



Aalborg Universitet

AALBORG UNIVERSITY
DENMARK

PCB eksponering i Farum Midtpunkt

Måling i boliger og i blod

Meyer, Harald William; Frederiksen, Marie; Ebbehøj, Niels Erik; Gunnarsen, Lars; Brauer, Charlotte; Kolarik, Barbara; Göen, Thomas; Müller, Johannes; Jacobsen, Peter

Publication date:
2012

Document Version
Accepteret manuscript, peer-review version

[Link to publication from Aalborg University](#)

Citation for published version (APA):

Meyer, H. W., Frederiksen, M., Ebbehøj, N. E., Gunnarsen, L., Brauer, C., Kolarik, B., Göen, T., Müller, J., & Jacobsen, P. (2012). *PCB eksponering i Farum Midtpunkt: Måling i boliger og i blod*. Sundhedsstyrelsen.

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal -

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us at vbn@aub.aau.dk providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

PCB EKSPONERING I
FARUM MIDTPUNKT
– måling i boliger og i blod

2012

PCB eksponering i Farum Midtpunkt - måling i boliger og i blod

© Sundhedsstyrelsen, 2012. Publikationen kan frit refereres med tydelig kildeangivelse.

Sundhedsstyrelsen har finansieret studiet af PCB i indeklima og i blodprøver i Farum, 2011. Studiet er foretaget i et samarbejde med Institut for Arbejds-, Social- og Miljømedicin (IPASUM), Bispebjerg Hospital¹, Statens Byggeforskningsinstitut, Aalborg Universitet², Erlangen, Tyskland³ og Sundhedsstyrelsen⁴.

Nærværende rapport udgør den første deskriptive afrapportering af resultaterne, som er gennemskrevet og tilrettet af følgende forfattere: Harald Meyer¹, Marie Frederiksen², Niels Ebbehøj¹, Lars Gunnarsen², Charlotte Brauer¹, Barbara Kolarik², Thomas Göen³, Johannes Müller³ og Peter Jacobsen¹.

Følgende fra Sundhedsstyrelsen har deltaget i en baggrundsgruppe omkring studiet og udarbejdelsen af rapporten: Niss Skov Nielsen⁴, Kåre Kristiansen⁴, Lis Keiding⁴ og Henrik L. Hansen⁴.

Sundhedsstyrelsen

Islands Brygge 67

2300 København S

URL: <http://www.sst.dk>

Emneord: PCB, Farum Midtpunkt, indeklima, blodværdier

Sprog: Dansk

Kategori: Faglig rådgivning

Version: 1.0

Versionsdato: 10.01.2012

Format: pdf

Elektronisk ISBN: 978-87-7104-323-5

Udgivet af Sundhedsstyrelsen, januar 2012.

Indhold

1	Resumé	4
2	Formål	4
3	Baggrund	5
4	Materiale og metoder	5
	4.1 Spørgeskema og blodprøver	6
	4.2 PCB-analyser i plasma	6
	4.3 Måling af PCB i indeluften og fugerne	6
	4.4 Statistik	8
5	Resultater	8
	5.1 Målinger i luft og i fuger	8
	5.2 Målinger i plasma.	12
6	Afsluttende bemærkninger	16

1 Resumé

I marts og april 2011 blev i alt 104 lejligheder og 289 beboere fra Farum Midtpunkt undersøgt for niveauer af PolyChlorerede Biphenyler (PCB) i henholdsvis fuger og indeluft i lejlighederne, og i blodplasma. Til analyserne i denne rapport indgik 273 beboere, 139 fra PCB-forurenede lejligheder og 134 fra ikke-forurenede lejligheder. Der blev indsamlet luftprøver fra 83 forurenede og 21 ikke-forurenede lejligheder og fugeprøver fra 20 forurenede lejligheder. Ni ud af 24 målte PCB-kongenere var under detektionsgrænsen i luften, inkl. de to mest toksiske kongenere nr. 126 og 169. For de kongenere der kunne påvises i mere end blot nogle få lejligheder, var niveauerne signifikant højere i de forurenede lejligheder.

I plasma blev der analyseret for 27 forskellige kongenere. For de 15 undersøgte ikke-dioxin-lignende kongenere var der signifikant højere niveau blandt deltagerne fra de forurenede lejligheder, undtagen for nr. 183 og 190, samt for nr. 182 som alle lå under detektionsgrænsen. For ni ud af tolv dioxin-lignende PCB-forbindelser var alle, eller næsten alle prøver under detektionsgrænsen. For nr. 105 og 118 sås signifikant højere niveau blandt eksponerede.

Mænd havde et lidt højere niveau end kvinderne, og der var stigende plasma PCB med stigende alder.

Da der endnu ikke er gennemført detaljerede analyser med kontrol for potentielt skævvridende faktorer som fx køn, alder, body mass index, ammeperioder, beboelseslængde og kost, må denne rapport ses som en sammenfatning af rådata, hvor definitive konklusioner om sammenhænge mellem de mange forskellige undersøgte faktorer endnu ikke kan drages.

Mål for helbredseffekter af PCB eksponering i indeklimaet indgår ikke i undersøgelsen.

2 Formål

Det er formålet med indeværende studie:

1. At kortlægge niveauerne af PCB i indeluft i boliger med og uden PCB i fugerne, og undersøge om PCB-niveauet i blodet er højere hos de PCB eksponerede.
2. At sammenligne blodniveauerne af PCB hos mænd og kvinder, samt illustrere aldersfordeling.
3. At analysere sammenhænge mellem PCB-niveauer i fuger, i indeluft og i blod.
4. Ved at vurdere fordelingen af de forskellige PCB-kongenere i blodet at skelne hvilke PCB-typer der stammer fra kosten og hvilke der stammer fra indeklimaet.

