

厚生科学研究研究費補助金  
健康化学総合研究事業

化学物質過敏症等室内空气中化学物質に  
係わる疾病と総化学物質の存在量の検討と  
要因解明に関する研究

平成14年度 総括・分担研究報告書

主任研究者 安藤 正典

平成 15 年 3 月

厚生科学研究研究費補助金

健康化学総合研究事業

化学物質過敏症等室内空气中化学物質に  
係わる疾病と総化学物質の存在量の検討と  
要因解明に関する研究

平成14年度 総括・分担研究報告書

主任研究者 安藤 正典

平成15年3月

平成14年度 化学物質過敏症等室内空气中化学物質に係わる  
疾病と総化学物質の存在量の検討と要因解明に関する研究

(順不同、敬称略)

主任研究者	安藤 正典	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 部長
分担研究者	青柳 象平	千葉大学 工学部 教授
	内山 茂久	千葉大学 工学部 非常勤講師
	石川 哲	北里研究所環境医学センター センター長
	埴岡 伸光	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 室長
	池田 耕一	国立公衆衛生院 建築衛生部 部長
	三浦 通利	岩手県環境保健研究センター 衛生化学部
	片平 大造	福島県衛生研究所理化学部 理化学部
	酒井 洋	新潟県保健環境科学研究所 生活衛生科
	山口 貴史	群馬県衛生環境研究所 生活科学部 衛生科学課
	小川 政彦	埼玉県衛生研究所 生体影響担当
	北爪 稔	横浜市衛生研究所 検査研究課
	小林 浩	山梨県衛生公害研究所 衛生研究専門部
	近藤 文雄	愛知県衛生研究所 毒性部
	小林 博美	滋賀県立衛生環境センター 環境衛生担当
	古市 裕子	大阪市立環境科学研究所 大気環境課
	八木 正博	神戸市環境保健研究所 環境化学部
	谷口 秀子	姫路市環境衛生研究所 理化学検査担当
	立野 幸治	山口県環境保健研究センター 理科学部
	津野 正彦	高知県衛生研究所 生活化学部
	力 寿雄	福岡県保健環境研究所 環境化学部
山崎 誠	福岡県保健環境研究所 大気担当	
大和 康博	北九州市環境科学研究所 保健環境課	
菅本 康博	熊本市環境総合研究所 環境調査班	
協力研究者	奥平 純子	千葉大学工学部
	北尾 奈穂子	千葉大学工学部
	角田 和彦	宮城厚生協会 坂総合病院 小児科
	吉野 博	東北大学大学院 工学研究科

坂部 貢	北里研究所環境医学センター
宮田 幹夫	北里研究所環境医学センター
松井 孝子	北里研究所環境医学センター
佐々木恵子	北里研究所環境医学センター
尾島 正幸	北里大学 医学部
柳沢 幸雄	東京大学大学院 新領域創成科学研究科 教授
北條 祥子	尚絅学院大学 生活創造学科
大野 彰子	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部
塩津 弥佳	国立保健医療科学院 建築衛生部
長谷川あゆみ	住化分析センター
佐藤 重幸	豊田中央研究所

委託研究機関	グリーンブルー株式会社	担当者	皆川 直人
			長宗 寧
			牧原 大

# 目 次

総括研究報告書	1
国立医薬品食品衛生研究所    環境衛生化学部    安藤正典	
分担研究報告書	
1. 全国居住環境における室内空气中化学物質の実態に関する研究	
I. 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	
I-1 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	17
国立医薬品食品衛生研究所    環境衛生化学部    安藤正典	
I-2 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	43
岩手県環境保健研究センター    衛生化学部    三浦通利	
I-3 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	49
福島県衛生研究所    理化学部    片平大造	
I-4 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	55
新潟県保健環境化学研究所    生活衛生科    酒井 洋	
I-5 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	61
群馬県衛生環境研究所    生活科学部 衛生化学課    山口貴史	
I-6 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	69
埼玉県衛生研究所    生体影響担当    小川政彦	
I-7 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	73
横浜市衛生研究所    検査研究課    北爪 稔	
I-8 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	79
山梨県衛生公害研究所    生活化学部    小林 浩	
I-9 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	91
愛知県衛生研究所    毒性部    近藤文雄	
I-10 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	97
滋賀県立衛生環境センター    環境衛生担当    小林博美	
I-11 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	109
大阪市立環境化学研究所    大気環境課    古市裕子	
I-12 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	117
神戸市環境保健研究所    環境化学部    八木正博	

