

Appendix 3 - continued Individual clinical signs in male Aldh-/- mice

Group and dose	Animal		Days
	No.		
648 mg/kg			14
		325	
		326	
		327	
		328	
		329	
		330	
		331	
		332	
		333	
700 mg/kg		334	
		335	
		336	
		337	
		338	
		339	
		340	

Appendix 4 Individual clinical signs in female Aldh-/- mice

Group and dose	Animal No.	Days									
		JUS	5min	15min	30min	45min	1 hr	2 hr	3 hr	6 hr	
515 mg/kg	401	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	-	
	402	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	-	
	403	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	-	
	404	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	-	
	405	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	-	
	406	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	-	
	407	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	-	
	408	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	-	
556 mg/kg	409	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	
	410	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	
	411	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	
	412	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	
	413	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	
	414	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	
600 mg/kg	415	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	
	416	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	-	
	417	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	
	418	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	
	419	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	
	420	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	
	421	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	
	422	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f, g, h, i, w	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-	
423	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-		
424	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	c, d, e, f	j, k, l, m	j, k, l, m	-	-		

Clinical sign: -, No abnormality; a, Hypoactivity; b, Staggering gait; c, Pale skin; d, Prone position; e, Coma; f, Abdominal deep respiration; g, Dyspnea; h, Weezing; i, Hypothermia; j, Crouching; k, Bradypnea; l, Flushing; m, Piloerection; w, Dead.

Appendix 4 - continued Individual clinical signs in female Aldh-/- mice

Group and dose	Animal No.	Days																					
		JUS	5min	15min	30min	45min	1 hr	2 hr	3 hr	6 hr													
648 mg/kg	425	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			
	426	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			
	427	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			
	428	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			
	429	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			
	430	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			
	431	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			
	432	a, b	c, d, e, f, g, h, i, w																				
	700 mg/kg	433	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																		
		434	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																		
		435	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																		
		436	a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																		
437		a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			
438		a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			
439		a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			
440		a, b	c, d, e, f	c, d, e, f, g, h, i, w																			

Appendix 4 - continued Individual clinical signs in female Aldh-/- mice

Group and dose	Animal No.	Days												
		3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13		
515 mg/kg	401	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	402	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	403	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	404	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	405	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	406	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	407	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	408	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
556 mg/kg	409	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	410	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	411	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	412	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	413	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	414	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
600 mg/kg	415	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	416	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	417	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	418	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	419	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	420	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	421	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	422	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	423	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	424	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

Appendix 4 - continued Individual clinical signs in female Aldh-/- mice

Group and dose	Animal No.	Days												
		3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13		
648 mg/kg	425													
	426													
	427													
	428													
	429													
	430													
	431													
	432													
700 mg/kg	433													
	434													
	435													
	436													
	437													
	438													
	439													
	440													

Appendix 4 - continued Individual clinical signs in female Aldh^{-/-} mice

Group and dose	Animal	Days
	No.	14
515 mg/kg	401	-
	402	-
	403	-
	404	-
	405	-
	406	-
	407	-
	408	-
556 mg/kg	409	-
	410	-
	411	-
	412	-
	413	-
	414	-
600 mg/kg	415	-
	416	-
	417	-
	418	-
	419	-
	420	-
600 mg/kg	421	-
	422	-
	423	-
	424	-

Appendix 4 - continued Individual clinical signs in female Aldh-/- mice

Group and dose	Animal	Days
	No.	14
648 mg/kg	425	
	426	
	427	
	428	
	429	
	430	
	431	
	432	
700 mg/kg	433	
	434	
	435	
	436	
	437	
	438	
	439	
	440	