I denne målerapport er det primært formål 1) og 2) som afrapporteres. Til dette benyttes simpel beskrivende statistik uden kontrol for potentielt skævvridende faktorer. Alle punkter i formålet vil blive beskrevet i videnskabelige artikler i nær fremtid.

3 Baggrund

Polychlorerede biphenyler (PCB) har været anvendt som blødgørere i forskellige byggematerialer, især i fugemateriale, i danske bygninger fra 1950'erne til medio 1970'erne. Teoretisk set findes der 209 forskellige klorerede biphenyler, såkaldte kongenere, og af disse skønner man, at de kommercielle blandinger samlet set har indeholdt ca. 140 af de teoretisk mulige kongenere. De har været anvendt bl.a. i transformatorer, til brandhæmning, og som blødgørere i fugemasser. Fælles for PCB-forbindelser i byggematerialer er, at de kan frigives til omgivelserne, og at PCB efter årtier stadig kan udgøre en betragtelig del af materialet. PCB-forbindelser er svært nedbrydelige og ophobes i miljøet, i fødekæden og i mennesker. På befolkningsniveau stammer PCB i mennesker overvejende fra føden, særlig fisk, mælkeprodukter og kød, men på det individuelle niveau tyder undersøgelser fra Tyskland og Sverige på, at PCB også i væsentlig omfang kan stamme fra indeklimaet, hvis man i længere tid har opholdt sig i bygninger med PCB-holdige byggematerialer. Frigivelse af de forskellige kongenere til luften fra bygningsmaterialer afhænger bl.a. af koncentrationen i materialet og damptrykket for de enkelte kongenere. Det er tidligere vist, at det overvejende er lavt klorerede og dermed nogle af de ikke-dioxin lignende PCB-forbindelser, som primært afdamper og forekommer i de højeste koncentrationer i indeluften.

Helbredseffekter af PCB omfatter skader på hud og reproduktion. På baggrund af dyreforsøg mistænkes PCB også at kunne påvirke bl.a. lever, mave-tarm kanal, skjoldbruskkirtel, immunapparatet og det hormonelle system, samt at være kræftfremkaldende. Ud fra den nuværende viden er det de såkaldt dioxin-lignende kongenere, som er mest toksiske. Kendskab til deres effekt har man primært fra studier af indtagelse via kosten både hos mennesker og forsøgsdyr. Studier med forsøgsdyr og oprensede PCB-blandinger og enkelte kongener har ligeledes vist toksiske effekter af de ikke-dioxinlignende kongenere.

Det er ufuldstændigt belyst i hvor høj grad koncentrationerne af PCB i bygningsmaterialer og luft afspejles i blodniveauer hos bygningsbrugerne, og om der er mulige helbredseffekter heraf.

4 Materiale og metoder

I Farum Midtpunkt, som er bygget over en ca. 3-årig periode i 1970 - 1974, er hele boligblokke opført enten med (Birkhøjterrasserne) eller uden PCB-holdigt fugemateriale (Paltholm-, Bybæk- og Nygaardterrasserne), i det efterfølgende kaldet henholdsvis forurenede og ikke-forurenede blokke.

Som led i screening for PCB-holdige byggematerialer i KAB's boligbyggeri blev der i Farum Midtpunkt i sommeren 2009 registreret fugemateriale med højt PCB-indhold. Der blev ligeledes målt forhøjede værdier i indeluften. For at nedbringe koncentrationerne og for at sikre, at beboerne ikke kunne komme i direkte kontakt med fugerne, blev der i lejlighederne i efteråret 2009 gennemført en grundig forsegling af alle synlige fuger med aluminiumstape og trælist. Forseglingen nedbragte de gennemsnitlige koncentrationer af PCB i indeluften med ca. 40%.

Indeværende undersøgelse er baseret på målinger af forekomsten af PCB i bygningerne, spørgeskema om både bygningsforhold, brug af boligen, bolighistorik, kost og livsstil, samt blodprøver analyseret for PCB. Undersøgelserne blev gennemført marts-april 2011.

4.1 Spørgeskema og blodprøver

Samtlige beboere fra de beboede lejligheder (ca. 200 lejligheder fra Birkhøjterrasserne og ca. 1300 fra de øvrige blokke) blev inviteret til at deltage i undersøgelsen. Udover en skriftlig invitation og information på boligforeningens hjemmeside, blev der afholdt et beboermøde i Farum Midtpunkt, hvor beboerne blev informeret om projektet, og havde mulighed for at stille spørgsmål. Deltagerne ringede og aftalte tidspunkt for udfyldelse af spørgeskema og samtykkeerklæring samt blodprøvetagning.

Det var frivilligt at deltage i undersøgelsen, og projektet er godkendt af De Videnskabetiske Komitéer i Region Hovedstaden (protokol nr.: H-4-2011-001)

Undersøgelse af deltagerne blev udført i lokaler i Farum Midtpunkt. Ud over projektets læger fra Bispebjerg Arbejds- og Miljømedicinske afdeling deltog 7 studerende indenfor det sundhedsfaglige område med erfaring indenfor større feltstudier og blodprøvetagning. Blodprøverne blev taget i EDTA coatede glas, vippet og centrifugeret, hvorefter plasma blev afpipetteret til specialglas leveret fra Institut for Arbejds-, Social- og Miljømedicin, Erlangen (IPASUM). Plasmaprøverne blev opbevaret 1-2 dage i køleskab inden nedfrysning til -20 gr. C. Prøverne blev fragtet i frossen tilstand til IPASUM, Erlangen, Tyskland.

Spørgeskemaet indeholdt spørgsmål om alder og antal års ophold i bebyggelsen, daglige antal timer væk fra boligen, om beboerne sover for åbent vindue, tobaksforbrug, kvantificering af indtagelse af udvalgte PCB-holdige fødevarer (fisk, kød og mejeriprodukter), for kvindernes vedkommende antal fødsler og antal måneders amning for hvert barn.