I-13	全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	129
	姫路市環境衛生研究所 理化学検査担当 谷口秀子	
I-14	全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	137
	山口県環境保健研究センター 理化学部 立野幸治	
I-15	全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	145
	高知県衛生研究所 生活科学部 津野正彦	
I-16	全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	153
	福岡県保健環境研究所 環境化学部 力 寿雄	
I-17	全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	165
	福岡市保健環境研究所 環境科学部門 山崎 誠	
I-18	全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	171
	北九州市環境科学研究所 保健環境課 大和康博	
I-19	全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究	179
	熊本市環境総合研究所 環境調査班 菅本康博	
II.	溶媒抽出法における ORBO91L 単独捕集管と ORBO91L+ORBO101 連結捕集管の違いによる室内空气中化学物質に関する研究	185
	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 安藤正典	
III.	改良型 ORBO91L+ORBO101 連結捕集管を用いた溶媒抽出法による 室内・室外空气中化学物質の存在状況に関する研究	211
	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 安藤正典	
IV.	ORBO91L 単独捕集管を用いた溶媒抽出法による 室内・室外空气中化学物質の経年変化に関する研究	229
	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 安藤正典	
V.	溶媒抽出法における ORBO91L 単独捕集管と ORBO91L+ORBO101 連結捕集管の違いによる空气中 TVOC の比較に関する研究	243
	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 安藤正典	
VI.	室内空气中化学物質の加熱脱離法による実態に関する研究	257
	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 安藤正典 グリーンブルー株式会社 皆川直人	
VII.	ORBO91L+ORBO101 連結捕集管をもちいた溶媒抽出法および 加熱脱離法による室内空气中化学物質の比較に関する研究	271
	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 安藤正典	

VIII.	ORBO91L+ORBO101 連結捕集管を用いた溶媒抽出法および 加熱脱離法による TVOC の比較に関する研究 . . . . .	299
	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 安藤正典	
IX.	居住環境におけるカルボニル化合物の実態と特性 . . . . .	313
	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 安藤正典 千葉大学 工学部 内山茂久	
	2. 化学物質過敏症の発症要因化学物質の検索に関する研究	
X.	化学物質過敏症の免疫学的指標に及ぼす影響	
	X-1 ホルムアルデヒドがスギ花粉抗原特異的 リンパ球刺激試験に与える影響 . . . . .	321
	北里研究所環境医学センター 石川 哲	
	X-2 ヒト抹梢Tリンパ球のサイトカイン反応性に対する フタル酸エステル類の影響 . . . . .	335
	北里研究所環境医学センター 石川 哲	
X I.	室内空気中の化学物質の免疫学的評価に関する研究 . . . . .	341
	国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 埴岡伸光	
X II.	化学物質過敏症患者の診断と治療に関する研究	
	X II-1 急性中毒から化学物質過敏症へ移行した 患者の長期積極治療の効果 . . . . .	353
	北里研究所環境医学センター 石川 哲	
	X II-2 日本人に対する QEESI 応用の試み . . . . .	357
	北里研究所環境医学センター 石川 哲	
	3. 病院等多量放散施設における室内空気中化学物質の調査と評価に関する研究	
X III.	医療機関における空気中化学物質の経年的存在量に関する研究 . . . . .	367
	国立保健医療科学院 建築衛生部 池田耕一	
X IV.	新棟施設の入居直前：1ヶ月経ての医療機関における 空気中化学物質の存在量に関する研究 . . . . .	375
	国立保健医療科学院 建築衛生部 池田耕一	
	4. 室内空気中化学物質の低減化に関する技術開発研究	
X V.	食品廃材による室内空気中ホルムアルデヒド および二酸化窒素の吸着除去 . . . . .	387
	千葉大学 工学部 青柳象平 千葉大学 工学部 内山茂久	

**化学物質過敏症等室内空气中化学物質に係る疾病と  
総化学物質の存在量の検討と要因解明に関する研究**

（H13-生活-015）

主任研究者 安藤 正典 国立医薬品食品衛生研究所

**総 括**

室内空气中化学物質による化学物質過敏症等の疾病に対する対策は、室内空气中化学物質の存在状況の正確な把握とそれに基づいた要因の解明及び放散量の抑制についての情報の収集とその実施が重要である。そこで、本研究課題では、1. 全国の居住環境における室内空气中化学物質の実態に関する研究、2. 化学物質過敏症の発症要因化学物質の検索に関する研究、3. 病院等多量放散施設における室内空气中化学物質の調査と評価に関する研究、4. 室内空气中化学物質の低減化に関する技術開発研究の4課題、以下に示す計15項目について検討した。

また、本研究においては化学物質過敏症を低減化させる有効な指標である総化学物質（TVOC）の測定方法についても、項目として提案した。

1. 全国の居住環境における室内空气中化学物質の実態に関する研究では、
  - I. 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究
  - II. 溶媒抽出法における ORBO91 単独捕集管と ORBO91L+ORBO101 連結捕集管の違いによる室内空气中化学物質に関する研究
  - III. 改良型 ORBO91L+ORBO101 連結捕集管を用いた溶媒抽出法による室内・室外空气中化学物質の存在状況に関する研究
  - IV. ORBO91L 単独捕集管を用いた溶媒抽出法による室内・室外空气中化学物質の経年変化に関する研究
  - V. 溶媒抽出法における ORBO91L 単独捕集管と ORBO91L+ORBO101 連結捕集管の違いによる室内空气中 TVOC の比較に関する研究
  - VI. 室内空气中化学物質の加熱脱離法による実態に関する研究
  - VII. ORBO91L+ORBO101 連結捕集管を用いた溶媒抽出法および加熱脱離法による室内空气中化学物質の比較に関する研究
  - VIII. ORBO91L+ORBO101 連結捕集管を用いた溶媒抽出法および加熱脱離法による TVOC の比較に関する研究
  - IX. 居住環境におけるカルボニル化合物の実態と特性のテーマに分けて検討した。