Appendix 5 Individual body weights in male C57BL/6N mice

Group and dose	Animal No.	Body weight (g) on day											
		0	1	3	5	7	10	14					
515 mg/kg	101	18.5	17.4	18.3	18.9	18.5	19.7	20.5					
	102	18.9	18.5	18.9	19.0	17.8	20.2	21.1					
	103	18.8	18.0	19.3	19.2	20.0	20.8	22.4					
	104	19.5	18.8	19.7	20.3	20.8	21.4	21.9					
	105	19.0	17.5	17.2	18.6	18.9	20.3	21.0					
	106	19.0	17.7	18.0	18.5	19.3	19.6	20.5					
	107	18.2	17.2	18.2	18.5	19.0	19.3	20.5					
	108	18.9	18.7	19.7	19.7	20.2	20.7	21.6					
556 mg/kg	109	18.3	18.1	18.2	18.4	18.6	19.8	20.8					
	110	19.1	18.4	19.5	20.1	20.1	21.5	22.1					
	111	19.0	19.0	19.1	19.3	19.7	20.1	20.7					
	112	19.7	19.7	19.9	20.0	20.3	21.1	22.5					
	113	19.4	18.9	19.4	19.8	20.7	21.3	22.7					
	114	18.8	18.1	18.7	19.0	19.4	19.6	20.6					
	115	16.3	16.2	16.8	17.1	18.0	18.8	19.8					
	116	18.7	17.2	15.4	16.5	17.6	19.2	20.6					
1500 mg/kg	117	18.6	18.1	18.7	19.2	19.3	19.9	20.7					
	118	19.2	18.7	19.2	19.7	20.4	20.5	21.5					
	119	18.5	15.6	17.6	18.1	18.6	18.7	20.1					
	120	19.6											
	121	19.1											
	122	18.9											
	123	17.0											
	124	19.3											
648 mg/kg	125	18.7											
	126	19.6											
	127	17.6											
	128	19.7											
	129	18.6											
	130	18.5	17.0	17.3	18.2	19.9	20.6	21.8					
	131	17.5											
	132	18.8											

Appendix 5 - continued Individual body weights in male C57BL/6N mice

Group and dose	Animal No.	Body weight (g) on day						
		0	1	3	5	7	10	14
700 mg/kg	133	18.9						
	134	18.8						
	135	18.0						
	136	19.6						
	137	19.0						
	138	18.3						
	139	16.8						
	140	18.7						

Appendix 6 Individual body weights in female C57BL/6N mice

Group and dose	Animal No.	Body weight (g) on day										
		0	1	3	5	7	10	14				
515 mg/kg	201	16.8	16.2	16.4	16.7	16.6	17.5	18.4				
	202	16.0	15.5	16.3	16.9	16.4	17.6	18.2				
	203	16.8	16.0	16.7	16.7	16.7	16.8	17.9				
	204	17.4	16.8	17.3	17.1	17.4	17.4	19.4				
	205	16.3	15.6	16.0	15.9	15.5	16.0	16.8				
	206	15.0	14.2	14.4	14.5	14.7	15.4	16.0				
	207	16.8	16.4	17.1	16.5	16.9	17.8	18.5				
	208	15.2	15.2	16.0	16.5	16.6	17.7	17.9				
556 mg/kg	209	16.4	15.5	16.3	16.2	16.0	17.3	17.9				
	210	16.2	15.5	15.9	16.5	16.6	17.1	17.5				
	211	17.4	17.1	17.1	17.3	17.1	18.0	18.3				
	212	16.2	16.4	17.5	17.1	17.9	18.0	18.8				
	213	16.6	15.9	16.9	16.7	17.2	17.7	17.6				
	214	16.1	16.2	17.2	18.0	18.2	19.4	19.7				
	215	16.7										
	216	15.3										
600 mg/kg	217	16.6	15.6	16.0	16.1	16.3	16.7	17.4				
	218	16.3	15.1	15.3	15.7	16.2	17.2	17.7				
	219	15.8	14.6	15.6	15.6	15.8	16.2	17.0				
	220	16.4										
	221	15.3										
	222	16.0	14.9	15.4	15.2	16.2	16.6	17.2				
	223	15.4	15.1	15.3	15.0	15.6	15.8	16.3				
	224	15.3	14.1	15.2	15.1	16.1	16.7	16.6				
648 mg/kg	225	16.6										
	226	16.2										
	227	16.9										
	228	16.7										
	229	16.3										
	230	16.1										
	231	15.9										
232	14.1											

Appendix 6 - continued / Individual body weights in female C57BL/6N mice

Group and dose	Animal No.	Body weight (g) on day						
		0	1	3	5	7	10	14
700 mg/kg	233	16.8						
	234	16.3						
	235	17.6						
	236	16.9						
	237	15.9						
	238	15.7						
	239	16.8						
	240	15.3						

