 B 1 / 3	366	2.164	1.107	587	0	0	574	76	723	694	517	10,5	653	36	62
31 B 1 / 4	334	2.230	911	484	0	0	418	62	609	580	437	10,5	539	35	51
31 B 3 / 2	696	2.109	2.848	1.654	0	0	1.410	368	2.342	2.128	1.741	10,5	1866	35	178
31 B 3 / 3	325	2.431	1.422	565	0	0	864	94	825	755	759	10,5	788	43	75
31 B 3 / 4	312	2.860	1.225	608	0	0	563	76	918	901	721	10,5	750	39	71
KG B 1 / 2	544	1.678	1.562	908	0	0	311	125	1.188	1.057	804	10,5	1007	47	96
KG B 1 / 3	445	1.892	1.228	583	0	0	515	87	960	925	677	10,5	903	53	86
KG B 1 / 4	276	2.001	978	466	0	0	339	63	706	676	493	10,5	562	43	54
KG B 2 / 2	711	1.406	3.111	1.446	0	0	1.550	390	2.695	2.310	1.758	10,5	1873	42	178
KG B 2 / 3	680	1.536	3.016	862	0	0	1.372	505	2.751	2.397	1.865	10,5	1810	47	172
KG B 2 / 4	350	1.869	780	327	0	0	187	46	467	398	295	10,5	400	47	38
Boden Mittel 2	633	1.636	2.204	1.234	0	0	769	221	1.648	1.457	1.137	10,5	1340	38	128
Boden Mittel 3	420	1.949	1.453	630	0	0	718	107	1.000	938	760	10,5	983	50	94
Boden Mittel 4	315	2.182	948	448	0	0	321	60	636	586	440	10,5	528	42	50
<b>Obergrenze der Hausstaubigestion [mg Hausstaub]</b>															
31 H 1	764	4.032	2.743	912	0	0	1.340	172	2.016	1.717	1.342	10,5	1548	70	147
KG H 1	505	1.977	1.807	687	0	0	1.120	121	915	827	599	10,5	1055	52	100
Staub Mittel	608	2.653	2.179	784	0	0	1.220	142	1.259	1.116	828	10,5	1331	39	127

Anlage 5.12: Berechnung der Ingestion für den Probanden 32

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	8111	165060	1,23	1079	2,97	0,04	15,64	0,00	7,10	13,72	4,99
Nahrung	7474	106936	0,50	659	0,96	6,09	10,50	6,87	5,13	9,33	2,66
Differenz	637	58124	0,72	419	2,02	-6,05	5,14	-6,87	1,97	4,39	2,33
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
32 B 1 / 2	43.211	354.682	5,1	2.888	8,9	12,4	123	9,3	20	38	17
32 B 1 / 3	54.201	319.633	6,5	4.056	10,5	15,5	134	11,9	32	58	28
32 B 1 / 4	54.784	315.105	6,4	4.046	10,3	15,4	152	12,1	35	64	31
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
32 H 1	23.278	113.074	2,9	1.893	5,0	6,0	50	4,6	9,9	19,4	8,8

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
32 B 1 / 2	15	164	142	145	226	-487	42	-742	97	115	138	10,5	134	40	13
32 B 1 / 3	12	182	112	103	192	-390	38	-576	61	75	83	10,5	106	52	10
32 B 1 / 4	12	184	114	104	196	-392	34	-569	56	68	76	10,5	104	57	10
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
32 H 1	27	514	254	222	407	-1.006	103	-1.479	198	226	265	10,5	274	47	26
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
32 B 1 / 2	188	465	240	374	334	3	127	0	349	359	295	10,5	303	34	29
32 B 1 / 3	150	516	190	266	283	2	116	0	220	236	177	10,5	239	49	23
32 B 1 / 4	148	524	193	267	289	2	103	0	202	214	162	10,5	233	53	22
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
32 H 1	348	1.460	430	570	600	6	312	0	714	707	569	10,5	634	54	60

Anlage 5.13: Berechnung der Ingestion für den Probanden 33

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	16687	232783	1,90	9852	4,90	0,00	54,36	0,00	11,64	24,32	8,20
Nahrung	13515	203966	1,17	2267	4,94	11,43	41,06	8,00	11,18	22,86	6,08
Differenz	3172	28817	0,73	7585	-0,04	-11,43	13,30	-8,00	0,46	1,46	2,12
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
24 B 1 / 2	31.120	366.015	3,7	2.218	8,2	9,3	81	4,9	16	33	15
24 B 1 / 3	42.871	313.602	5,9	3.675	10,7	14,4	157	11,5	21	45	21
24 B 1 / 4	45.824	263.060	6,6	4.125	11,5	18,2	229	13,5	28	56	27
24 B 2 / 2	21.152	405.605	1,9	1.052	5,3	4,6	30	0,6	5	12	6
24 B 2 / 3	29.280	388.928	3,2	1.924	7,1	7,4	62	4,1	9	24	9
24 B 2 / 4	49.486	276.261	7,6	6.055	11,0	23,0	354	16,5	35	78	38
24 B 3 / 2	38.848	358.902	5,5	3.585	10,5	9,4	43	5,3	13	28	14
24 B 3 / 3	52.103	293.488	8,2	5.622	14,8	14,4	75	10,8	21	42	21
24 B 3 / 4	57.958	255.649	10,1	7.215	16,8	17,3	97	13,4	27	55	29
KG B 1 / 2	31.400	317.473	5,1	2.243	9,2	12,7	234	7,7	17	35	16
KG B 1 / 3	38.394	281.698	6,5	3.493	11,2	14,5	142	11,1	21	40	19
KG B 1 / 4	61.898	266.319	8,2	4.378	13,3	19,2	215	15,3	29	55	26
Boden Mittel 2	30.630	361.999	4,1	2.274	8,3	9,0	97	4,7	13	27	13
Boden Mittel 3	40.662	319.429	5,9	3.679	10,9	12,7	109	9,4	18	38	17
Boden Mittel 4	53.792	265.322	8,1	5.443	13,2	19,4	224	14,7	30	61	30
Boden Sigma % 2	24	10	40	46	27	37	97	64	40	39	37
Boden Sigma % 3	23	15	35	41	29	28	43	37	34	24	33
Boden Sigma % 4	14	3	18	27	20	13	47	10	13	18	18
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
24 H 1	22.314	193.310	3,1	3.044	5,3	6,2	68	5,4	9,4	17,5	8,4
KG H 1	33.776	269.501	4	2.967	8	9	65	8	22	45	21
Staub Mittel	28.045	231.405	4	3.006	6	7	67	7	16	31	15
Staub Sigma %	29	23	26	2	25	24	4	27	58	62	61