本研究を完結させるため、出来る限り多くの居住環境の室内空気を採取分析することによって全国の実態を把握することに努めると共に、全国で実施可能な溶媒抽出法を改良して加熱脱離法との整合性のとれた試験方法の確立を行った。さらに、室内空气中化学物質を抑制する施策として最も有効と考えられる TVOC の測定方法の確立とその実態を把握した。



2. 化学物質過敏症の発症要因化学物質の検索に関する研究では、

X. 化学物質過敏症の免疫学的指標に及ぼす影響

X-1 ホルムアルデヒドがスギ花粉抗原特異的リンパ球刺激試験に与える影響

X-2 ヒト末梢Tリンパ球のサイトカイン反応性に対するフタル酸エステル類の影響

X I. 室内空気中の化学物質の毒性発現にかかわる酵素の多型性に関する研究

X II. 化学物質過敏症患者の診断と治療に関する研究

X II-1 急性中毒から化学物質過敏症へ移行した患者の長期積極治療の効果

X II-2 日本人に対する QEESI 応用の試み

以上の研究を実施し、室内化学物質汚染がアレルギー性疾患の発症・進展に及ぼす影響、免疫学的評価法の確立や長期治療の効果を明らかにした。

3. 病院等多量放散施設における室内空気中化学物質の調査と評価に関する研究では、

X III. 医療機関における空気中化学物質の経年的存在量に関する研究

X IV. 新棟施設の入居直前：1ヶ月経ての医療機関における空気中化学物質の存在量に関する研究

などの課題について医療機関における空気中化学物質の存在量を既存の病院施設を用いた検討した。

4. 室内空気中化学物質の低減化に関する技術開発研究では、

X V. 食品廃材による室内空気中ホルムアルデヒドおよび二酸化窒素の吸着除去

のテーマでホルムアルデヒドにおける室内濃度抑制の効果と吸着メカニズムを検討した。

なお、本研究における分担研究者及び研究協力者は表1に示すようである。

### 1. 全国居住環境における室内空気中化学物質の実態に関する研究

本研究課題では、平成9年度から全国居住環境調査体制を整備して府県の衛生研究所の内、協力機関との共同研究として実施した。

この研究では、居住環境における揮発性有機化学物質の存在状況を明らかにすると共に、総揮発性有機化学物質測定手法の確立と実態を検討する7つのテーマについて検討した。

#### I. 全国における室内空気中化学物質の実態に関する研究

分担研究者

全国地方衛生研究所 18 機関

千葉大学 工学部

協力研究者

安藤正典 国立医薬品食品衛生研究所

委託研究機関

グリーンブルー株式会社

室内空気中の総揮発性有機化合物の全国の実態を把握すること、溶媒抽出法および加熱脱離法との比較検討、居住環境に確認される化学物質の存在量などを把握するため、国立医薬品衛生研究所と府県衛生研究所との共同研究を実施した。

#### II. 溶媒抽出法における ORB091 単独捕集管と ORB091L+ORB0101 連結捕集管の違いによる

### 室内空气中化学物質に関する研究

分担研究者

安藤正典 国立医薬品食品衛生研究所

協力研究者

全国地方衛生研究所 18 機関

千葉大学 工学部

委託研究機関

グリーンブルー株式会社

ORBO91L 単独捕集管と ORBO91L + ORBO101 連結捕集管の違いによる各化学物質値の関係を対数変換値を用いて、散布図を作成したところ、約 70 化学物質における両捕集剤の関係は、 $Y = X$  に近い回帰直線が得られた。

有意性が認められなかった化学物質には、3-Carene,  $\alpha$ -Pinene, Camphene,  $\beta$ -Pinene, Camphor, Menthol 等の他、Phenol、2-Ethyl-1-hexanol、Carbon tetrachloride、Linalolacetate 等ほとんど室内では確認されなかった化学物質であった。

同等性が認められない化学物質、特に 3-Carene,  $\alpha$ -Pinene, Camphene,  $\beta$ -Pinene では  $Y = 0.008x \sim Y = 0.03x$  と ORBO91L 単独捕集管では捕集されていないか又は分解している可能性が考えられたが、これは ORBO91L 単独捕集管の捕集性の悪さが起因していた。

アルコール類やグリコール類で、その他 Longifolene, Camphor, Menthol, Dichloromethane で相関式が  $Y = 0.2x \sim Y = 0.5x$  で、捕集剤の影響が明らかに認められた。

以上のことから、ORBO91L 単独捕集管と比較した ORBO91L + ORBO101 連結捕集管では、室内空气中に高濃度存在する脂肪族炭化水素や芳香族炭化水素ばかりでなく、 $\alpha$ -ピネンなどのテルペン類も効率よく捕集、測定できることが明らかとなった。