Der deltog 289 personer i undersøgelsen, 138 fra PCB-forureneede blokke (herefter kaldet "eksponerede") og 151 fra de øvrige blokke (herefter kaldet "kontroller"). Det viste sig ud fra spørgeskemabesvarelserne at 15 af kontrollerne tidligere havde boet i Birkhøjterrasserne. 14 af disse blev ekskluderet af analyserne, én blev overført til gruppen af eksponerede, da han indtil en måned før blodprøveudtagningen havde boet i mange år i Birkhøjterrasserne. Herudover blev to ekskluderet fra kontrolgruppen, da der tidligere i deres blok var fundet lave koncentrationer af PCB i fugematerialet. Den endelige population blev dermed reduceret til 273; 139 eksponerede og 134 kontroller.

4.2 PCB-analyser i plasma

Analyserne blev udført på IPASUM, Erlangen, Tyskland, ved hjælp af gaschromatografi-massespektrometri system (GC instrument: Agilent GC 7890A, MS instrument: Agilent MSD5975C). For yderligere detaljer om standard opløsninger, behandling af plasmaprøverne og kvalitetskontrol: Se venligst appendix 1. Ved de statistiske analyser er målinger under detektionsgrænsen sat til $\frac{1}{2}$ x detektionsgrænsen (LOQ) = 0,005 µg/l.

4.3 Måling af PCB i indeluften og fugerne

Da beboerne mødte op til blodprøvetagningen, kunne de tilmelde sig prøvetagning i deres hjem. Alle frivillige fra de forureneede blokke blev accepteret for prøvetagning; men for kontrolblokkene blev bygningsundersøgelserne begrænset til 21 lejligheder, da der tidligere var gennemført en delvis kortlægning med målinger i disse. Udvælgelsen blev baseret på først til mølle princip-

pet. På tidspunktet for prøveudtagningen, var omkring 200 af 300 forurenede lejligheder beboede, og 83 af disse husstande indvilligede i at få målinger foretaget i deres hjem.

To studentermedhjælpere indsamlede prøver i boligerne efter grundig instruktion i udtagning af fuge- og luftprøver. De besøgte lejlighederne i perioden marts til april 2011, besøgene i den enkelte lejlighed blev foretaget af den samme studentermedhjælper. Under besøget blev måleudstyret præsenteret for beboerne, medhjælperen opstillede det og udtog prøver af fugerne. Besøget varede ca. 1/2 time.

Luftprøverne blev udtaget ved hjælp af pumper (Sensidine Gilair 5, Sensidine LP, Florida, USA) med et flow på 1,9 l/min ± 10%. Pumperne blev placeret i støjreducerende bokse for ikke at forstyrre beboerne. Pumperne blev forbundet til XAD-2 adsorberende rør (SKC Inc., Eighty Four, PA, USA) og udstyret med små PTFE dyser for at sikre, at luften havde laminar strømning. Luften blev udtaget ca. 1 m over gulvet i stuen i løbet af ca. 24 timer (interval fra 16 til 47 timer), hvilket resulterede i en gennemsnitlig prøvemængde på 2,7 m³ (interval fra 1,8 til 5,4 m³). Samplerne blev placeret med en minimumsafstand til større faste overflader på ca. 30 cm, således at vægge og andre overflader ikke direkte påvirkede målingerne. Der blev dog også taget hensyn til beboernes mulighed for at bevæge sig frit omkring i boligen. Alle prøver blev opbevaret ved -20°C grader indtil de blev analyseret. Efter prøvetagningen blev udstyret nedtaget. Pumperne blev recalibreret før og efter hver prøvetagning af medhjælperne med en sæbeboble flowmåler.

Prøver af den elastiske fugemasse blev taget i 20 lejligheder tilfældigt udvalgt blandt de 83 forurenede lejligheder. Lister og tape blev afmonteret før prøvetagning og cirka 2 g fugemasse blev skåret ud med en hobbykniv med et frisk blad hver gang. Prøverne blev pakket ind i aluminiumsfolie, og blev placeret i en forsejlet Rilsan pose og opbevaret ved -20°C grader, indtil analysen kunne foretages. Efter prøveudtagningen, blev den midlertidige dækning af fugemassen genoprettet med nyt aluminiumstape og trælisterne blev igen monteret. Fugerne blev ikke retableret, de blev blot tildækket efter prøvetagning.

Ud af de potentielt 209 forskellige PCB-kongenere blev udvalgt 27 kongenere til undersøgelse i blod (plasma): De 6 indikator-kongenere, som fra udenlandske undersøgelser vurderes at udgøre et godt mål for den samlede mængde PCB (nr. 28, 52, 101, 138, 153 og 180). Herudover målt alle 12 dioxinlignende (DL) kongenere (nr. 77, 81, 105, 114, 118, 123, 126, 156, 157, 167, 169, og 189). Endelig undersøgtes yderligere 9 ikke-DL-kongenere: (nr. 66, 74, 99, 170, 178, 182, 183, 187, og 190).

Af analysetekniske grunde blev 24 kongenere udvalgt blandt disse til analyse i bygningerne. I forhold til analysen af plasma blev kongenerne nr. 178, 182 og 190 ikke medtaget. Analyserne blev udført af Eurofins Product Testing (Galten, Danmark).