Appendix 7 Individual body weights in male Aldh-/- mice

Group and dose	Animal No.	Body weight (g) on day												
		0	1	3	5	7	10	14						
515 mg/kg	301	21.3	20.6	21.9	22.2	22.7	23.0	24.0						
	302	21.1	20.1	20.9	21.2	21.2	21.9	22.5						
	303	21.9	20.0	21.3	21.7	22.5	22.3	23.6						
	304	21.3	20.4	21.7	22.0	22.1	22.8	23.8						
	305	19.8	19.0	19.8	19.8	20.5	20.8	21.9						
	306	19.1	18.5	19.6	20.3	21.2	21.5	22.6						
	307	17.8	17.1	18.6	18.5	20.0	20.4	20.6						
	308	21.2	20.6	20.9	21.6	22.6	22.8	24.1						
	556 mg/kg	309	20.2	17.3	19.4	20.5	21.1	21.0	22.5					
		310	21.3	20.5	21.9	21.6	22.4	22.3	23.9					
311		21.8	19.7	20.9	21.1	21.6	21.7	22.8						
312		20.6												
313		19.5	18.2	18.9	19.9	20.7	21.2	22.9						
314		19.3												
315		19.2												
316		20.3	19.2	19.9	20.6	21.7	21.4	22.7						
600 mg/kg		317	20.5											
		318	20.6											
	319	23.2	19.8	22.6	22.4	23.5	23.3	22.8						
	320	21.8												
	321	19.2												
	322	20.0												
	323	18.6												
	324	20.5												
	648 mg/kg	325	20.6											
		326	20.3											
327		22.3												
328		21.0												
329		20.1												
330		19.9												
331		18.8												
332	22.4													

Appendix 7 - continued Individual body weights in male Aldh-/- mice

Group and dose	Animal No.	Body weight (g) on day						
		0	1	3	5	7	10	14
700 mg/kg	333	20.6						
	334	21.1						
	335	22.6						
	336	21.4						
	337	19.8						
	338	20.1						
	339	15.8						
340	20.0							

Appendix 8 Individual body weights in female Aldh-/- mice

Group and dose	Animal No.	Body weight (g) on day										
		0	1	3	5	7	10	14				
515 mg/kg	401	17.1	16.4	17.0	17.5	18.1	17.8	18.9				
	402	18.0	17.0	18.5	17.8	18.4	18.9	18.6				
	403	16.8	16.4	17.4	17.4	17.9	18.3	19.3				
	404	15.8	15.4	16.4	16.7	17.1	17.2	17.6				
	405	17.5	16.9	17.8	17.7	17.7	18.5	19.3				
	406	16.1	15.8	17.0	17.4	17.7	18.3	19.7				
	407	15.9	15.5	16.7	16.7	17.2	18.1	18.8				
	408	15.2	15.4	16.3	16.5	17.5	17.4	18.9				
556 mg/kg	409	16.9	15.6	16.2	16.4	17.3	17.2	18.2				
	410	18.2	17.1	18.7	18.5	19.3	19.4	19.9				
	411	16.9										
	412	15.5										
	413	17.2										
	414	17.3	15.7	16.5	16.6	18.1	18.3	18.3				
	415	16.1	15.4	16.2	16.4	17.4	16.7	18.2				
	416	16.5	15.1	15.6	15.7	16.4	16.8	17.9				
600 mg/kg	417	16.7										
	418	18.6	17.4	18.8	19.3	18.6	20.7	21.7				
	419	16.6										
	420	15.3	14.6	15.7	15.5	15.7	16.3	17.3				
	421	17.2										
	422	17.2										
	423	16.4	13.9	14.2	14.4	14.8	15.1	16.6				
	424	15.0	12.7	14.6	15.0	15.0	15.1	16.5				
648 mg/kg	425	17.4										
	426	18.5										
	427	16.3										
	428	16.9										
	429	17.8										
	430	18.0										
431	16.9											
432	16.5											

Appendix 8 - continued Individual body weights in female Aldh-/- mice

Group and dose	Animal No.	Body weight (g) on day						
		0	1	3	5	7	10	14
700 mg/kg	433	17.3						
	434	18.8						
	435	16.7						
	436	16.7						
	437	17.8						
	438	16.7						
	439	16.6						
	440	15.2						

室内汚染微量化学物質の生体モニタリングに関する研究

主任研究者 内山巖雄 京都大学大学院工学研究科 教授
研究協力者 村山留美子 京都大学大学院工学研究科 助手

研究要旨

東京都郊外3地区の新築マンション3棟の住民のうち本人の承諾を得て、測定希望のあった18世帯の10~60歳代の34名(男性12名、女性22名)を対象とし、VOCの個人曝露量及び尿中濃度を測定した。