### Ⅲ. 改良型 ORBO91L + ORBO101 連結捕集管を用

### いた溶媒抽出法による室内・室外空气中化学物質の存在状況に関する研究

分担研究者

安藤正典 国立医薬品食品衛生研究所

協力研究者

全国地方衛生研究所 18 機関

千葉大学 工学部

委託研究機関

グリーンブルー株式会社

148 の全家屋の室内空気における各化学物質における室内の平均値が  $20\mu\text{g}/\text{m}^3$  以上の高濃度が検出された化学物質は toluene  $40.9\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、1,4-Dichlorobenzene  $55.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、3-Carene  $21.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $\alpha$ -Pinene  $120.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、Limonene  $22.5\mu\text{g}/\text{m}^3$  であった。中央値では、Toluene、Ethanol、 $\alpha$ -Pinene、Limonene、Acetone が  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  以上を示していた。Toluene、Ethylbenzene、m,p,o-Xylene、1,2,4-Trimethylbenzene、n-Decane、n-Undecane、 $\alpha$ -Pinene、Limonene の 9 化学物質は全家屋で検出された。半数の家屋で検出された化学物質は 67 化学物質であった。9 割の家屋で不検出であった化学物質は、1,3-Diisopropylbenzene、1,4-Diisopropylbenzene、Methyl-t-butylether、Dimethoxymethane、2-Methoxyethanol、Indene の 5 化学物質のみであった。最大値が 90% タイル値の 10 倍以上の値を示した化学物質は 39 化学物質も存在し、また、最大値が 95% タイル値の 10 倍以上を示したものは 12 化学物質も存在していた。これらの中には、一般家屋に存在するものの他、アルコール類、エーテル類、グリコール類、エステル類などが多く認められた。新しい家具や改装などの特異的な室内環境としての発生源が存在していた可能性が示唆された。

室外空気における平均値では  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  以上の濃度を示した化学物質は Toluene の

13.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ のみで、1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した化学物質は10種のみであった。全家屋の外気で検出されたものはTolueneのみであり、半数の家屋の外気で検出されたものは41化学物質であった。全室外空気において、不検出とされた化学物質は2-MethoxyetanolとDimethoxymethaneのみであった。また、9割の家屋周辺外気で不検出のものは、15化学物質であり、大気中にもほとんどの化学物質が存在していることが認められた。

I/O比が20以上示した化学物質はテルペン類やアルコール類で18化学物質、その比が10~20のものは16化学物質であった。一方、室内外とも検出率の高かったトルエン、キシレン、エチルベンゼンなどでは、I/O比は5~10であった。I/O比が2以下の1に近いものは、18物質でその中にはガソリンエンジンに由来するものの他、塩素化合物類であった。

#### IV. ORB091L 単独捕集管を用いた溶媒抽出法による室内・室外空气中化学物質の経年変化に関する研究

分担研究者

安藤正典 国立医薬品食品衛生研究所

協力研究者

全国地方衛生研究所 18 機関

千葉大学 工学部

委託研究機関

グリーンブルー株式会社

幾何平均値で見ると、2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の化学物質は平成14年度に対する平成13年度の比は0.77~1.42の狭い範囲に留まった。

一方、平成14年度と平成13年度の比が、1.5倍以上の差は1.5以上が17化学物質、0.66以下が21化学物質であった。これらの結果から、一般居住環境に確認されやすい化学物質では変動が少ないことが示唆された。

室外空気においては平均値ではいずれの年

度でも10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の濃度を示した化学物質はTolueneのみで、1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した化学物質は15化学物質であることがみられたが、これら化学物質は2年間での変動が少ないことが認められた。なお、ORB091L単独捕集管はテルペン類の捕集効率が低いことはII-1、II-2で明らかであるので、これら化学物質については経年変化を比較しなかった。

#### V. 溶媒抽出法におけるORB091L単独捕集管とORB091L+ORB0101連結捕集管の違いによる室内空气中TVOCの比較に関する研究

分担研究者

安藤正典 国立医薬品食品衛生研究所

協力研究者

全国地方衛生研究所 18 機関

千葉大学 工学部

委託研究機関

グリーンブルー株式会社

TVOCの平均値、中央値、幾何平均値は、ORB091L単独捕集管で558,283,269 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であるのに対してORB091L+ORB0101連結捕集管では616,497,397 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ とORB091L+ORB0101連結連結管が極端に高い値を示した。しかし、エタノールを除いたTVOCを比較すると、ORB091L単独捕集管では319,217,209 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であるのに対して、ORB091L+ORB0101連結捕集管で509,380,328 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ とテルペン類などの破過を抑えて捕集効率を上げることができた。さらに、ORB091L単独捕集管及び加熱脱離の両法における測定値のバラツキと、個々の値の差異のt検定を行ったところ、それぞれの方法によるTVOCのデータは統計的に同等性が証明された。また、相関図を作成したところ直線関係が得られ、しかも、それらの単回帰直線、回帰式、相関性および信頼性は、エタノールを除いた場合のTVOCでは、 $y = 0.8x$

に近い回帰直線が得られた。我が国では、高温多湿によるカビや細菌に対する国民の関心が高いことから、エタノールの使用量も多く、TVOCの正確な指標化とならない可能性が高い。このことから、我が国のTVOC測定においては、エタノールを除くことが妥当であると考えられた。

## VI. 室内空气中化学物質の加熱脱離法による実態に関する研究

分担研究者

安藤正典 国立医薬品食品衛生研究所

協力研究者

全国地方衛生研究所 18 機関

千葉大学 工学部

委託研究機関

グリーンブルー株式会社

衛生研究所 19 機関及び大学の協力を得て全国 182 箇所の住宅において室内外中の揮発性有機化合物 ( Volatile Organic Compounds:VOCs) の測定を行った。試料採取は、10ml/min の流量で 24 時間、室内外空気を吸引し、分析は加熱脱着-ガスクロマトグラフ-質量分析法で行った。対象成分は ISO11 分類の他、我が国固有の成分を加え 121 成分とした。室内空气中で延べ 117 成分が検出され、トルエンと 1,4-ジクロロベンゼンはガイドライン値を超過した住宅が見られた。個別 VOCs を積算した総揮発性有機化合物 (Total Volatile Organic Compounds:TVOC) の室内濃度は中央値が  $380 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、ほぼ暫定目標値と同等であった。しかし暫定目標値超過住宅は約 50% に達し、この内、新築での超過率は約 75% であった。なお、TVOC 濃度に占めるガイドライン対象物質の割合は、ほとんどの住宅で 50% 以下であり、室内 VOCs として対象物質の少なさを物語っている。今回の結果から、今後、単一成分はもちろんの