Anlage 5.13: Berechnung der Ingestion für den Probanden 33

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
24 B 1 / 2	102	79	194	3.420	-5	-1.225	165	-1.619	30	44	142	9,5	108	57	11
24 B 1 / 3	74	92	124	2.064	-4	-794	85	-698	22	33	103	9,5	76	49	8
24 B 1 / 4	69	110	111	1.839	-3	-629	58	-593	16	26	79	9,5	67	55	7
24 B 2 / 2	150	71	390	7.213	-7	-2.489	440	-13.142	85	124	374	9,5	233	69	25
24 B 2 / 3	108	74	229	3.941	-5	-1.540	213	-1.933	53	60	233	9,5	139	60	15
24 B 2 / 4	64	104	96	1.253	-3	-497	38	-484	13	19	56	9,5	56	64	6
24 B 3 / 2	82	80	134	2.116	-4	-1.211	306	-1.501	35	52	147	9,5	119	77	13
24 B 3 / 3	61	98	89	1.349	-3	-795	177	-744	22	35	99	9,5	83	62	9
24 B 3 / 4	55	113	72	1.051	-2	-662	137	-599	17	26	74	9,5	71	61	7
KG B 1 / 2	101	91	142	3.381	-4	-903	57	-1.033	27	41	135	9,5	85	53	9
KG B 1 / 3	83	102	112	2.171	-3	-788	94	-718	22	36	114	9,5	80	46	8
KG B 1 / 4	51	108	89	1.733	-3	-594	62	-522	16	26	83	9,5	62	54	7
Boden Mittel 2	104	80	180	3.335	-5	-1.269	137	-1.718	36	54	167	9,5	108	51	11
Boden Mittel 3	78	90	123	2.062	-3	-902	122	-853	26	39	122	9,5	86	47	9
Boden Mittel 4	59	109	90	1.394	-3	-589	59	-545	15	24	71	9,5	61	55	6
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
24 H 1	142	149	238	2.492	-7	-1.836	194	-1.474	49	83	252	9,5	158	48	17
KG H 1	94	107	164	2.556	-5	-1.306	204	-998	21	32	101	9,5	103	64	11
Staub Mittel	113	125	194	2.523	-6	-1.526	199	-1.190	29	47	144	9,5	122	54	13

Anlage 5.13: Berechnung der Ingestion für den Probanden 33

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Obergrenze der Bodenigestion [mg Boden]</b>															
24 B 1 / 2	536	636	507	4.442	596	0	672	0	747	736	549	9,5	623	15	66
24 B 1 / 3	389	742	325	2.680	461	0	346	0	547	546	397	9,5	469	30	49
24 B 1 / 4	364	885	288	2.388	426	0	238	0	412	435	305	9,5	419	48	44
24 B 2 / 2	789	574	1.019	9.368	931	0	1.798	0	2.136	2.076	1.445	9,5	1346	45	142
24 B 2 / 3	570	599	598	5.119	691	0	872	0	1.321	1.004	901	9,5	819	32	86
24 B 2 / 4	337	843	251	1.627	445	0	154	0	328	313	218	9,5	361	59	38
24 B 3 / 2	430	649	348	2.748	468	0	1.252	0	867	866	569	9,5	681	44	72
24 B 3 / 3	320	793	232	1.752	331	0	725	0	563	576	385	9,5	491	42	52
24 B 3 / 4	288	911	188	1.366	291	0	561	0	431	439	287	9,5	424	54	45
KG B 1 / 2	531	733	371	4.392	532	0	232	0	677	690	522	9,5	536	32	56
KG B 1 / 3	435	826	291	2.820	437	0	384	0	547	605	440	9,5	496	33	52
KG B 1 / 4	270	874	232	2.250	370	0	253	0	403	442	320	9,5	395	52	42
Boden Mittel 2	545	643	469	4.332	591	0	559	0	902	900	647	9,5	657	24	69
Boden Mittel 3	410	729	320	2.678	448	0	499	0	646	643	471	9,5	521	27	55
Boden Mittel 4	310	877	234	1.810	373	0	243	0	389	399	276	9,5	388	54	41
<b>Obergrenze der Hausstaubigestion [mg Hausstaub]</b>															
24 H 1	748	1.204	621	3.236	927	0	794	0	1.239	1.389	976	9,5	987	27	104
KG H 1	494	864	429	3.320	650	0	835	0	522	540	289	9,5	578	34	61
Staub Mittel	595	1.006	507	3.278	764	0	814	0	734	778	144	9,5	668	39	70

Anlage 5.14: Berechnung der Ingestion für den Probanden 34

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	23.940	215.611	5,11	23.248	1,5	0,4	75	9	17	31,0	10,2
Nahrung	10.065	163.890	1	10.596	4	11	36	26	8	15	4
Differenz	13.876	51.721	4,49	12.653	-2,9	-11,1	38	-18	9	16,5	6,3
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
34 B 1 / 2	44.153	340.636	5,3	2.662	10	6,9	46	6,7	20	22	15
34 B 1 / 3	55.639	272.054	7,0	3.513	11,7	9,7	62	10,1	20	22	15
34 B 1 / 4	61.905	267.792	6,1	4.655	10,3	8,8	83	8,2	18	21	14
34 B 3 / 2	45.649	269.902	6,1	3.196	9,7	10,9	72	7,8	23	27	19
34 B 3 / 3	51.117	304.229	7,5	3.967	11,0	13,7	97	10,8	24	28	19
34 B 3 / 4	49.777	218.582	7,4	4.261	10,8	15,3	120	11,8	36	42	29
Boden Mittel 2	44.901	305.269	5,7	2.929	9,8	8,9	59	7,3	22	25	17
Boden Mittel 3	53.378	288.142	7,3	3.740	11,4	11,7	80	10,5	22	25	17
Boden Mittel 4	55.841	243.187	6,7	4.458	10,5	12,0	101	10,0	27	32	21
Boden VK 2 [%]	2	16	10	13	2	32	32	11	12	13	15
Boden VK 3 [%]	6	8	4	9	4	24	31	5	14	15	18
Boden VK 4 [%]	15	14	14	6	3	38	25	26	46	48	49
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
34 H 1	18.722	119.373	2,5	1.666	4,2	4,4	120	4,3	24	43	13,4