尿中ベンゼン濃度は喫煙者が非喫煙者に比して有意に高値を示し、喫煙がベンゼン曝露に対して大きな要因になる可能性があるものと思われた。p-ジクロロベンゼンについては、3世帯が室内環境指針値を超えており、そこに住む人の個人曝露量も同様に高い値を示した。尿中のp-ジクロロベンゼン濃度は個人曝露濃度と良く相関し、室内環境指針値を超える部屋で生活している人は有意に高い値を示した。

その他のトルエン、キシレン等については、対象としたマンションがこれらの物質の使用を制限していたこと、24時間換気システムがついていた事などから特に高い値は示さなかった。

A. 研究目的

住環境が従来の開放型のものから閉鎖型の家屋に移行し、さらに、様々な化学物質を用いて作られる建材や家庭用品の使用、調理・暖房器具の使用が増えているのに伴い、室内の化学汚染物質の増大と、その汚染物質による人への健康影響についての関心が高まっている。しかし、それらの化学物質について、実際にそこに住む人がどの程度曝露されているか、という曝露評価は現在ほとんど研究がなされていないのが現状である。室内汚染化学物質については、シックハウス症候群や化学物質過敏症といった症状との関連も報告されており、これらの物質について健康影響評価を行い、有効な対策を立てるためには個人曝露の評価が急務であると思われる。そこで、これまで検討を行ってきた手法を改良し、職業等で曝露を受けていない一般住民の生体試料中のVOC濃度を測定して曝露アセスメントを行うことを目的とした。

B. 研究方法

B.1. 測定対象

東京都郊外 a 市、b 区、c 市の新築マンション3戸の住民のうち測定希望のあった家庭18世帯の10~60歳代の34名(男性12名、女性22名)

を対象とした。対象となった3戸のマンションはすべて同一の会社が手がけたものであり、低ホルムアルデヒド仕様で、壁紙の接着剤はトルエンフリーのものを用いており、24時間換気システム等を備えたマンションである。対象者には住んでからの体調の変化などを聞くアンケートを行った上、ベンゼン、トルエン等の室内環境濃度及び個人曝露量と尿中濃度を測定した。尿採取に際しては、対象者からは同意書を得た。

調査は1月18日~3月4日の期間に行った。

なお、室内環境濃度については、現在、個人曝露量や尿中濃度との関連等を、対象者の在宅時間、行動等を考慮して解析中であり、今回はより関連の強いと思われる尿中濃度と個人曝露濃度について主に報告する。

B.2. サンプル採取

B.2.1 室内濃度及び個人曝露濃度サンプル採取

パッシブサンプラー(SUPELCO社製VOC-SD)を1世帯につき居間と調査対象者(以下、対象者)の希望のあった1室の2室程度の室内に24時間置き、室内濃度を測定した。

また同様のパッシブサンプラーにストラップをつけて、対象者に首から提げ、24時間普段と同様に生活してもらった。

測定終了後に回収し、測定に供した。

B.2.2 尿サンプル採取

対象者に、事前に、洗浄済み 10ml バイアルビンと採尿用紙コップを渡し、個人曝露量測定を行った同日の朝・昼・夜及び翌朝の 2~4 回の採尿を行ってもらった。採取した尿はバイアルビンのふたがきちんと閉まっていることを確認した後に、最終のサンプルの採取及び送付まで保冷剤を入れた発砲スチロール製の保冷箱に入れて保存した。採取終了後、すみやかに京都大学へ送付した。

サンプルは測定終了まで 4℃で保存した。

B.3.測定

B.3.1 室内濃度評価及び個人曝露量評価

室内環境濃度評価の対象物質は、ベンゼン、トルエン、キシレン、p-ジクロロベンゼンとした。また、個人曝露評価の測定対象物質はベンゼン、トルエン、キシレン、p-ジクロロベンゼンとした。定量下限値は室内・個人曝露とも $0.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

なお、室内環境及び個人曝露量については、東京都健康局より資料提供を受けた。

B.3.2 尿中 VOC 測定

測定対象物質はクロロホルム、ベンゼン、トルエン、m,p-キシレン、o-キシレン、p-ジクロロベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンとした。