こと VOCs 総量 (TVOC) における空気質の評価、更なるデータの収集と蓄積が必要であることが認められた。

## VII. ORB091L+ORB0101 連結捕集管を用いた溶媒抽出法および加熱脱離法による室内空气中化学物質の比較に関する研究

分担研究者

安藤正典 国立医薬品食品衛生研究所

協力研究者

全国地方衛生研究所 18 機関

千葉大学 工学部

委託研究機関

グリーンブルー株式会社

溶媒抽出法における平均値が加熱脱離法の平均値に比較して約 2 倍以上の差を示した化学物質は、15 化学物質であった。溶媒抽出法における平均値が加熱脱離法の平均値に比較して約 0.5 倍以下を示した化学物質は、22 化学物質であった。アルコール類、グリコール類およびエステル類であった。ORB091L と ORB0101 を連結させる方法によってテルペン類の捕集効率を上昇させたことに改善している。平均値、中央値、幾何平均値、90% タイル値および最大値において、加熱脱離法と溶媒抽出法とではほぼ同様な値を示した。

両測定方法による測定値を対数変換による正規性の検討を行った結果、正規性の信頼性が高いことがみられた。脂肪族炭化水素では 27 物質中 21 物質で、芳香族炭化水素では 15 物質の中 14 物質で、塩素化物質では 10 物質中 8 物質において、極めて高い相関性を示すことが認められた。溶媒抽出法と加熱脱離法におけるそれぞれの化学物質の関係は、 $Y = X$  に近い回帰直線が得られることが認められた。

## VIII. ORB091L+ORB0101 連結捕集管を用いた溶媒抽出法および加熱脱離法による TVOC

## の比較に関する研究

分担研究者

安藤正典 国立医薬品食品衛生研究所

協力研究者

全国地方衛生研究所 18 機関

千葉大学 工学部

委託研究機関

グリーンブルー株式会社

室内空気中の化学物質を溶媒抽出法と加熱脱離法とについて121種の化学物質について同一室内空気を全国的に調査し、我が国における居住空間における溶媒抽出法と加熱脱離法によるTVOCの実態とそれら測定方法の差異を検討した。本年度の溶媒抽出法の捕集剤には、ORBO91L+ORBO101連結捕集管を、加熱脱離にはTO17を用いた。121化合物からエタノールを除いたTVOCでは、平均値、中央値及び幾何平均値のいずれも、その比が0.818、0.848、0.910と極めて近い値となった。昨年度の研究から選定した55物質についても同様に平均値では365 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対し、加熱では460 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、中央値では253 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対し、280 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値では255 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に対し、272 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の結果を示し、溶媒抽出法と加熱脱離法とはほぼ一致する結果が得られた。

個々のTVOCのデータを対数変換して正規性、F検定、t検定によって同等性を検討したところ、エタノールを除いたTVOCでは対数正規分布であることが判明し、しかもバラツキおよび個々の値の差異を認めないことが証明された。しかしながら、アルコール類やエステル類での捕集率が低いことが見られたが、その存在量が少ないことからTVOCへの影響は小さかった。また、テルペン類は、捕集剤の改良の結果捕集効率が向上し良好な結果が得られ、溶媒抽出法と加熱脱離法の相関性およびその測定値は近似することが明らかになった。溶媒抽出法と加熱脱離法との相関関係

を対数値と対数から常数に変換した値を用いて相関図を作成したところ直線関係が得られ、しかも、それらの単回帰直線、回帰式、相関性および信頼性は、エタノールを除いた場合のTVOCでは、 $Y=X$ に近い回帰直線が得られた。我が国におけるエタノール室内濃度は高いことから、TVOC値が溶媒抽出法並びに加熱脱離法のいずれにおいても極端に高い値を示すことが見られた。

## Ⅸ. 居住環境におけるカルボニル化合物の実態と特性

分担研究者

安藤正典 国立医薬品食品衛生研究所

内山茂久 国立医薬品食品衛生研究所

協力研究者

全国地方衛生研究所 18 機関

千葉大学 工学部

居住空間に残留するカルボニル化合物の実態と特性を把握するために、全国18の衛生研究所および1大学の協力を得て2002年10月から2003年3月までの半年間にわたり行われ、合計161戸の居住空間(居間、寝室、台所、トイレ)と家具内部等の閉鎖空間および屋外でカルボニル化合物の測定を行った。カルボニル化合物の捕集は拡散サンプラーDSD-DNPHを使用し、分離カラムにアミド系カラムを用いたHPLCで分析することにより、C1~C10までの21種類カルボニル化合物を定量した。