Anlage 5.14: Berechnung der Ingestion für den Probanden 34

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
34 B 1 / 2	314	152	850	4.754	-288	-1.624	837	-2.616	445	735	415	10,0	536	51	54
34 B 1 / 3	249	190	637	3.601	-246	-1.149	618	-1.737	446	738	420	10,0	471	43	47
34 B 1 / 4	224	193	738	2.718	-280	-1.271	462	-2.141	484	791	446	10,0	477	48	48
34 B 3 / 2	304	192	741	3.959	-298	-1.018	530	-2.243	375	608	334	10,0	441	44	44
34 B 3 / 3	271	170	601	3.190	-261	-811	394	-1.625	363	600	327	10,0	390	41	39
34 B 3 / 4	279	237	606	2.969	-267	-729	321	-1.486	247	392	217	10,0	328	41	33
Boden Mittel 2	309	169	792	4.320	-293	-1.251	649	-2.415	407	665	370	10,0	480	47	48
Boden Mittel 3	260	179	619	3.383	-253	-951	481	-1.679	400	662	368	10,0	424	42	42
Boden Mittel 4	248	213	665	2.838	-273	-927	379	-1.755	327	524	292	10,0	378	43	38
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
34 H 1	741	433	1.814	7.596	-687	-2.505	320	-4.071	369	382	470	10,0	647	82	65
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
34 B 1 / 2	542	633	966	8.735	147	51	1.630	1.307	838	1.382	671	10,0	996	40	100
34 B 1 / 3	430	793	724	6.617	125	36	1.203	867	839	1.387	679	10,0	865	35	87
34 B 1 / 4	387	805	839	4.995	142	40	899	1.069	911	1.487	721	10,0	890	35	89
34 B 3 / 2	524	799	842	7.275	152	32	1.031	1.120	706	1.143	540	10,0	838	29	84
34 B 3 / 3	468	709	683	5.861	133	26	767	812	683	1.128	528	10,0	722	28	72
34 B 3 / 4	481	986	688	5.456	136	23	625	742	464	736	351	10,0	634	32	63
Boden Mittel 2	533	706	900	7.938	149	39	1.263	1.206	767	1.251	599	10,0	903	33	90
Boden Mittel 3	449	748	703	6.216	129	30	937	839	753	1.244	594	10,0	783	30	78
Boden Mittel 4	429	887	756	5.215	139	29	737	876	615	985	472	10,0	720	28	72
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
34 H 1	1.279	1.806	2.062	13.958	349	79	622	2.033	695	718	760	10,0	1247	51	125



Anlage 5.15: Berechnung der Ingestion für den Probanden 35

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	16.445	228.757	1,56	2.125	5,15	0,00	63,66	0,00	8,82	18,23	5,62
Nahrung	7.474	82.460	0,81	733	4,05	11,93	8,43	3,32	5,70	11,62	3,07
Differenz	8.971	146.297	0,75	1.392	1,10	-11,93	55,23	-3,32	3,13	6,61	2,55
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
15 B 1 / 2	28.332	342.595	3,4	1.984	7,7	8,2	81	5,5	14	27	13
15 B 1 / 3	41.861	355.244	4,2	3.318	8,2	10,1	112	6,7	16	33	16
15 B 1 / 4	52.627	311.364	8,3	4.766	12,7	16,0	186	16,5	24	49	22
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
15 H 1	16.092	111.181	2,1	1.798	4,3	2,3	85	5,2	7,7	17	6,3

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
15 B 1 / 2	317	427	222	702	144	-1.452	681	-599	228	242	202	10,5	352	59	33
15 B 1 / 3	214	412	179	420	135	-1.181	494	-497	196	198	163	10,5	268	50	26
15 B 1 / 4	170	470	91	292	87	-745	297	-202	129	134	115	10,5	198	65	19
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
15 H 1	557	1.316	364	774	255	-5.293	651	-635	405	394	406	10,5	476	36	45
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
15 B 1 / 2	580	668	460	1.071	672	0	784	0	643	669	446	10,5	666	28	63
15 B 1 / 3	393	644	372	640	629	0	569	0	552	547	360	10,5	523	22	50
15 B 1 / 4	312	735	188	446	404	0	342	0	364	370	254	10,5	379	41	36
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
15 H 1	1.022	2.058	754	1.182	1.189	0	750	0	1.143	1.087	895	10,5	1120	35	107

Anlage 5.16: Berechnung der Ingestion für den Probanden 36

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	17.995	293.628	7,21	6.628	1,05	0,00	39,84	19,08	14,51	26,91	9,23
Nahrung	13.860	226.929	1,33	1.214	6,95	13,83	16,91	92,14	9,74	17,23	5,45
Differenz	4.136	66.699	5,88	5.415	-5,90	-13,83	22,94	-73,06	4,77	9,68	3,77
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
KG B 1 / 2	31.400	317.473	5,1	2.243	9,2	12,7	234	7,7	17,2	35	15,7
KG B 1 / 3	38.394	281.698	6,5	3.493	11,2	14,5	142	11,1	21,3	40	18,6
KG B 1 / 4	61.898	266.319	8,2	4.378	13,3	19,2	215	15,3	28,9	55	25,6
KG B 2 / 2	24.018	379.132	2,6	1.409	6,3	5,5	47	2,5	7,6	16	7,2
KG B 2 / 3	25.116	346.823	2,7	2.363	5,1	4,7	53	1,9	7,4	16	6,8
KG B 2 / 4	48.803	285.131	10,3	6.240	13,0	26,3	390	20,9	43,7	94	42,9
36 B 1 / 2	35.503	343.863	4,7	2.520	11,0	12,4	78	7,5	14,3	29	11,8
36 B 1 / 3	40.654	330.572	6,6	3.867	12,3	16,2	125	11,5	17,2	36	14,4
36 B 1 / 4	53.070	298.570	9,3	4.764	15,6	22,0	183	16,6	24,1	51	20,3
Boden Mittel 2	30.307	346.822	4,1	2.057	8,8	10,2	120	5,9	13,0	27	11,6
Boden Mittel 3	34.721	319.698	5,3	3.241	9,5	11,8	107	8,2	15,3	30	13,3
Boden Mittel 4	54.590	283.340	9,2	5.127	13,9	22,5	263	17,6	32,2	66	29,6
Boden VK 2 [%]	19	9	33	28	27	40	84	50	38	36	37
Boden VK 3 [%]	24	11	43	24	41	53	44	66	47	43	45
Boden VK 4 [%]	12	6	11	19	10	16	42	17	32	36	40
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
36 H 1	22.449	160.547	3,0	2.148	5,0	6,4	62	6,1	11,6	21	10,1
KG H 1	33.776	269.501	4,4	2.967	7,5	8,7	65	8,0	22	45	21
Staub Mittel	28.113	215.024	4	2.558	6	8	63	7	17	33	16
Staub VK [%]	28	36	26	23	28	22	4	19	45	50	50