Prøverne af fugemassen blev homogeniseret og kulstof-13 mærkede interne standarder blev tilsat. Fuge- og luftprøverne blev ekstraheret med toluen og renses på en kiselgel kolonne imprægneret med svovlsyre samt aluminiumoxid, hvorefter de rensede ekstrakter blev analyseret ved GC-HRMS. Metoden fulgte ISO 17025 standarden. Kvantificeringsgrænsen blev 0,2 - 4 ng/-prøve for de enkelte PCB-kongenere, hvilket resulterede i LOQ (kvantificeringsgrænse) på ca. 0,07 - 1,5 ng/m³. I fugemasseprøverne, var der nogle kromatografiske interferenser hvilket resulterede i lidt forhøjede LOQs af nogle af de højt klorerede kongenere i visse prøver, men PCB-niveauet i fugemassen var generelt højere end LOQ.

Til dataanalysen, blev tre summerede mål brugt: ΣPCB_{24} = summen af alle analyserede kongenere, $\text{PCB}_{\text{total}}(6) = 5 \times \Sigma\text{PCB}_6 = 5 \times$ summen af PCB-28, 52, 101, 138, 153 og 180 og $\text{PCB}_{\text{total}}(6+1) = 5 \times \Sigma\text{PCB}_{6+1} = 5 \times$ summen af PCB-28, 52, 101, 118, 138, 153 og 180 (hvor DL-kongenere 118 er inkluderet). $\text{PCB}_{\text{total}}(6+1)$ vil normalt kun være lidt større end $\text{PCB}_{\text{total}}(6)$.

Det anbefales dog ofte at medtage den dioxinlignende kongener nummer 118, når PCB indholdet skal vurderes, for dermed også at have en enkelt dioxinlignende kongener med i analysen. Denne udgør ifølge tyske vurderinger et acceptabelt gennemsnitligt mål for tilstedeværelsen af DL-PCB typer. Under beregningerne var resultater <LOQ sat til 0.

4.4 Statistik

Da data ikke er normalfordelt har vi valgt at benytte non-parametrisk statistik i form af Mann Whitney U, samt præsentation af medianer (midt-værdier) og percentiler. Dog er gennemsnitsværdier også fremlagt til sammenligning.

5 Resultater

5.1 Målinger i luft og i fuger

Koncentrationer af de 24 forskellige PCB-kongenerer, summen af dem og total PCB er vist i tabel 1-3. Tabel 1 viser PCB koncentrationer målt i indeluften i de PCB-forurenede lejligheder og tabel 2 viser indeluftkoncentrationer målt i lejlighederne uden PCB i byggematerialer. For alle koncentrationer af de målte kongenerer, som var over detektionsgrænsen i indeluften, var forskellen mellem koncentrationer målt i de forurenede og ikke-forurenede lejligheder statistisk signifikante (Mann Whitney U test, $p < 0.001$). Jf. tabel 1 og tabel 2 er kongenerne 126, 138, 156, 157, 167, 169, 170, 180 og 189 hverken blevet fundet i de forurenede eller i de ikke-forurenede lejligheds indeluft. Kongenerne 153, 183 og 187 blev kun fundet i lave koncentrationer i få af de forurenede lejligheder, og for disse kongenerer var forskellene mellem de forurenede og ikke-forurenede lejligheder ikke statistisk signifikante.

Resultaterne fra målinger i fugemasse er vist i tabel 3. Da der kun er udtaget fugeprøver i de PCB-forurenede lejligheder er der intet sammenligningsgrundlag fra de ikke-forurenede lejligheder. For PCB_{total} (6+1) viser medianen, at PCB indholdet udgør ca. 21% af fugematerialet. Når man sammenligner med luftmålingerne fremgår det klart, at de højt klorerede forbindelser i fugemassen ikke, eller kun i begrænset omfang, genfindes i luften.

Tabel 1

Luftmålinger i de PCB-forurenede lejligheder, N=83. Der præsenteres 24 forskellige kongenere samt summerede mål og approksimerede total-mål ud fra indikator-kongenere (se i øvrigt tekst).

PCB kongener	Koncentration, ng/m ³					
	Gennemsnit	Minimum	25 percentil	Median	75 percentil	Maksimum
PCB28	80,78	14,86	41,80	61,39	104,66	295,85
PCB52	112,34	16,54	56,06	94,57	136,96	425,64
PCB66	40,52	5,00	19,88	33,74	53,39	148,19
PCB74	28,88	3,73	14,37	23,68	37,19	105,62
PCB77*	0,51	0,06	0,17	0,33	0,56	2,61
PCB81*	0,03	< LOQ	< LOQ	0,02	0,03	0,29
PCB99	6,13	0,78	2,89	4,74	7,82	20,71
PCB101	12,87	1,78	5,91	8,90	16,97	47,08
PCB105*	0,77	0,10	0,24	0,48	0,80	4,15
PCB114*	0,10	< LOQ	0,04	0,06	0,12	0,52
PCB118*	1,75	< LOQ	0,67	1,18	1,99	9,09
PCB123*	0,06	< LOQ	< LOQ	0,05	0,08	0,57
PCB126*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB138	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB153	0,03	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	1,48
PCB156*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB157*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB167*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB169*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB170	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB180	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB183	0,03	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,45
PCB187	0,10	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	1,11
PCB189*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Sum 24	284,90	43,31	150,13	235,77	350,57	1060,02
Sum_DL¹	3,21	0,18	1,20	2,19	3,53	16,53
Sum_NDL²	281,68	43,10	146,96	233,73	349,21	1043,48
Total PCB (6)	1030,15	167,97	531,21	858,75	1333,83	3842,88
Total PCB (6+1)	1038,90	167,95	534,55	861,95	1343,75	3888,30

¹Dioxin-lignende kongenere: 77, 81, 105, 114, 118, 123, 126, 156, 157, 167, 169, 189. De enkelte kongenere er markeret med stjerne (*); ²Ikke-dioxin-lignende kongenere; LOQ - detektionsgrænsen (Limit Of Quantification).