全国の住宅におけるホルムアルデヒドの屋内濃度(居間)は、4.3~76  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平均26  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を示したが、厚生省の指針値(100  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )を超える住宅は確認されなかった。アセトアルデヒドの室内濃度(居間)は、2.2~85  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平均22  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を示し、厚生省の指針値(48  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )を超える住宅は7戸存在し、総戸数の4.3%を占めた。ノナールの

居間における濃度は、0.1~19  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平均 5.2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  を示し、厚生省の暫定指針値 (41  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) を超える住宅は観測されなかった。しかし、台所の測定値で 46  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  を示す住宅が存在した。ノナールは果実や野菜に含まれており、食品の保管やそれらの加熱調理によって発生すると考えられる。

家具内部の測定(合計 911 点)において、室内平均濃度(26  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )を超えた家具は 470 点で総個数の 60 %を占めた。また、室内濃度指針値 100  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  を超えている家具は全体の 15 %であった。一方、容積の大きいクローゼットや納戸は比較的濃度が低く、家具の大きさとホルムアルデヒド濃度の関係は明確ではないが、小さい家具ほど濃度が高い傾向がみられた。居住空間に存在する家具は、ホルムアルデヒドを放散するものと放散しないものの二つのグループに分かれ、放散する家具については室内空気への影響が懸念された。

## 2. 化学物質過敏症の発症要因化学物質の検索に関する研究

### X. 化学物質過敏症の免疫学的指標に及ぼす影響

化学物質過敏症の免疫学的指標に及ぼす影響として、X-1. ホルムアルデヒドがスギ花粉抗原特異的リンパ球刺激試験に与える影響、X-2. ヒト抹消Tリンパ球のサイトカイン反応性に対するフタル酸エステル類の影響およびX-3. 室内空気中の化学物質の免疫学的評価に関する研究を行った。

#### X-1 ホルムアルデヒドがスギ花粉抗原特異的リンパ球刺激試験に与える影響

—室内化学物質汚染がアレルギー性疾患の発症・進展に及ぼす影響—

分担研究者

石川 哲 北里研究所環境医学センター  
協力研究者

角田和彦 坂総合病院小児科  
吉野 博 東北大学大学院工学研究科  
都市建築学

新築家屋転居後にスギ花粉特異 IgE が上昇した 6 症例の末梢血単核球を用いて 0.25ppm または 0.5ppm のホルムアルデヒドを添加したスギ花粉抗原特異的リンパ球刺激試験を実施し、ホルムアルデヒドがリンパ球増殖に及ぼす影響を研究した。患者家庭室内ホルムアルデヒドは、サンプラーに DNPH カートリッジを用いて 24 時間パッシブサンプリングし、定量分析を行った。自宅室内ホルムアルデヒド濃度が低い症例ではホルムアルデヒド添加によってかえってリンパ球増殖が亢進し、自宅室内ホルムアルデヒド濃度が高い症例では逆にリンパ球増殖が低下する傾向がみられた。したがって、ホルムアルデヒドは抗原刺激によるリンパ球増殖に影響を与え、免疫能に影響を及ぼしている可能性が示唆された。

#### X-2 ヒト抹消Tリンパ球のサイトカイン反応性に対するフタル酸エステル類の影響

分担研究者

石川 哲 北里研究所環境医学センター  
協力研究者

坂部 貢 北里研究所環境医学センター  
宮田幹夫 北里研究所環境医学センター

フタル酸エステル類は、内分泌攪乱物質(環境ホルモン)の疑いのある物質としてもリストアップされている物質である。12名の成人健常者(男性6名:女性6名)から得られた末梢血から総リンパ球をへてほぼ純粋な CD4 リンパ球、CD8 リンパ球を得た。フタル酸ジ-n-ブチル(DBP)あるいはフタル酸ジ-2-エチルヘキシル(DEHP)を添加し 24 時間培養、引き続きインターロイキン 2(IL-2)を添加し 72 時間培養し、サイトカインの反応性を調べ

た。その結果、フタル酸エステル類の添加は、サイトカインに反応した CD8 リンパ球において、細胞周期 G1 期→S 期の遂行に重要な C-kinase 活性、S 期の遂行に重要な ADR 活性、M 期の遂行に重要な cdc2-kinase 活性のいずれの活性も抑制させた。一方、CD4 リンパ球は、いずれの因子も今回用いた濃度の範囲では、有意な影響を受けなかった。以上のことから、フタル酸エステル類は、主として CD8 リンパ球に対して影響を及ぼし、その結果として CD8 による CD4 に対する抑制作用が減弱し、免疫機能を攪乱させる可能性が示唆された。

#### X I . 室内空気中の化学物質の毒性発現に関わる酵素の多型性に関する研究

分担研究者

埴岡伸光 国立医薬品食品衛生研究所

研究協力者

大野彰子 国立医薬品食品衛生研究所

本研究では、家庭環境中で検出される化学物質の生体影響を代謝化学的及び免疫学的視点から評価することを目的として、クロルピリフォス等の有機リン系殺虫剤の代謝的活性化に重要な役割を与えている薬物代謝酵素シトクロム P450 (CYP2E1 および CYP2B6 分子種) に着目し、異物毒性発現と薬物代謝酵素の遺伝子多型性の関連性について検討した。CYP2E1 および CYP2B6 の機能維持においては Arg76 (CYP2E1) および Lys262 (CYP2B6) が重要な役割を果たしており、これらアミノ酸残基の変異が、酵素機能変化を引き起こし、環境化学物質の毒性発現に何らかの影響を与える可能性が示唆された。また、CYP は外来性化学物質の解毒化に重要な役割を果たしている酵素であるが、化学物質の中には、この酵素による代謝がなければ副作用を示すことはないという例も多数見られ