Anlage 5.16: Berechnung der Ingestion für den Probanden 36

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittlung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
KG B 1 / 2	132	210	1.146	2.414	-640	-1.093	98	-9.441	278	275	240	10,0	205	37	21
KG B 1 / 3	108	237	901	1.550	-525	-954	162	-6.563	224	241	202	10,0	196	27	20
KG B 1 / 4	67	250	717	1.237	-445	-719	107	-4.766	165	176	147	10,0	152	41	15
KG B 2 / 2	172	176	2.282	3.843	-941	-2.515	487	-29.339	630	601	526	10,0	432	48	43
KG B 2 / 3	165	192	2.212	2.291	-1.167	-2.957	431	-38.024	643	624	558	10,0	435	49	44
KG B 2 / 4	85	234	572	868	-455	-525	59	-3.490	109	103	88	10,0	113	55	11
36 B 1 / 2	116	194	1.263	2.149	-537	-1.113	294	-9.717	333	333	319	10,0	265	34	26
36 B 1 / 3	102	202	893	1.400	-478	-853	183	-6.357	277	271	262	10,0	216	32	22
36 B 1 / 4	78	223	634	1.137	-379	-629	125	-4.395	198	191	186	10,0	167	33	17
Boden Mittel 2	136	192	1.427	2.632	-669	-1.357	191	-12.350	366	361	326	10,0	262	38	26
Boden Mittel 3	119	209	1.119	1.671	-618	-1.173	215	-8.929	312	318	285	10,0	243	32	24
Boden Mittel 4	76	235	636	1.056	-423	-614	87	-4.144	148	146	128	10,0	137	42	14
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
36 H 1	184	415	1.934	2.521	-1.170	-2.157	373	-11.898	412	451	376	10,0	369	26	37
KG H 1	122	247	1.326	1.825	-782	-1.581	352	-9.120	214	215	179	10,0	222	35	22
Staub Mittel	147	310	1.573	2.117	-937	-1.825	362	-10.325	282	291	243	10,0	272	27	27

Anlage 5.16: Berechnung der Ingestion für den Probanden 36

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Obergrenze der Bodenigestion [mg Boden]</b>															
KG B 1 / 2	573	925	1.405	2.955	114	0	170	2.465	845	764	588	10,0	1188	78	119
KG B 1 / 3	469	1.042	1.104	1.897	94	0	281	1.714	682	669	495	10,0	928	61	93
KG B 1 / 4	291	1.103	880	1.514	79	0	185	1.245	502	489	360	10,0	730	65	73
KG B 2 / 2	749	774	2.797	4.704	168	0	847	7.661	1.916	1.670	1.286	10,0	2489	93	249
KG B 2 / 3	716	847	2.712	2.805	208	0	749	9.929	1.956	1.733	1.363	10,0	2534	114	253
KG B 2 / 4	369	1.030	702	1.062	81	0	102	911	332	288	215	10,0	557	67	56
36 B 1 / 2	507	854	1.549	2.630	96	0	511	2.537	1.013	926	780	10,0	1256	65	126
36 B 1 / 3	443	888	1.095	1.714	85	0	318	1.660	844	753	641	10,0	929	53	93
36 B 1 / 4	339	983	778	1.391	68	0	218	1.147	602	531	454	10,0	716	55	72
Boden Mittel 2	594	847	1.749	3.222	119	0	333	3.225	1.114	1.004	797	10,0	1432	76	143
Boden Mittel 3	518	918	1.372	2.045	110	0	373	2.331	949	883	696	10,0	1121	60	112
Boden Mittel 4	330	1.036	780	1.293	76	0	152	1.082	450	405	312	10,0	649	63	65
<b>Obergrenze der Hausstaubigestion [mg Hausstaub]</b>															
36 H 1	802	1.829	2.371	3.086	209	0	647	3.107	1.254	1.254	918	10,0	1696	56	170
KG H 1	533	1.090	1.625	2.234	140	0	612	2.381	650	598	438	10,0	1129	68	113
Staub Mittel	640	1.366	1.928	2.592	167	0	629	2.696	857	810	593	10,0	1346	63	135

Anlage 5.17: Berechnung der Ingestion für den Probanden 41

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	25.423	344.380	13,64	2.034	1,18	0,00	51,25	9,63	17,18	32,66	11,84
Nahrung	19.840	179.911	3,33	6.636	7,83	22,01	23,22	3,74	15,79	30,50	9,20
Differenz	5.583	164.470	10,32	-4.602	-6,65	-22,01	28,04	5,90	1,40	2,15	2,64
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
41 B 4 / 2	35.372	369.487	4	2.676	8	10	155	9	16	34	15
41 B 4 / 3	39.814	283.712	6	3.917	9	13	193	13	27	51	24
41 B 4 / 4	41.974	350.620	6	4.240	9	13	217	14	24	46	21
41 B 6 / 2	24.232	223.865	3	2.745	8	9	139	9	20	37	18
41 B 6 / 3	25.930	248.621	4	3.169	8	10	116	11	18	33	15
41 B 6 / 4	28.809	296.587	4	3.488	9	10	132	11	20	37	17
41 B 7 / 2	33.876	387.864	4	2.451	7	8	109	8	13	27	12
41 B 7 / 3	41.451	352.249	6	4.067	9	13	197	13	20	37	17
41 B 7 / 4	43.360	364.038	6	4.277	9	14	215	14	20	39	18
Boden Mittel 2	31.160	327.072	3,9	2.624	7,5	9,2	134	8,5	16,5	33	14,6
Boden Mittel 3	35.732	294.861	5,2	3.717	8,9	12,0	169	12,5	21,3	40	18,7
Boden Mittel 4	38.048	337.082	5,2	4.001	9,1	12,3	188	13,1	21,4	41	19,0
Boden VK 2 [%]	19	27	11	6	2	8	18	10	21	15	20
Boden VK 3 [%]	24	18	19	13	6	15	27	9	22	24	24
Boden VK 4 [%]	21	11	20	11	4	17	26	11	10	12	11
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
41 H 1	17.307	162.363	2,3	1.743	3,8	3,7	31	3,9	6,0	12	5,3