尿は採取・保存用バイアルビンからシリンジを用いて 2ml を抜き取り、測定用バイアルに移し、内部標準物質(フルオロベンゼン GLサイエンス社製)を加え 20℃で 90 分静置した後に、ダイナミックヘッドスペース/GC/MS 法で測定した。ヘッドスペース導入装置にはパージ&トラップシステム(VOC-100、DKK エンジニアリング製)を用い、パージガスには He を用いた。ガスクロマトグラフ質量分析計には GCMS-QP2010 (島津製作所製)、カラムにはキャピラリーカラム(Ultra Alloy UA-502)を用いた。

測定対象とした 8 物質の内、クロロホルム、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンはほとんどのサンプルでピークが検出されなかったの

考察の対象から外すこととした。

ベンゼン、トルエン、m-キシレン+p-キシレン、o-キシレン、p-ジクロロベンゼンの各定量下限値はそれぞれ、 $24.3\text{ng}/\text{l}$ 、 $49.0\text{ng}/\text{l}$ 、 $33.4\text{ng}/\text{l}$ 、 $28.4\text{ng}/\text{l}$ 、 $45.3\text{ng}/\text{l}$ であった。なお、キシレンについては、より詳細に検討するために、o-キシレンと、ピークが不可分であった m-キシレンと p-キシレンを併せて m,p-キシレンとしたものとを別に評価の対象とした。

また、測定値が定量下限値未満の場合は、定量下限値の 1/2 を測定値とした。

C. 結果

C.1 尿中 VOC のクロマトグラム

Fig. 1 及び Fig. 2 に GC/MS の SIM 法で測定した尿中 VOC のクロマトグラムを示した。Fig. 1 に示したものが一般的なものであるが、まれに Fig. 2 のように非常に多くのピークが現れるサンプルがあった。今回は SIM 法のみでの測定であるために、m/z を指定した物質以外は同定できなかった。

C.2 室内環境濃度

ベンゼン、トルエン、キシレン、p-ジクロロベンゼンの各室内濃度の平均値(Mean±SD)はそれぞれ、 $2.31 \pm 1.28 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($0.93 \sim 7.48 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、 $18.3 \pm 8.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($7.19 \sim 58.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、 $7.56 \pm 4.70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($2.96 \sim 29.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、 $125.7 \pm 268.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($0.77 \sim 1043.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。トルエン、キシレンについては室内環境指針値を超えたところはなかったが、p-ジクロロベンゼンについては 3 世帯で指針値を超えており、同世帯においては測定対象となった 6 室すべてで環境指針値を超えていた。

なお、室内環境濃度については、現在より詳細な解析を行っている。

C.3 個人曝露濃度及び尿中 VOC 濃度

尿中のベンゼン、トルエン、m,p-キシレン、o-キシレン及び p-ジクロロベンゼンの対象者毎の濃度分布を Fig. 3~7 に示した。以下に各物質ごとに詳細に報告する。

なお、それぞれの物質については対象者毎に 1 日に 2~4 サンプルを採取しており、尿中濃度の

地域、性、年齢別や喫煙による差や個人曝露濃度のとの関連の検討には、個人毎に採取したサンプルの各物質の濃度の平均値を算出し、代表値として検討に用いた。

ベンゼン

対象者の個人曝露濃度は $1.29 \sim 6.12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Mean \pm SD 以下同じ: $2.32 \pm 0.98 \mu\text{g}/\text{m}^3$) であり、対象者 34 名が採取した 128 の全サンプルの尿中ベンゼン濃度は、 $12.2 \sim 290.2 \text{ng}/\text{l}$ ($46.6 \pm 33.7 \text{ng}/\text{l}$) であった。また、各対象者あたりの平均値は $12.2 \sim 138.5 \text{ng}/\text{l}$ であった。対象者の個人曝露濃度と尿中濃度の平均値との関連を Fig. 8 に示した。ベンゼンの個人曝露濃度と尿中濃度の平均値の間には明らかな相関は認められなかった。今回の対象者においては喫煙者は 34 名中 4 名のみであったが、ベンゼンの尿中濃度について各対象者の平均値で非喫煙者と比較すると非喫煙者 $38.6 \pm 19.0 \text{ng}/\text{l}$ 、喫煙者 $107.8 \pm 30.2 \text{ng}/\text{l}$ と喫煙者の方が有意に高い値を示し ($p < 0.001$)、喫煙がベンゼン曝露の大きな要因となる可能性が示唆された。しかし個人曝露濃度については、喫煙の有無による有意な差は認められなかった。尿中ベンゼンについては我々の先行研究¹⁾においても喫煙の影響が大きく出る可能性が示唆されており、他の要因によるものが検出されにくくなるおそれがあるために、以下の解析では非喫煙者 ($n=30$) のみのデータを対象とした。