Tabel 2

Luftmålinger i de ikke-forurenede lejligheder, N=21. Der præsenteres 24 forskellige kongenere samt summerede mål og approksimerede total-mål ud fra indikator-kongenere (se i øvrigt tekst).

PCB kongener	Koncentration, ng/m ³					
	Gennemsnit	Minimum	25 percentil	Median	75 percentil	Maksimum
PCB28	1,30	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,73	19,75
PCB52	2,13	< LOQ	< LOQ	< LOQ	1,96	28,34
PCB66	0,61	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,69	6,72
PCB74	0,48	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,49	5,53
PCB77*	0,004	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,08
PCB81*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB99	0,13	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,17	1,16
PCB101	0,13	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	2,64
PCB105*	0,01	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,28
PCB114*	0,001	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,02
PCB118*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB123*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB126*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB138	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB153	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB156*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB157*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB167*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB169*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB170	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB180	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB183	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB187	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB189*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Sum 24	4,80	< LOQ	< LOQ	0,11	3,88	64,51
Sum DL¹	0,02	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,38
Sum NDL²	4,78	< LOQ	< LOQ	0,11	3,875	64,14
Total PCB (6)	17,82	< LOQ	< LOQ	< LOQ	13,495	253,63
Total PCB (6+1)	17,82	< LOQ	< LOQ	< LOQ	13,47	253,65

¹Dioxin-lignende kongenere: 77, 81, 105, 114, 118, 123, 126, 156, 157, 167, 169, 189. De enkelte kongenere er markeret med stjerne (*); ²Ikke-doxin-lignende kongenere; LOQ - detektionsgrænsen (Limit Of Quantification).

Tabel 3

Fugemålinger i de forurenede lejligheder, N=20. Der præsenteres 24 forskellige kongenere samt summerede mål og approksimerede total-mål ud fra indikator-kongenere (se i øvrigt tekst).

PCB kongener	Koncentration, mg/kg					
	Gennemsnit	Minimum	25 percentil	Median	75 percentil	Maksimum
PCB28	1947,8	17,2	123,2	786,5	3182,5	8540,0
PCB52	9465,6	50,2	713,2	3040,0	17675,0	29300,0
PCB66	13357,9	38,2	723,5	1165,0	27375,0	41300,0
PCB74	6926,8	21,8	593,0	1018,0	13900,0	21000,0
PCB77*	1128,6	1,4	95,2	123,5	2417,5	3010,0
PCB81*	26,0	<LOQ	0,7	3,8	50,7	86,9
PCB99	3847,4	10,3	299,2	739,0	7392,5	11400,0
PCB101	11347,9	16,8	465,5	10850,0	18875,0	25800,0
PCB105*	3807,7	11,4	385,7	782,5	7980,0	9660,0
PCB114* ³	295,4	<LOQ	24,7	51,0	580,0	772,0
PCB118*	6173,5	15,1	541,7	7130,0	9670,0	13000,0
PCB123* ³	152,2	0,7	15,9	52,3	313,0	385,0
PCB126*	10,4	<LOQ	<LOQ	2,1	20,2	40,9
PCB138	9842,8	3,0	72,3	1375,0	24082,5	45100,0
PCB153	12673,8	<LOQ	40,4	977,0	32630,0	53000,0
PCB156*	1193,3	0,5	12,0	251,5	2733,0	5270,0
PCB157*	120,9	0,1	3,0	74,0	220,4	479,0
PCB167*	468,7	0,1	3,1	76,6	1129,5	2110,0
PCB169*	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
PCB170	6588,4	<LOQ	3,7	65,2	17219,5	31200,0
PCB180	5152,0	<LOQ	<LOQ	1,1	13045,7	24300,0
PCB183	2283,5	<LOQ	<LOQ	1,2	5782,0	10900,0
PCB187	3840,5	<LOQ	<LOQ	4,0	9359,0	17700,0
PCB189*	188,8	<LOQ	<LOQ	<LOQ	519,0	864,0
Sum 24	100817,4	187,0	4556,5	101040,0	168584,8	221677,0
Sum DL¹³	13472,3	29,4	1071,7	15836,8	22370,7	26382,3
Sum ND²	87274,4	157,5	3465,9	80113,3	152273,9	206043,0
Total PCB (6)	252149,7	436,0	7005,2	165207,5	500091,3	718430,0
Total PCB (6+1)	283017,0	511,6	9678,8	210992,5	538203,8	749330,0

¹Dioxin-lignende kongenere: 77, 81, 105, 114, 118, 123, 126, 156, 157, 167, 169, 189. De enkelte kongenere er markeret med stjerne (*); ²Ikke-doxin-lignende kongenere; ³N=19
LOQ - detektionsgrænsen (Limit Of Quantification).

5.2 Målinger i plasma.

I tabel 4 og 5 præsenteres resultaterne af PCB-analyserne i plasma henholdsvis blandt eksponerede og kontroller. Der fandtes højere koncentration af en række af de målte PCB-kongener blandt de eksponerede sammenlignet med kontrollerne.

De fundne forskelle mellem de enkelte ikke-DL kongener var statistisk signifikante ($p < 0,05$ ved Mann Whitney U) for kongenerne 28, 52, 66, 74, 99, 101, 138, 153, 170, 178, 180, 187 og for summen af ikke-DL-PCB. Der var ikke signifikant forskel for nr. 183 og 190. For nr. 182 var alle analyser under detektionsgrænsen.