Anlage 5.17: Berechnung der Ingestion für den Probanden 41

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
41 B 4 / 2	158	445	2.416	-1.720	-881	-2.230	181	675	86	62	182	10,5	328	69	31
41 B 4 / 3	140	580	1.848	-1.175	-721	-1.725	145	459	52	42	112	10,5	287	75	27
41 B 4 / 4	133	469	1.809	-1.085	-705	-1.655	129	430	59	47	124	10,5	257	69	24
41 B 6 / 2	230	735	3.008	-1.676	-880	-2.354	202	639	70	59	151	10,5	391	70	37
41 B 6 / 3	215	662	2.554	-1.452	-798	-2.210	241	525	78	66	174	10,5	363	60	35
41 B 6 / 4	194	555	2.589	-1.319	-765	-2.207	213	514	70	59	153	10,5	326	59	31
41 B 7 / 2	165	424	2.653	-1.877	-913	-2.640	258	783	107	78	226	10,5	371	67	35
41 B 7 / 3	135	467	1.756	-1.131	-720	-1.663	143	440	71	58	154	10,5	268	64	25
41 B 7 / 4	129	452	1.763	-1.076	-713	-1.604	130	416	69	55	143	10,5	254	65	24
Boden Mittel 2	179	503	2.671	-1.754	-891	-2.396	209	694	85	66	181	10,5	353	66	34
Boden Mittel 3	156	558	1.997	-1.238	-745	-1.836	166	472	65	54	142	10,5	299	67	28
Boden Mittel 4	147	488	1.992	-1.150	-727	-1.785	149	449	65	53	139	10,5	274	65	26
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
41 H 1	323	1.013	4.581	-2.640	-1.739	-6.030	919	1.525	231	181	495	10,5	855	55	81
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
41 B 4 / 2	719	932	3.195	760	156	0	330	1.102	1.060	948	813	10,5	833	29	79
41 B 4 / 3	639	1.214	2.444	519	128	0	265	750	644	641	502	10,5	647	42	62
41 B 4 / 4	606	982	2.392	480	125	0	236	702	721	712	554	10,5	624	35	59
41 B 6 / 2	1.049	1.538	3.978	741	156	0	369	1.044	856	890	676	10,5	895	38	85
41 B 6 / 3	980	1.385	3.377	642	142	0	441	858	963	997	778	10,5	881	32	84
41 B 6 / 4	882	1.161	3.423	583	136	0	389	839	860	890	687	10,5	787	30	75
41 B 7 / 2	750	888	3.508	830	162	0	471	1.278	1.312	1.189	1.013	10,5	966	30	92
41 B 7 / 3	613	978	2.322	500	128	0	261	718	880	886	690	10,5	691	34	66
41 B 7 / 4	586	946	2.331	476	127	0	238	679	845	835	642	10,5	656	35	62
Boden Mittel 2	816	1.053	3.531	775	158	0	382	1.133	1.044	994	811	10,5	876	27	83
Boden Mittel 3	711	1.168	2.641	547	132	0	304	771	805	813	635	10,5	719	34	68
Boden Mittel 4	668	1.022	2.634	508	129	0	272	734	803	805	623	10,5	679	33	65
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
41 H 1	1.469	2.121	6.058	1.167	309	0	1.680	2.491	2.840	2.752	2.218	10,5	2092	29	199

Anlage 5.18: Berechnung der Ingestion für den Probanden 42

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	27.180	323.832	10,9	3.205	1,31	0,07	74,49	6,85	22,18	37,56	12,78
Nahrung	13.082	123.117	1,4	2.367	14,35	23,47	26,59	11,29	11,29	25,79	6,30
Differenz	14.097	200.715	9,6	837	-13,04	-23,39	47,90	-4,44	10,89	11,77	6,49
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
42 B 2 / 2	42.363	301.615	6,0	3.658	9,7	13,4	89	8,4	20	38	19
42 B 2 / 3	55.829	330.275	8,6	4.907	15,1	16,8	236	15,7	25	52	25
42 B 2 / 4	60.442	306.712	10,3	6.847	13,8	22,9	244	14,8	26	51	27
42 B 6 / 2	52.599	308.432	7,9	4.032	12,8	15,9	204	12,4	27	53	25
42 B 6 / 3	55.726	324.897	8,7	5.439	12,3	18,9	120	12,2	25	50	26
42 B 6 / 4	59.478	310.498	8,4	5.002	13,0	15,4	161	15,8	31	57	26
Boden Mittel 2	47.481	305.024	6,9	3.845	11,3	14,6	146	10,4	24	45	22
Boden Mittel 3	55.778	327.586	8,6	5.173	13,7	17,8	178	14,0	25	51	26
Boden Mittel 4	59.960	308.605	9,4	5.924	13,4	19,1	203	15,3	29	54	26
Boden VK 2 [%]	15	2	20	7	20	12	56	27	22	23	17
Boden VK 3 [%]	0	1	0	7	14	8	46	18	0	3	4
Boden VK 4 [%]	1	1	14	22	4	28	29	5	11	7	3
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
42 H 1	26.100	186.621	3,4	2.313	5,6	8,1	121	6,1	14,2	27	11,4

Anlage 5.18: Berechnung der Ingestion für den Probanden 42

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
42 B 2 / 2	333	665	1.607	229	-1.344	-1.750	540	-530	545	310	339	11,0	455	32	41
42 B 2 / 3	253	608	1.111	171	-864	-1.394	203	-282	441	226	260	11,0	332	48	30
42 B 2 / 4	233	654	926	122	-943	-1.020	196	-300	414	230	240	11,0	328	54	30
42 B 6 / 2	268	651	1.215	208	-1.016	-1.469	235	-358	401	223	264	11,0	340	48	31
42 B 6 / 3	253	618	1.104	154	-1.057	-1.240	398	-363	440	237	245	11,0	365	41	33
42 B 6 / 4	237	646	1.133	167	-1.001	-1.523	297	-281	353	207	250	11,0	332	49	30
Boden Mittel 2	297	658	1.384	218	-1.157	-1.597	327	-428	462	259	297	11,0	384	40	35
Boden Mittel 3	253	613	1.107	162	-951	-1.313	269	-318	440	231	252	11,0	343	45	31
Boden Mittel 4	235	650	1.019	141	-971	-1.222	236	-290	381	218	245	11,0	328	52	30
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
42 H 1	540	1.076	2.805	362	-2.337	-2.872	395	-734	769	439	571	11,0	632	40	57
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
42 B 2 / 2	642	1.074	1.834	876	135	6	839	817	1.111	990	667	11,0	983	36	89
42 B 2 / 3	487	980	1.268	653	87	4	315	435	898	722	513	11,0	697	44	63
42 B 2 / 4	450	1.056	1.057	468	94	3	305	462	844	733	474	11,0	650	43	59
42 B 6 / 2	517	1.050	1.387	795	102	5	365	552	818	712	521	11,0	746	42	68
42 B 6 / 3	488	997	1.260	589	106	4	619	559	896	755	482	11,0	738	36	67
42 B 6 / 4	457	1.043	1.294	641	100	5	461	433	719	662	493	11,0	689	43	63
Boden Mittel 2	572	1.062	1.580	833	116	5	509	659	942	828	585	11,0	841	40	76
Boden Mittel 3	487	989	1.264	619	95	4	418	490	897	738	497	11,0	711	40	65
Boden Mittel 4	453	1.049	1.164	541	97	4	367	447	777	695	483	11,0	664	43	60
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
42 H 1	1.041	1.735	3.202	1.386	234	9	615	1.131	1.566	1.401	1.126	11,0	1467	50	133