ることから、室内空気中に存在する化学物質について薬物代謝酵素の多型性を検討する必要性が認められた。

#### X II . 化学物質過敏症患者の診断と治療に関する研究

本課題では、X II - 1 急性中毒から化学物質過敏症へ移行した患者の長期積極治療の効果および X II - 2 日本人に対する QEESI 応用の試みについて検討した。

##### X II - 1 急性中毒から化学物質過敏症へ移行した患者の長期積極治療の効果

分担研究者

石川 哲 北里研究所環境医学センター

協力研究者

宮田幹夫 北里研究所環境医学センター

松井孝子 北里研究所環境医学センター

佐々木恵子 北里研究所環境医学センター

坂部 貢 北里研究所環境医学センター

尾島正幸 北里大学 医学部

公衆衛生学・衛生学

300 例以上の患者を診察している中で、原因をつかみにくかった症例で、2 年以上にわたり、繰り返し積極的治療を行った化学物質過敏症患者の臨床経過を追うことが出来た症例が存在したことにより、多くのシックハウス症候群患者救済方策として検討した。

何等かの化学物質との接点によって、中毒から発症したと考えられた極めて難治性であった化学物質過敏症患者に対して 2 年間にわたり 10 クール点滴治療 (1 クールは 5 日入院点滴治療) および酸素吸入療法を行い、その治療経過を観察した。その結果、自覚症状の大幅の改善、末梢血の異常酸素分圧高値の解消が得られ、本治療法が化学物質過敏症患者に非常に有効であることが証明された。心因性などとして放置されやすいこの様な化学

物質過敏症でも治療が可能であることが今回の症例から明らかになった。全身的な不定愁訴は改善されたが、瞳孔を正確に記録観察してデータでは自律神経機能検査で明らかに異常値が残存したままであり、神経機能上のトラブルは極めて難治であることがわかった。従って、症状軽快後も、今後継続した経過観察が必要であることが明らかとなった。

## X II - 2 日本人に対する QEESI 応用の試み

分担研究者

石川 哲 北里研究所環境医学センター

協力研究者

北條祥子 尚絅学院大学生生活創造学科

吉野 博 東北大学大学院  
工学研究科建築

柳沢幸雄 東京大学大学院  
新領域創成科学研究科

米国の Miller<sup>1,2)</sup>は世界共通の化学物質過敏症 (MCS) 患者の研究、診断、スクリーニングに役立つ問診票として、QEESI (Quick Environment Exposure Sensitivity Inventory) を開発した。本件旧ではこれに基づき検討を行った。

A群は 59 名 (46%)、C群は 21 名 (5%) が Miller と Prihoda の診断基準で MCS の疑いが非常に強い“Very suggestive”に分類された。C群で“Very suggestive”に分類された 21 名中 15 名に電話での詳細な聞き取り調査を行った結果、15 名中 14 名が別の病名で通院していた。北里研究所病院臨床環境医学センターの MCS 専門医の集団検診を紹介したところ、6 名が受診し、6 名全員が MCS 患者であると診断された。

QEESIでMCSの疑いが強い (Very suggestive) に分類された結果、専門医の診断を受け、MCSと診断された。このことから、QEESIは日本でもMCS患者のスクリーニン

グ用問診票として役立つことが示された。ただし、ROC分析やロジスティック回帰分析の結果、症状以外の項目は、感度や特異度が低かった。両群の得点の分散や分布の比較から、古典的アレルギーに関する項目と食生活に関する項目 (食品添加物、嗜癖、食事障害など) などを日本人のライフスタイルに合わせて改良すると感度や特異度が上がる可能性が示唆された。マスクの影響を検討した結果、QEESIを使用する場合は、日本人のマスクの影響を考慮したカットオフ値の設定が必要なことともわかった。

## 3. 病院等多量放散施設における室内空気中化学物質の調査と評価に関する研究

いわゆる化学物質過敏症が来院する病院における空気質が大きな課題となっているため、診察を受ける医療施設内の空気質の実態に注目し検討を行った。

本年度は、昨年調査を行った S 医療施設で追跡調査を行った。このときできるだけ多くの成分を分析対象とし、医療施設に存在する成分を定量すること及び、新棟入居直前と 1 ヶ月後の医療機関での空気質調査について、できるだけ多くの成分を分析対象とし、医療施設に存在する成分を定量することとした。

## X III. 医療機関における空气中化学物質の経年的存在量に関する研究

分担研究者

池田耕一 国立保健医療科学院

協力研究者

塩津弥佳 国立保健医療科学院

長谷川あゆみ 住化分析センター

医療施設における室内化学物質汚染の原因は医療行為が化学物質の発生を伴う事が多く、医療施設事態の実態を把握ばかりではなく、建物、寝具・家具などの物品、医療機器、衛生