今回行った 3 戸のマンションはそれぞれ別の地域に建っており、立地場所別に尿中ベンゼン濃度の対象者毎の平均値について ANOVA で検討したところ、a 市 ($n=9$)、b 区 ($n=6$)、c 市 ($n=15$) それぞれ $49.3 \pm 18.2 \text{ng}/\text{l}$ 、 $51.6 \pm 18.4 \text{ng}/\text{l}$ 、 $27.1 \pm 12.2 \text{ng}/\text{l}$ と、有意差が認められ ($p < 0.01$)、c 市が最も低くなった。個人曝露濃度においては差は認められなかった。サンプリングの時期に若干の差があるために、サンプリング時期による差も考えられるが、主に住宅地に囲まれた a 市、b 区に対し、c 市にあるマンションは付近に非常に広い面積を持つ緑地公園があることなどが影響している可能性もある。

性・年齢別においては、平均値に差は認められ

なかった。

非喫煙者の尿中ベンゼン濃度と他の尿中 VOC 濃度との関連を検討すると、トルエン ($r=0.54$ $p < 0.01$)、*m,p*-キシレン ($r=0.39$ $p < 0.05$) との間にそれぞれ有意な相関が認められた。

トルエン

対象者の個人曝露濃度の分布は $9.0 \sim 40.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($18.8 \pm 6.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。また全サンプルの尿中トルエン濃度は、 $55.7 \sim 621.4 \text{ng}/\text{l}$ ($145.1 \pm 66.5 \text{ng}/\text{l}$) で、個人あたりの平均値の分布は $69.0 \sim 294.0 \text{ng}/\text{l}$ ($147.2 \pm 49.3 \text{ng}/\text{l}$) であった。トルエンの個人曝露濃度と尿トルエン濃度との関連を Fig. 9 に示した。個人曝露濃度と対象者毎の尿中トルエン濃度の平均値との間に明らかな相関は認められなかった。また、性・年齢別、喫煙の有無において平均値に有意差は認められなかったが、立地場所別では有意差が認められ、各対象者毎の平均値は、a 市 $156.9 \pm 27.7 \text{ng}/\text{l}$ 、b 区 $203.5 \pm 55.2 \text{ng}/\text{l}$ 、c 市 $120.5 \pm 34.1 \text{ng}/\text{l}$ (それぞれ $n=9$ 、 $n=7$ 、 $n=18$ 以下、キシレン、*p*-ジクロロベンゼンも同様) で、ベンゼンと同様に c 市が最も低くなった ($p < 0.001$)。

また、尿中の他 VOC 濃度との関連については先に述べた非喫煙者のベンゼン濃度の他、*m,p*-キシレンとの間に有意な相関が認められた ($r=0.44$ 、 $p < 0.05$)。

m,p-キシレン及び *o*-キシレン

対象者の個人曝露濃度は *m*-キシレン、*p*-キシレン、*o*-キシレンをすべて合わせた形で測定を行った (以下個人曝露濃度についてはキシレンと表記する)。キシレンの個人曝露濃度は $3.8 \sim 19.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($7.8 \pm 3.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$) で、全サンプルの *m,p*-キシレンの尿中濃度は $16.7 \sim 52.0 \text{ng}/\text{l}$ ($21.9 \pm 9.9 \text{ng}/\text{l}$)、*o*-キシレンの尿中濃度は $14.2 \sim 45.2 \text{ng}/\text{l}$ ($17.4 \pm 7.5 \text{ng}/\text{l}$) で、個人あたりの平均値の分布はそれぞれ、 $16.7 \sim 42.8 \text{ng}/\text{l}$ ($18.7 \pm 6.8 \text{ng}/\text{l}$)、 $14.2 \sim 33.2 \text{ng}/\text{l}$ ($15.7 \pm 4.8 \text{ng}/\text{l}$) であった。また、尿中の *m,p*-キシレン及び *o*-キシレンそれぞれの対象者毎の平均値と、キシレンの個人曝露濃度との相関を Fig. 10 及び Fig. 11 に示した。尿中キシレン濃度については定量下限値未満であったサンプルが