Anlage 5.19: Berechnung der Ingestion für den Probanden 43

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	13.805	276.973	1,50	4.356	4,37	0,00	46,13	0,00	8,44	16,68	5,31
Nahrung	10.559	158.453	0,93	875	6,16	8,04	18,93	7,08	6,96	15,52	4,18
Differenz	3.246	118.520	0,57	3.481	-1,79	-8,04	27,21	-7,08	1,48	1,16	1,13
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
43 B 4 / 2	91.152	313.358	9,8	5.900	23,0	22,0	121	25	46	91	42
43 B 4 / 3	78.847	322.806	9,9	5.789	22,7	20,4	108	25	48	94	42
43 B 4 / 4	81.908	327.757	10,3	6.126	23,3	23,0	130	25	47	92	42
43 B 5 / 2	32.499	357.119	3,5	2.302	9,7	10,0	79	6	10	22	9
43 B 5 / 3	39.627	326.003	6,6	3.920	12,6	15,5	104	12	17	35	14
43 B 5 / 4	46.782	282.326	8,0	4.281	14,5	18,5	151	15	24	49	20
Boden Mittel 2	61.825	335.239	6,6	4.101	16,4	16,0	100	15,2	28	56	25
Boden Mittel 3	59.237	324.404	8,3	4.854	17,6	17,9	106	18,5	32	64	28
Boden Mittel 4	64.345	305.041	9,1	5.203	18,9	20,8	141	20,2	35	71	31
Boden VK 2 [%]	67	9	66	62	57	53	30	89	90	87	93
Boden VK 3 [%]	47	1	28	27	40	19	3	50	68	65	70
Boden VK 4 [%]	39	11	18	25	33	15	10	36	47	44	52
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
24 H 1	22.314	193.310	3	3.044	5,3	6,2	68	5,4	9,4	18	8,4

Anlage 5.19: Berechnung der Ingestion für den Probanden 43

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
43 B 4 / 2	36	378	59	590	-78	-365	226	-287	32	13	27	6,5	398	46	61
43 B 4 / 3	41	367	58	601	-79	-395	252	-283	31	12	27	6,5	407	44	63
43 B 4 / 4	40	362	56	568	-77	-349	209	-278	32	13	27	6,5	380	48	58
43 B 5 / 2	100	332	163	1.512	-183	-801	345	-1.248	145	54	130	6,5	730	93	112
43 B 5 / 3	82	364	86	888	-141	-518	262	-593	90	33	80	6,5	504	67	78
43 B 5 / 4	69	420	72	813	-123	-434	180	-470	63	24	58	6,5	471	68	72
Boden Mittel 2	52	354	86	849	-109	-502	273	-466	53	21	45	6,5	492	63	76
Boden Mittel 3	55	365	69	717	-101	-448	257	-383	46	18	40	6,5	446	54	69
Boden Mittel 4	50	389	63	669	-94	-387	194	-350	42	16	36	6,5	417	57	64
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
24 H 1	145	613	188	1.143	-337	-1.292	397	-1.305	158	66	135	6,5	718	53	110
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
43 B 4 / 2	151	884	154	738	190	0	382	0	184	184	127	6,5	333	85	51
43 B 4 / 3	175	858	152	753	193	0	428	0	177	178	127	6,5	338	83	52
43 B 4 / 4	169	845	146	711	188	0	354	0	179	181	125	6,5	322	83	50
43 B 5 / 2	425	776	427	1.892	449	0	585	0	823	768	608	6,5	750	61	115
43 B 5 / 3	348	850	227	1.111	346	0	444	0	509	480	375	6,5	521	54	80
43 B 5 / 4	295	981	189	1.018	301	0	306	0	357	342	271	6,5	451	70	69
Boden Mittel 2	223	826	226	1.062	267	0	462	0	301	297	210	6,5	431	71	66
Boden Mittel 3	233	854	182	897	248	0	436	0	263	260	189	6,5	396	71	61
Boden Mittel 4	215	908	165	837	231	0	328	0	239	236	171	6,5	370	78	57
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
24 H 1	619	1.433	491	1.431	826	0	674	0	898	953	632	6,5	884	39	136

Anlage 5.20: Berechnung der Ingestion für den Probanden 44

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	24048	220624	6,47	24829	2,89	7,20	140	10,01	27,93	54,25	17,31
Nahrung	12238	131904	1,07	8463	3,42	19,27	39	13,07	8,55	16,73	4,59
Differenz	11810	88719	5,40	16366	-0,53	-12,07	101	-3,05	19,38	37,52	12,72
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
34 B 1 / 2	44.153	340.636	5,29	2.662	9,99	6,86	46	6,71	19,7	22,5	15,1
34 B 1 / 3	55.639	272.054	7,05	3.513	11,70	9,69	62	10,11	19,7	22,4	15,0
34 B 1 / 4	61.905	267.792	6,08	4.655	10,29	8,76	83	8,20	18,2	20,9	14,1
34 B 3 / 2	45.649	269.902	6,06	3.196	9,65	10,94	72	7,83	23,4	27,1	18,8
34 B 3 / 3	51.117	304.229	7,47	3.967	11,02	13,74	97	10,80	24,2	27,5	19,2
34 B 3 / 4	49.777	218.582	7,42	4.261	10,77	15,27	120	11,81	35,6	42,1	28,9
Boden Mittel 2	44.901	305.269	5,67	2.929	9,82	8,90	59	7,27	21,6	24,8	17,0
Boden Mittel 3	53.378	288.142	7,26	3.740	11,36	11,71	80	10,45	22,0	24,9	17,1
Boden Mittel 4	55.841	243.187	6,75	4.458	10,53	12,01	101	10,00	26,9	31,5	21,5
Doden VK 2 [%]	2	16	10	13	2	32	32	11	12	13	15
Doden VK 3 [%]	6	8	4	9	4	24	31	5	14	15	18
Doden VK 4 [%]	15	14	14	6	3	38	25	26	46	48	49
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
34 H 1	18.722	119.373	2,5	1.666	4,2	4,4	120	4,3	24	43	13,4