材料、医療行為などそれぞれの発生量についても検討した。

1年前の調査で濃度の高かったトルエン、キシレンは今回の調査ではおおむね10分の1に、TVOCにおいても暫定目標値の $400\mu\text{g}/\text{m}^3$ をいずれのポイントでも下まわっていた。しかし、今回測定に加えた病理検査室染色室では、トルエン、キシレンは他の化合物に比べ、濃度は高くTVOCも $1600\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、染色室で行われる作業内容によると考えられた。室内空気環境を良好に維持するためには換気設計も十分配慮しなくてはならないことなどが指摘された。また、カルボニル6成分、揮発性有機化合物10成分以外に検出された37成分のうち検出下限値以上の成分数は室内では8~17成分であった。室内によって検出される成分は異なるが、濃度はいずれも高くなかった。

#### XIV. 新棟施設の入居直前：1ヶ月経ての医療機関における空气中化学物質の存在量に関する研究

分担研究者

池田耕一 国立保健医療科学院

協力研究者

佐藤重幸 豊田中央研究所

塩津弥佳 国立保健医療科学院

建替え工事を行っている医療施設で、新棟入居直前と入居1ヶ月後に空気質調査を実施した。引越し前には、エチルベンゼン以上の高沸点の成分、工業ガソリン成分と思われる高沸点成分が各種検出された。しかし、引越し後の2回目の測定では、フロンR-12(ジクロロジフロロメタン)、フロンR-11(トリクロロフロロメタン)や香料、リモネン、メンソール、防虫剤 パラジクロロベンゼン、防菌剤安息香酸などが検出され、これらはいずれも人によって持ち込まれた成分と考えられた。ま

た、医療用で用いられているエチルアルコール、イソプロピルアルコールも引越し後の測定では検出された。今回の調査から、多くの成分を定量する事ができたが、これらすべての成分についての発生を推定する事はできなかった。しかし、医療行為や人の活動により発生されたと考えられる成分を確認する事ができた。以上のように、医療施設では、一般の居住環境に比較して、存在する化学物質はトルエンやキシレンなど同様なものが認められたが、その濃度は高い状況が見られた。また、立て替え工事を実施した施設では、一般居住環境では比較的低いと考えられるアルコール類は殺菌剤、芳香剤が見られた。

#### XV. 室内空气中化学物質の低減化に関する技術開発研究

本課題では、IX. 食品廃材による室内空气中ホルムアルデヒドおよび二酸化窒素の吸着除去について検討した。

#### 4. 室内空气中化学物質の低減化に関する技術開発研究

#### XV. 食品廃材による室内空气中ホルムアルデヒドおよび二酸化窒素の吸着除去

分担研究者

青柳象平 千葉大学工学部

内山茂久 千葉大学工学部

協力研究者

奥平純子 千葉大学工学部

北尾奈穂子 千葉大学工学部

シックハウス症候群の主たる原因物質を考えられる、アルデヒド類を吸着・除去する方法の開発は重要である。今年度は2, 3の他の農産廃材についてホルムアルデヒド吸着能を調べた。さらに、これらを用いる実用的な吸着材を構成する上で必要な、これら材料によるホルムアルデヒド吸収の機構に関する検討

を行った。一方、二酸化窒素は喘息など、呼吸困難をはじめ、健康への悪影響をもたらす化学物質であるが、これまで、一般家庭においても調理や暖房の際に発生し、室内空気を汚染することを指摘してきた。今回は茶殻に二酸化窒素吸収効果を認めたので合わせて報告した。

アルデヒドおよび二酸化窒素について共通する知見は、これら有害物質のキャッチャー能に対し、材料に含まれる有効成分による反応固定（遅い吸着）よりも、材料の多孔構造による物理吸着（早い吸着）がより大きく寄与していることが明らかになった。

I 及び II の全国での室内空気中化学物質の実態調査は、全国の衛生研究所 18 機関の協力の下で三百数十の測定地点のデータを解析した。また、対象化学物質は、揮発性有機化合物約 150 種、アルデヒド類 20 種の約六万件のデータについて検討した。III の病院における研究にはすでに稼働している病院と開設前の病院について検討した。V の研究には化学物質過敏症の患者の協力によって実施した。本報告にみられるような、広範囲な対象化学物質と測定手法について大がかりな調査は世界的にも類例が無く、これらから得られた情報は今後色々な研究に貢献できるものと考ええる。



# 1. 全国居住環境における室内空气中化学物質の

## 実態に関する研究

### I. 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究

- I-1 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
国立医薬品食品衛生研究所 環境衛生化学部 安藤正典
- I-2 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
岩手県環境保健研究センター 衛生化学部 三浦通利
- I-3 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
福島県衛生研究所 理化学部 片平大造
- I-4 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
新潟県保健環境化学研究所 生活衛生科 酒井 洋
- I-5 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
群馬県衛生環境研究所 生活科学部 衛生化学課 山口貴史
- I-6 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
埼玉県衛生研究所 生体影響担当 小川政彦
- I-7 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
横浜市衛生研究所 検査研究課 北爪 稔
- I-8 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
山梨県衛生公害研究所 生活化学部 小林 浩
- I-9 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
愛知県衛生研究所 毒性部 近藤文雄
- I-10 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
滋賀県立衛生環境センター 環境衛生担当 小林博美
- I-11 全国における室内空气中化学物質の実態に関する研究  
大阪市立環境化学研究所 大気環境課 古市裕子