非常に多く、個人曝露濃度とも関連は認められなかった。尿中 m,p-キシレン、o-キシレン共に、性年齢別、喫煙の有無の別では濃度の平均値に差は認められなかったが、m,p-キシレンについては、a 市 $18.7 \pm 6.1 \text{ ng/l}$ 、b 区 $24.1 \pm 12.6 \text{ ng/l}$ 、c 市 $16.7 \pm 0.0 \text{ ng/l}$ で、尿中ベンゼン、トルエンと同様に c 市が最も低くなった ($p < 0.05$)。また、先に述べたように、尿中ベンゼン、トルエン濃度と有意な相関が認められた他、o-キシレンとの間に有意な相関が認められた ($r = 0.55$ $p < 0.01$)。

p-ジクロロベンゼン

対象者の個人曝露濃度の分布は $0.88 \sim 1149.1 \mu\text{g/m}^3$ ($87.8 \pm 240.6 \mu\text{g/m}^3$) であった。また全サンプルの尿中 p-ジクロロベンゼン濃度は $22.7 \sim 1700.6 \text{ ng/l}$ ($182.3 \pm 361.9 \text{ ng/l}$) で、対象者毎の平均値の分布は $22.7 \sim 1509.2 \text{ ng/l}$ ($171.1 \pm 347.6 \text{ ng/l}$) であった。p-ジクロロベンゼンの個人曝露濃度と尿中濃度との関連を Fig. 12 に示した。個人曝露濃度と尿中濃度との間には有意な正の相関が認められた ($r = 0.84$, $p < 0.01$)。

対象となった 18 世帯のうち、p-ジクロロベンゼンが室内環境指針値を超えた世帯は 3 世帯で、同 3 世帯で調査の対象となった 4 名(うち 1 組は夫婦)の個人曝露濃度も同様に室内環境指針値を超える曝露を受けており、尿中濃度も室内環境指針値を超えない世帯に住む人と比較すると非常に高い値を示した。

性・年齢別、立地場所別においては平均値に有意差は認められなかった。

また、他の VOC の尿中濃度との間には関連は認められなかった。

D. 考察

我々はこれまでにベンゼン等の尿中濃度の測定手法を確立し、職業曝露とは異なり非常に低濃度曝露であると考えられる一般の人の尿においても対応できるよう改良を行ってきた。本研究においても、これまで定量下限値が 50.0 ng/l であったのに対して、 24.3 ng/l となるまで手法を改良し、さらに低濃度のサンプルについても測定が可能になった。

今回我々は、実際に職業曝露を受けない一般の人が住む新築マンションに在住する人を対象として特に、尿中のベンゼン、トルエン、キシレン、p-ジクロロベンゼンについて調査を行った。

先に述べたように対象となった 3 戸のマンションはすべて同一の会社が手がけたものであり、低ホルムアルデヒド仕様、壁紙の接着剤はトルエンフリーのものを用いており、24 時間換気システム等を備えたマンションである。様々な溶剤の使用などが考えられる新築の家屋であるが、室内環境濃度測定においては、トルエン、キシレンについては環境指針値を超えた世帯はなく、トルエンフリーの接着剤の使用や 24 時間換気システム等により、室内環境の化学物質が低く抑えられているものと思われ、これまでの施策が一定の効果を与えているもの思われた。一方、p-ジクロロベンゼンについては、3 世帯 6 室で室内環境指針値を超えており、室内環境指針値を超えていた室内で生活している人の曝露濃度は $668.5 \pm 323.5 \mu\text{g/m}^3$ で、指針値以下であった室内で生活している人が $7.66 \pm 11.6 \mu\text{g/m}^3$ であったのに比較すると非常に高値になっていた。尿中の p-ジクロロベンゼン濃度については個人の曝露濃度と良く相関し、室内環境指針値を超える部屋で生活している人は平均で $1071.8 \pm 295.2 \text{ ng/l}$ で、そうでない人の $52.0 \pm 41.1 \text{ ng/l}$ と比較して非常に高く、さらに尿の全サンプルにおいて指針値を超えない部屋で生活している人よりも明らかな高値を示していることから、今回使用したような 1 回のスポット尿の測定で、より簡便に p-ジクロロベンゼンの曝露状況の把握が可能であることが示唆された。今回は対象者に事前に防虫剤や芳香剤の使用の有無などについては尋ねていないため現段階ではどのような曝露形態によるものか詳細は不明であるが、このように世帯によって個人曝露濃度及び尿中の濃度に大きな差が出たことは、その世帯の p-ジクロロベンゼンを使用した防虫剤等の使用の有無によるものが大きな理由ではないかと推測される。今回高濃度曝露が明らかになった世帯においても 24 時間換気システムがあったにもかかわらず、非常に高い濃度が検出されていることから、このような換気システムを持たない家庭で p-ジクロロベンゼ