Anlage 5.20: Berechnung der Ingestion für den Probanden 44

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
34 B 1 / 2	267	260	1022	6149	-53	-1761	2205	-455	982	1671	841	10	1036	68	104
34 B 1 / 3	212	326	767	4659	-45	-1246	1627	-302	983	1677	850	10	920	62	92
34 B 1 / 4	191	331	888	3516	-52	-1378	1216	-372	1068	1798	903	10	914	59	91
34 B 3 / 2	259	329	891	5121	-55	-1103	1395	-390	828	1382	677	10	823	55	82
34 B 3 / 3	231	292	723	4126	-48	-879	1038	-283	801	1364	662	10	730	54	73
34 B 3 / 4	237	406	729	3841	-49	-791	845	-258	544	890	440	10	585	42	58
Boden Mittel 2	263	291	952	5588	-54	-1356	1709	-420	898	1513	750	10	911	61	91
Boden Mittel 3	221	308	744	4376	-47	-1030	1267	-292	883	1505	744	10	810	58	81
Boden Mittel 4	211	365	801	3671	-50	-1005	997	-305	721	1191	592	10	697	49	70
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
34 H 1	631	743	2.182	9.826	-127	-2.716	842	-708	814	869	953	10	809	14	81
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
34 B 1 / 2	545	648	1224	9328	289	1049	3058	1492	1415	2416	1145	10	1444	56	144
34 B 1 / 3	432	811	918	7067	247	742	2257	991	1416	2425	1157	10	1239	55	124
34 B 1 / 4	388	824	1064	5334	280	822	1687	1221	1538	2600	1228	10	1264	50	126
34 B 3 / 2	527	817	1067	7769	299	657	1935	1279	1193	1998	921	10	1155	45	115
34 B 3 / 3	470	725	866	6260	262	524	1439	927	1154	1973	901	10	998	47	100
34 B 3 / 4	483	1009	872	5827	268	471	1172	848	784	1287	599	10	836	34	84
Boden Mittel 2	536	723	1140	8478	294	808	2370	1378	1294	2188	1020	10	1273	50	127
Boden Mittel 3	451	766	891	6639	254	614	1757	958	1272	2176	1013	10	1100	50	110
Boden Mittel 4	431	907	959	5570	274	599	1383	1001	1039	1722	805	10	983	39	98
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
34 H 1	1.284	1.848	2.613	14.907	689	1.619	1.168	2.322	1.174	1.256	1.296	10	1620	33	162

Anlage 5.21: Berechnung der Ingestion für den Probanden 45

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	20.644	310.212	10,22	4.590	0,77	1,13	102,32	34,32	19,93	38,78	12,95
Nahrung	12.976	155.850	1,75	12.987	11,15	14,16	25,23	11,57	11,11	18,91	5,46
Differenz	7.668	154.362	8,47	-8.397	-10,38	-13,02	77,10	22,75	8,83	19,88	7,49
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
45 B 3 / 2	43.139	550.765	5,4	3.838	9,0	13,6	170	12,1	30	55	25
45 B 3 / 3	45.795	324.990	6,3	4.358	10,7	14,3	196	13,5	28	51	23
45 B 3 / 4	45.487	299.638	6,7	4.318	10,6	15,7	246	14,3	29	52	23
45 B 4 / 2	35.271	278.823	4,5	2.389	7,8	10,1	93	8,1	18	36	16
45 B 4 / 3	47.865	308.862	6,7	3.489	10,5	15,3	176	11,6	26	47	23
45 B 4 / 4	51.190	310.411	7,6	3.938	11	17	209	13,2	29	53	26
Boden Mittel 2	39.205	414.794	5,0	3.113	8,4	11,8	131	10,1	24	46	21
Boden Mittel 3	46.830	316.926	6,5	3.923	10,6	14,8	186	12,6	27	49	23
Boden Mittel 4	48.338	305.024	7,1	4.128	10,9	16,5	227	13,8	29	52	25
Boden VK 2 [%]	14	46	13	33	10	20	42	28	35	31	33
Boden VK 3 [%]	3	4	4	16	1	5	7	11	5	6	1
Boden VK 4 [%]	8	2	9	7	4	8	12	6	1	1	8
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
45 H 1	16.934	106.678	2,2	1.583	3,8	4,6	87	3,9	8,8	17	7,1

Anlage 5.21: Berechnung der Ingestion für den Probanden 45

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
45 B 3 / 2	178	280	1.564	-2.188	-1.158	-961	455	1.877	292	359	294	10,0	310	30	31
45 B 3 / 3	167	475	1.345	-1.927	-974	-909	394	1.682	316	389	327	10,0	345	30	34
45 B 3 / 4	169	515	1.268	-1.945	-977	-832	314	1.588	309	382	321	10,0	335	34	33
45 B 4 / 2	217	554	1.867	-3.515	-1.339	-1.287	833	2.798	486	557	472	10,0	520	38	52
45 B 4 / 3	160	500	1.270	-2.407	-990	-849	437	1.959	340	424	322	10,0	364	33	36
45 B 4 / 4	150	497	1.119	-2.132	-920	-748	370	1.723	305	378	287	10,0	331	35	33
Boden Mittel 2	196	372	1.702	-2.697	-1.242	-1.100	588	2.247	365	437	362	10,0	387	33	39
Boden Mittel 3	164	487	1.307	-2.140	-982	-878	414	1.810	327	406	325	10,0	354	31	35
Boden Mittel 4	159	506	1.189	-2.034	-948	-787	339	1.653	307	380	303	10,0	332	34	33
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
45 H 1	453	1.447	3.811	-5.305	-2.701	-2.829	886	5.836	1.007	1.162	1.056	10,0	1112	19	111
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
45 B 3 / 2	479	563	1.886	1.196	86	83	603	2.832	659	701	508	10,0	824	59	82
45 B 3 / 3	451	955	1.623	1.053	72	79	523	2.538	712	759	566	10,0	830	46	83
45 B 3 / 4	454	1.035	1.530	1.063	72	72	416	2.395	697	746	554	10,0	812	46	81
45 B 4 / 2	585	1.113	2.253	1.921	99	112	1.106	4.220	1.098	1.087	816	10,0	1247	45	125
45 B 4 / 3	431	1.004	1.532	1.316	73	74	580	2.955	769	827	557	10,0	877	44	88
45 B 4 / 4	403	999	1.350	1.166	68	65	490	2.598	688	737	496	10,0	791	44	79
Boden Mittel 2	527	748	2.053	1.474	92	96	781	3.389	823	852	626	10,0	986	52	99
Boden Mittel 3	441	979	1.576	1.170	73	76	550	2.731	739	792	562	10,0	851	44	85
Boden Mittel 4	427	1.017	1.434	1.112	70	68	450	2.493	692	742	524	10,0	800	45	80
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
45 H 1	1.219	2.908	4.597	2.900	200	246	1.175	8.804	2.274	2.267	1.827	10,0	2396	46	240