For de dioxin-lignende kongener var kun et fåtal målbart i blodet både blandt eksponerede og kontroller. Ligeledes var det samlede niveau af dioxin-lignende PCB (DL-PCB) forholdsvis lavt for begge grupper. Følgende kongener var under detektionsgrænsen for alle eller for de fleste deltagere: PCB kongener 77, 81, 114, 123, 126, 157, 167, 169 og 189. De mest toksiske dioxin-lignende kongener nr. 126 (WHO-TEF = 0,1) og kongener nr. 169 (WHO-TEF = 0,01) lå begge under detektionsgrænsen med to undtagelser. To deltagere havde et målbart niveau lige over LOQ med henholdsvis 0,010 og 0,013 $\mu\text{g/l}$ for sidstnævnte kongener 169. For begge disse deltagere var luftmålingen i deres lejlighed for kongener 169 under detektionsgrænsen, hvorfor et evt. bidrag fra indeluften skønnes at lavt.

For de målbare DL-PCB værdier var forskellene mellem kontroller og eksponerede statistisk signifikante ved Mann Whitney U ($p < 0,05$).

Det ses desuden at medianværdierne på de summerede PCB-forbindelser var væsentligt højere hos de eksponerede ift. kontrollerne. Disse forskelle er signifikante for alle summerede variable.

I tabel 6 præsenteres for alle deltagerne de dioxinlignende PCB-kongener nr. 105 og 118 samt summerede PCB-analyser opdelt på køn. Der ses et generelt mønster (også for de øvrige ikke præsenterede kongener), idet mændene ligger lidt højere end kvinder i plasma PCB-målinger. Forskellene er statistisk signifikante, dog ikke for kongener 118.

I tabel 7 fremlægges PCB sum 6 + nr. 118 for alle deltagerne, opdelt på aldersgrupper. Der ses en tydelig trend med stigende medianværdi med stigende alder, som udtryk for kumulering over tid.

Tabel 4

PCB i plasma - eksponerede, N=139. Der præsenteres 27 forskellige kongener samt summere-
de mål, se i øvrigt underteksten til tabellen.

PCB kongener	Koncentration, (µg/l)					
	Gennemsnit	Minimum	25 percentil	Median	75 percentil	Maksimum
PCB28	1,910	0,051	0,680	1,371	2,440	10,73
PCB52	0,374	< LOQ	0,135	0,216	0,383	4,484
PCB66	0,851	0,020	0,308	0,562	1,184	4,564
PCB74	1,637	0,035	0,437	1,101	2,487	7,557
PCB77*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB81*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB99	0,214	< LOQ	0,078	0,145	0,294	0,935
PCB101	0,048	< LOQ	0,020	0,034	0,060	0,219
PCB105*	0,042	< LOQ	0,014	0,030	0,058	0,188
PCB114*	0,010	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,013	0,031
PCB118*	0,137	0,016	0,054	0,101	0,184	0,639
PCB123*	0,011	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,014	0,053
PCB126*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB138	0,215	0,017	0,90	0,157	0,314	0,877
PCB153	0,509	0,045	0,204	0,392	0,732	2,359
PCB156*	0,056	< LOQ	0,019	0,046	0,080	0,314
PCB157*	0,011	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,015	0,050
PCB167*	0,015	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,021	0,075
PCB169*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,013
PCB170	0,156	< LOQ	0,058	0,121	0,228	0,878
PCB178	0,031	< LOQ	0,012	0,027	0,044	0,169
PCB180	0,397	0,017	0,157	0,341	0,581	1,996
PCB182	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB183	0,032	< LOQ	0,014	0,023	0,048	0,123
PCB187	0,098	< LOQ	0,039	0,080	0,134	0,461
PCB189*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,013	0,044
PCB190	0,023	< LOQ	< LOQ	0,019	0,033	0,134
Sum 6	3,454	0,236	1,647	2,715	4,273	15,59
Sum 6 + 1	3,592	0,252	1,706	2,804	4,432	15,99
Sum 24	6,752	0,413	2,846	4,851	9,234	29,25
Sum 27	6,811	0,428	2,918	4,897	9,258	29,35
Sum DL ¹	0,310	0,071	0,156	0,237	0,414	1,121
Sum_NDL ²	6,500	0,356	2,733	4,695	8,919	28,23

¹Dioxin-lignende kongener: 77, 81, 105, 114, 118, 123, 126, 156, 157, 167, 169, 189.

De enkelte kongener er markeret med *

²Ikke-doxin-lignende kongener;

LOQ - detektionsgrænsen (Limit Of Quantification).

Sum 6 = Sum af de 6 indikator kongener.

Sum 6+1 = Sum 6 plus kongener 118.

Sum 24 = Sum af de 24 kongener som også er målt i luft og fuger.

Sum 27 = Sum af alle målte kongener i plasma.

Tabel 5

PCB i plasma - kontroller, N=134. Der præsenteres 27 forskellige kongener samt summerede mål, se i øvrigt underteksten til tabellen.

PCB kongener	Koncentration, (µg/l)					
	Gennemsnit	Minimum	25 percentil	Median	75 percentil	Maksimum
PCB28	0,043	< LOQ	< LOQ	0,014	0,029	1,850 ⁴
PCB52	0,010	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,363 ⁴
PCB66	0,021	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,013	0,996 ⁴
PCB74	0,076	< LOQ	0,016	0,031	0,054	3,978 ⁴
PCB77*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB81*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB99	0,031	< LOQ	0,013	0,024	0,039	0,489 ⁴
PCB101	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,077 ⁴
PCB105*	0,008 ³	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,011	0,061
PCB114*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,020
PCB118*	0,042	< LOQ	0,017	0,033	0,055	0,214
PCB123*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,017
PCB126*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB138	0,171	0,011	0,061	0,134	0,238	0,776
PCB153	0,407	0,022	0,134	0,346	0,582	1,483
PCB156*	0,044	< LOQ	0,012	0,035	0,066	0,136
PCB157*	0,009 ³	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,012	0,027
PCB167*	0,012	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,016	0,049
PCB169*	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB170	0,129	< LOQ	0,035	0,111	0,200	0,430
PCB178	0,024	< LOQ	< LOQ	0,018	0,036	0,076
PCB180	0,318	0,012	0,080	0,262	0,469	1,015
PCB182	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
PCB183	0,027	< LOQ	< LOQ	0,022	0,042	0,139
PCB187	0,074	< LOQ	0,022	0,067	0,104	0,246
PCB189*	0,008 ³	< LOQ	< LOQ	< LOQ	0,011	0,024
PCB190	0,019	< LOQ	< LOQ	0,016	0,029	0,057
Sum 6	0,954	0,071	0,327	0,805	1,346	4,202
Sum 6 + 1	0,997	0,076	0,341	0,834	1,405	4,416
Sum 24	1,467	0,161	0,512	1,204	1,998	10,64
Sum 27	1,515	0,176	0,527	1,251	2,058	10,75
Sum DL ¹	0,154	0,060	0,081	0,122	0,202	0,469
Sum_NDL ²	1,361	0,116	0,446	1,133	1,821	10,28