ンを使用した場合にはさらに高い濃度になる可能性が考えられる。したがって、防虫剤等に使用されているもののように、室内で発生源になり得ると思われる化学物質については注意が必要であると思われる。

さらに、室内の汚染の原因としては喫煙があげられる。我々の先行研究¹⁾では、喫煙の有無によって尿中ベンゼン濃度が喫煙者で有意に高いことを明らかにしているが、今回も同様の結果を得ており、喫煙がベンゼン曝露に対して大きな要因になる可能性があるものと思われた。一方、我々の先行研究¹⁾においては、ベンゼンは個人曝露量においても喫煙者が非喫煙者に比して高い値を示した他、喫煙者・非喫煙者の個人曝露濃度と尿中濃度には相関が認められたが、今回は曝露濃度については有意差はなく、個人曝露濃度と尿中濃度との間には明らかな相関は認められなかった。これは、同先行研究においてはパッシブサンプラーの装着場所が襟もとであったのに対して、今回は首から下げる形をとったことでタバコの煙がサンプラーに捕集されにくくなったことや、そのために先行研究では最も個人曝露濃度が高かった対象者(喫煙者)で 6ppb だったのに対して、今回は 2ppb(約 $6\mu\text{g}/\text{m}^3$)程度と低かったことなどが影響しているかもしれない。また、先にあげた我々の先行研究においては、尿中ベンゼンは先行する比較的近い時間の曝露を敏感に反映している可能性が示唆されており、パッシブサンプラーによる 24 時間捕集の結果とは必ずしも一致しない可能性もある。

さらに、例えばアセトアルデヒド脱水素酵素が欠損している人はアセトアルデヒドの代謝が遅く、血中に長く残っているというように、ベンゼンや、今回、個人曝露濃度と尿中濃度との間に相関が認められなかったトルエン、キシレンについても、代謝などに個体差があるために、必ずしも曝露濃度とは相関しない可能性もある。そのような結果を反映していた場合には、曝露量と尿中濃度の関連によりハイリスク群などの同定等も可能になることが考えられることから、今回、個人曝露濃度

が低かったにもかかわらず尿中濃度が高い、あるいは個人曝露濃度が高かったにもかかわらず、尿中濃度が低いなどの対象者については、今後アンケート調査などを詳細に検討し、その理由を調査していく必要があると思われる。

E. まとめ

東京都郊外 3 地区の新築マンション 3 戸の住民のうち測定希望のあった 18 世帯の 10~60 歳代の 34 名を対象とし、VOC の個人曝露量及び尿中濃度を測定した。

尿中ベンゼン濃度は喫煙者が非喫煙者に比して有意に高値を示し、喫煙がベンゼン曝露に対して大きな要因になる可能性が示唆された。p-ジクロロベンゼンについては、3 世帯で室内環境指針値を超えており、そこに住む人の個人曝露量も同様に高い値を示した。尿中の p-ジクロロベンゼン濃度は個人曝露濃度と良く相関し、室内環境指針値を超える部屋で生活している人は有意に高い値を示した。

その他のトルエン、キシレン等については、調査対象のマンションがこれらの物質の使用を制限していたこと、24 時間換気システムを有していた事などから特に高い値は示さなかった。

本研究ではベンゼン等の尿中濃度と個人曝露濃度の間に明らかな相関が認められなかったが、代謝などに個体差があるために、必ずしも曝露濃度とは相関しない可能性もある。曝露量と尿中濃度の関連によりハイリスク群などの同定等も可能になることが考えられることから、今回、個人曝露濃度が低かったにもかかわらず尿中濃度が高い、あるいはその逆の傾向を示した対象者については、今後アンケート調査などを詳細に検討し、その理由を調査していく必要があると思われる。

F. 文献

- 1) 内山巖雄、村山留美子ら：生体試料測定による地域住民の有害大気汚染物質曝露アセスメントに関する研究、平成 13 年度環境保全研究成果集、7-1~7-45 (2002)