Anlage 5.22: Berechnung der Ingestion für den Probanden 46

	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd
<b>Elementbilanz [µg]</b>											
Stuhl	20086	239713	2,61	2631	6,10	0,00	62,98	0,00	15,05	29,87	9,52
Nahrung	10189	76512	1,43	1055	7,45	6,30	21,83	5,79	8,29	15,80	4,35
Differenz	9897	163201	1,18	1577	-1,35	-6,30	41,15	-5,79	6,77	14,07	5,17
<b>Konzentration im Boden [µg/g]</b>											
46 B 1 / 2	36.165	373.145	4,6	2.744	8,0	10,4	106	8,5	17,2	34	15,4
46 B 1 / 3	44.534	295.130	6,7	4.146	10,0	14,2	171	13,6	27,3	52	25,2
46 B 1 / 4	47.125	285.163	7,3	4.447	10,7	17,0	270	15,9	28,5	54	26,4
46 B 4 / 2	27.561	460.096	2,4	1.451	5,1	3,9	45	3,6	4,7	10	4,4
46 B 4 / 3	31.394	402.363	4,1	2.944	6,6	6,8	90	8,2	7,5	16	7,6
46 B 4 / 4	48.640	365.585	9,2	6.902	10,6	19,0	443	22,1	18,3	43	20,5
46 B 5 / 2	29.048	416.015	2,6	1.470	6,1	4,0	40	4,9	6,2	13	5,4
41 B 4 / 2	35.372	369.487	4,3	2.676	7,5	9,9	155	8,7	16,2	34	14,6
41 B 4 / 3	39.814	283.712	5,6	3.917	9,2	12,8	193	12,8	26,7	51	23,6
Boden Mittel 2	30.925	416.419	3,2	1.888	6,4	6,1	64	5,6	9,4	19	8,4
Boden Mittel 3	37.100	355.660	5,0	3.255	8,0	10,3	139	10,2	17,0	34	15,8
Boden Mittel 4	45.193	311.486	7,4	5.089	10,2	16,2	302	17,0	24,5	49	23,5
Boden VK 2 [%]	15	10	38	39	23	60	57	45	73	68	72
Boden VK 3 [%]	18	15	29	24	22	36	31	29	59	52	56
Boden VK 4 [%]	10	15	25	31	8	20	42	28	22	11	12
<b>Konzentration im Hausstaub [µg/g]</b>											
46 H 1	9.818	57.255	1,4	1.129	2,4	3,3	29	2,8	6,0	10,6	4,5

Anlage 5.22: Berechnung der Ingestion für den Probanden 46

Ingestionen	berechnet über											Studien- dauer [d]	Mittelung über Elemente		Ingestions- rate [mg/d]
	Al	Si	Sc	Ti	Ga	Y	Zr	Nb	La	Ce	Nd		Mittel [mg]	VK [%]	
<b>Bodeningestion [mg Boden]</b>															
46 B 1 / 2	274	437	258	575	-169	-605	389	-681	394	413	335	8,5	384	26	45
46 B 1 / 3	222	553	175	380	-135	-442	241	-425	247	270	205	8,5	287	43	34
46 B 1 / 4	210	572	162	355	-126	-370	153	-363	238	261	196	8,5	268	52	32
46 B 4 / 2	359	355	498	1.087	-265	-1.604	918	-1.617	1.435	1.347	1.171	8,5	896	49	105
46 B 4 / 3	315	406	286	536	-205	-930	455	-702	907	859	680	8,5	556	43	65
46 B 4 / 4	203	446	128	228	-128	-332	93	-262	370	326	252	8,5	256	47	30
46 B 5 / 2	341	392	454	1.073	-220	-1.555	1.022	-1.194	1.094	1.085	960	8,5	803	42	94
41 B 4 / 2	280	442	277	589	-179	-638	265	-663	417	408	355	8,5	379	29	45
41 B 4 / 3	249	575	212	403	-147	-493	213	-451	254	276	219	8,5	300	42	35
Boden Mittel 2	320	392	371	835	-211	-1.028	647	-1.026	723	735	615	8,5	580	33	68
Boden Mittel 3	267	459	234	484	-168	-612	297	-567	398	410	327	8,5	360	25	42
Boden Mittel 4	219	524	160	310	-133	-388	136	-341	277	285	220	8,5	266	45	31
<b>Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
46 H 1	1.008	2.850	870	1.396	-554	-1.931	1.418	-2.091	1.135	1.324	1.160	8,5	1187	17	140
<b>Obergrenze der Bodeningestion [mg Boden]</b>															
46 B 1 / 2	555	642	570	959	764	0	596	0	877	877	617	8,5	718	21	84
46 B 1 / 3	451	812	388	635	610	0	369	0	550	574	377	8,5	530	28	62
46 B 1 / 4	426	841	357	592	568	0	233	0	529	555	360	8,5	496	36	58
46 B 4 / 2	729	521	1.100	1.814	1.194	0	1.405	0	3.192	2.860	2.157	8,5	1664	55	196
46 B 4 / 3	640	596	633	894	922	0	697	0	2.018	1.824	1.252	8,5	1053	51	124
46 B 4 / 4	413	656	282	381	576	0	142	0	824	692	463	8,5	492	44	58
46 B 5 / 2	691	576	1.003	1.790	993	0	1.564	0	2.434	2.302	1.767	8,5	1458	46	172
41 B 4 / 2	568	649	611	984	808	0	406	0	928	867	654	8,5	719	26	85
41 B 4 / 3	504	845	467	672	662	0	326	0	565	586	403	8,5	559	28	66
Boden Mittel 2	650	576	819	1.394	951	0	990	0	1.610	1.559	1.132	8,5	1076	35	127
Boden Mittel 3	541	674	517	808	758	0	454	0	885	871	602	8,5	679	24	80
Boden Mittel 4	444	770	354	517	599	0	209	0	616	606	405	8,5	502	33	59
<b>Obergrenze der Hausstaubingestion [mg Hausstaub]</b>															
46 H 1	2.046	4.187	1.921	2.331	2.495	0	2.170	0	2.525	2.810	2.135	8,5	2513	27	296