¹Dioxin-lignende kongenerne: 77, 81, 105, 114, 118, 123, 126, 156, 157, 167, 169, 189. De enkelte kongener er markeret med *; ²Ikke-doxin-lignende kongener; ³Gennemsnit lavere end LOQ opnås fordi <LOQ er fastsat til 0.005 µg/l; ⁴Der var en enkelt 'outlier', som lå adskillige gange højere end den næsthøjeste værdi.

LOQ - detektionsgrænsen (Limit Of Quantification);

Sum 6 = Sum af de 6 indikator kongener.

Sum 6+1 = Sum 6 plus kongener 118.

Sum 24 = Sum af de 24 kongener som også er målt i luft og fuger.

Sum 27 = Sum af alle målte kongener i plasma.

Tabel 6

Kønsopdelte resultater for alle deltagerne af udvalgte kongener samt summationer af PCB-kongener i plasma. Der præsenteres kongener 105, 118 og summerede mål, se i øvrigt underteksten til tabellen. Statistik: Mann Whitney U.

PCB kongener	Koncentration, (µg/l)					
	Gennemsnit	Minimum	25 percentil	Median	75 percentil	Maksimum
Kvinder (N=154)						
105 *	0,022	< LOQ	< LOQ	0,011	0,026	0,188
118	0,082	< LOQ	0,026	0,044	0,101	0,639
Sum 6 **	1,944	0,071	0,572	1,333	2,294	14,60
Sum 6 + 1 **	2,025	0,076	0,594	1,386	2,365	15,24
Sum 24 **	3,536	0,161	0,916	2,085	3,967	29,25
Sum 27 **	3,586	0,176	0,945	2,135	4,045	29,35
Sum DL^{1*}	0,216	0,060	0,098	0,152	0,271	1,121
Sum_NDL^{2**}	3,365	0,111	0,849	1,927	3,795	28,23
Mænd (N=119)						
105 *	0,031	< LOQ	< LOQ	0,018	0,042	0,165
118	0,102	< LOQ	0,028	0,077	0,136	0,598
Sum 6 **	2,594	0,094	0,843	1,822	3,238	15,59
Sum 6 + 1 **	2,696	0,099	0,877	1,897	3,346	15,99
Sum 24 **	4,963	0,184	1,219	3,437	6,862	27,72
Sum 27 **	5,021	0,199	1,278	3,525	6,931	28,03
Sum DL^{1*}	0,256	0,060	0,113	0,196	0,326	1,117
Sum_NDL^{2**}	4,760	0,134	1,151	3,222	6,575	26,95

¹Dioxin-lignende kongener: 77, 81, 105, 114, 118, 123, 126, 156, 157, 167, 169, 189.

²Ikke-doxin-lignende kongener.

LOQ - detektionsgrænsen (Limit Of Quantification).

Sum 6 = Sum af de 6 indikator kongener.

Sum 6+1 = Sum 6 plus kongener 118.

Sum 24 = Sum af de 24 kongener som også er målt i luft og fuger.

Sum 27 = Sum af alle målte kongener i plasma.

* p < 0,05 (forskel mellem mænd og kvinder for det enkelte mål).

** p < 0,01 (forskel mellem mænd og kvinder for det enkelte mål).

Tabel 7

PCB sum af 6 indikator kongener plus kongener 118 i plasma ($\mu\text{g/l}$) for alle deltagerne, fordelt på aldersgrupper.

Aldersgrupper	PCB Sum 6 + 1 i plasma ($\mu\text{g/l}$)					
	Gennem-snit	Mini-mum	25 percentil	Median	75 percentil	Maksi-mum
18-29 år (n=25)	1,279	0,076	0,136	0,265	1,338	7,913
30-39 år (n=35)	1,008	0,169	0,342	0,545	1,634	4,117
40-49 år (n=71)	1,329	0,121	0,598	0,946	1,866	6,323
50-59 år (n=60)	2,539	0,212	1,097	1,944	3,259	9,203
60-69 år (n=57)	3,436	0,611	1,711	2,820	4,515	12,85
70-90 år (n=25)	4,917	0,557	1,844	2,793	6,845	15,99

6 Afsluttende bemærkninger

De fundne højere værdier af ikke-DL-PCB-forbindelser hos beboere fra PCB-forurenedede lejligheder i denne undersøgelse svarer til nogle undersøgelsesresultater i den eksisterende litteratur. Modsat havde vi ikke forventet at se de fundne forskelle for de DL-PCB-forbindelser.

I de videre analyser af resultaterne gennemføres multivariable analyser, for at kontrollere for faktorer med mulig skævvridende betydning for resultaterne, som fx køn, alder, body mass index, ammeperiode, beboelseslængde og kost. I allerede udførte analyser har vi fundet nogle mindre, men signifikante forskelle i både køn, alder og forskellige kosttyper mellem beboerne i de forurenedede og ikke-forurenedede boligblokke. Derfor vil nogle af de fundne forskelle i plasma-PCB muligvis kunne forklares af sådanne forskelle mellem eksponerede og ikke-eksponerede i de planlagte analyser. Denne rapport kan derfor ses som en sammenfatning af rådata, hvorfor definitive konklusioner om sammenhænge mellem de mange forskellige undersøgte faktorer endnu ikke kan drages.

PCB-niveauerne i luften i Farum Midtpunkt må betegnes som relativt høje. Det er dog uvist i hvor høj grad resultaterne fra Farum Midtpunkt er repræsentative for PCB-forurenedede boligblokke i resten af Danmark.

Mål for helbredseffekter af eksponering for PCB i indeklimaet er ikke indgået i undersøgelsen.

Appendix 1

PCB-analyser i plasma

Standard opløsninger

Analyserne blev udført på IPASUM, Erlangen, Tyskland. Standardopløsninger af PCB blev fremstillet fra PCB i iso-octane fra Ehrenstorfer (Augsburg, Tyskland), og fra kulstof-13 mærket PCB i nonane fra Cambridge Isotope Laboratories (CIL, Andover, USA). Den første fortynding blev udført med ethoxyethanol. Til efterfølgende fortyndinger blev anvendt fysiologisk saltvand (0,9%), og slut koncentrationerne af PCB var fra 0,02 – 5,0 µg/l. Opløsninger af internstandard (IS) blev fremstillet ved fortynding af opløsningerne fra CIL med n-hexane. PCB-koncentrationerne af disse var henholdsvis 10 og 50 µg/l.

Behandling af plasmaprøverne

2 ml plasma blev tilføjet 50 µl IS-opløsning og blandet med 2 ml myresyre for at nedbryde proteiner. Lipidfraktionen i denne blanding blev ekstraheret med 1 ml n-hexane. Efter 10 min omrystning og 10 min centrifugering ved 3000 omdr./min⁻¹ blev hexane-laget overført til en silica-gel-kolonne med 700 mg aktiveret silicagel og 200 mg vandfri Na₂SO₄. Eluering af PCB blev udført med 9 ml petroleumснафта. Eluatet blev koncentreret under nitrogen-flow til et volumen på 30 µl ved brug af 50 µl iso-octane. Til kvantificering af PCB blev 1 µl af denne opløsning injiceret i gaschromatografi-massespektrometri systemet (GC-MS).

GC-MS systemet

GC instrument:	Agilent GC 7890A
GC kolonne:	Phenomenex ZB-XLB 60m x 0.25mm x 0.25µm film
Bæregas:	He 5.0, konstant flow på 1.4 ml/min
Injektion:	Splitless i 1.5 min, injektionstemperatur på 285° C

MS instrument:	Agilent MSD 5975C
Ionkilde	Inert Electron Ionization Source, 230° C
Quadropol-temperatur:	150° C
Ionisering:	EI ved 70eV
Detektionsmetode:	Selected Ion Monitoring (SIM)

Beregning

Standardopløsningerne med kendt PCB indhold blev analyseret parallelt med plasmaprøverne i hver serie. PCB-koncentrationerne i plasma blev estimeret ved at benytte kvotienterne af SIM-resultaterne for PCB kongenerne og de interne standarder i standardopløsningerne bestemt ved hjælp af lineær regression.

Kvalitetskontrol og præcision

For kvalitetskontrol blev kalveserum opblandet med en blanding af alle PCB kongenerne, og en prøve af denne opløsning blev analyseret i hver serie. Resultatet af disse analyser blev anvendt til at sikre sammenligneligheden mellem de forskellige serier (præcisionen). Resultatet fra de 25 serier præsenteres i tabel 1.

Tabel 1
Resultater af kvalitetskontrollen

Kongener	Gennemsnit	Min.	Max.	Variationskoefficient
	[µg/l]	[µg/l]	[µg/l]	[%]
PCB 28	0.268	0.258	0.275	1.92
PCB 52	0.267	0.257	0.276	1.53
PCB 74	0.053	0.046	0.061	8.37
PCB 66	0.054	0.048	0.063	8.06
PCB 101	0.276	0.270	0.293	1.75
PCB 99	0.055	0.044	0.059	4.83
PCB 81	0.054	0.051	0.056	2.61
PCB 77	0.055	0.050	0.058	4.56
PCB 123	0.056	0.050	0.059	5.38
PCB 118	0.061	0.053	0.073	6.47
PCB 114	0.055	0.051	0.059	4.14
PCB 153	0.286	0.273	0.296	2.11
PCB 105	0.055	0.051	0.059	4.85
PCB 138	0.270	0.262	0.279	1.65
PCB 178	0.053	0.051	0.056	2.66
PCB 182	0.054	0.050	0.060	4.57
PCB 187	0.055	0.050	0.062	4.87
PCB 183	0.055	0.048	0.061	6.00
PCB 126	0.055	0.047	0.063	6.70
PCB 167	0.056	0.051	0.061	5.00
PCB 156	0.056	0.051	0.059	4.31
PCB 157	0.055	0.051	0.059	4.98
PCB 180	0.268	0.249	0.283	2.65
PCB 170	0.054	0.043	0.069	9.91
PCB 190	0.051	0.043	0.058	6.84
PCB 189	0.059	0.043	0.080	13.67
PCB 169	0.055	0.049	0.063	6.34

Præcisionen af analyserne blev sikret ved “successful participation in the proficiency test of the German External Quality Assessment Scheme (G-EQUAS, Göen et al. 2011).”

Reference:

Th. Göen, K.H. Schaller, H. Drexler: External quality assessment of human biomonitoring in the range of environmental exposure levels. *Int J Hyg Environ Health* (2011) in press, doi: 10.1016/j.ijheh.2011.08.012