

ガラスウールが使用されているが、これへの吸着は1%以下であった。）

（倫理面への配慮）

今回の報告は分析法や捕集方法の基礎的な研究であり、これらの結果については積極的に公表し、他の研究機関が測定する場合に応用できることが必要であり、倫理面への配慮に該当しない。

C. D. 研究結果

C-1. GC/MS を用いた分析条件

既存の42物質とMVOC 8物質のピークが、クロマトグラムにおいて分離できる分析条件が得られた(表3)。主なスペクトルイオンは、数種観察できるが物質の特異性と分析感度を考慮して、確認イオンと定量イオンを決定した(表4)。また、感度を上げるために各物質の定性、定量範囲はリテンション時間を考慮したグループ分けを行った。3-メチル-1-ブタノールと1-ペンタノール(確認イオン70)、3-オクタノールと1-オクテン-3-オール(確認イオン72)が同じ確認イオンであるが、ピーク検出時間が異なっておりそれぞれの化学物質は分離定量可能であった。既存の42物質の定性イオンと定量イオンとでは、2-ヘプタノールとn-ドデカン、3-オクタノールとクロロホルムの確認イオンが同じであるが、ピーク検出時間が異なるので分離定量可能である。

定量は内部標準法で行い、内部標準物質(IS)にトルエン-d8(0.2 $\mu\text{g}/\text{mL}$)を用いた。標準溶液は個々の試薬一定量をISの含有している溶媒に希釈して0、0.01、0.05、0.1、0.5、1.0、10.0ppm(V/V)濃度を調製した。濃度への換算は試薬比重と試薬純度から計算した。この分析条件において、各物質の検量線は0~10 $\mu\text{g}/\text{mL}$ の範囲で良好な直線性が得られた(図3)。装置定量下限値は、検量線濃度0.05ppm(V/V)を用いて5回測定して計算から求めた。試薬を添加していない溶液ブランク値からピークが検出される場合があり、個々の化学物質によって異なる。検量線濃度0.05ppmで得られた目的物質/IS面積比とブランク値比とを比較すると、最も低い物質(2-ペンタノール)で6倍以上である。定量下限値(LOQ: Limit of quantitation)を分析検出下限値 $\times 3$ 倍で求めると、0.004 $\mu\text{g}/\text{mL}$ (3-オ

クタノール)~0.018 $\mu\text{g}/\text{mL}$ (1-ペンタノール)となった(表5)。

C-2. 捕集剤からの脱着条件

活性炭からの脱着溶媒は、1) 二硫化炭素(以下、CS₂)、2) CS₂とアセトン、3) CS₂とメタノール、4) CS₂とイソプロピルアルコール(以下、IPA)で検討した。1)、2)、4)の溶媒は活性炭との分離が良好であったが、3)では溶媒添加後の攪拌時に肉眼観察で濁り(黒色)を生じ、微細な粒子が一時間の放置後も沈降せず、活性炭との分離が困難であり、GC/MS分析時に詰まりを起こす恐れがあるため、実際の測定からは省いた。個々の化学物質の脱着率は、1) CS₂単独を用いた場合は55.6~95.9%、2) CS₂とアセトンを用いた場合は63.2~86.0%、4) CS₂とIPAを用いた場合は94.1~122.4%であり、CS₂とIPA混合溶液を用いた場合が最も安定して高い脱着率が得られた(表6)。

C-3. 拡散型サンプラーの捕集速度

拡散型サンプラーの捕集速度はポンプ法と拡散法の関係から求めた。バブラーで混合化学物質の気体を発生させ、一回の測定に3ポンプサンプラーと3拡散型サンプラーを1時間並行測定した。測定回数は11回(33捕集)行った。ポンプの流量は100mL/minで吸引した。いずれの化学物質もポンプ法と拡散法との間には高い有意な相関が得られ、一次回帰式を求められた(図4)。ポンプ法は $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、拡散法は μg であることから一次回帰式の傾きは容積 m^3 である。捕集時間は60分であるので、容積($\text{m}^3=10^6\text{mL}$) / 時間(60min) = mL/minとなる。捕集速度は30mL/min(3-オクタノール)~35 mL/min(1-ペンタノール、2-ヘキサノール)が得られた(表7)。

気中濃度に換算した定量下限値は、定量下限値 / (捕集速度 \times 捕集時間)で求めた。気中濃度に換算した定量下限値は0.044 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (3-オクタノール)~0.178 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1-ペンタノール)の範囲であった。実際の定量下限値は、捕集時間を考慮して、MVOC 8物質全てを0.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ とした(表8)。以上の検討の結果、得られた捕集条件で、2住宅においてMVOCの測定を実施した。新築住宅(8ヶ月後)で2部屋(和室、リビングを閉め切って測定)と、1-

ペンタノールが最も高濃度で検出され(20.3、16.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、その他 2-ヘプタノール、3-メチル-1-ブタノール、1-オクテン-3-オールが低濃度検出された。1 K マンションで 66 時間閉め切って測定した例では、3-メチル-1-ブタノール、1-ペンタノール、1-オクテン-3-オールが高濃度検出され、その他 2-ヘキサノール、2-ペンタノール、2-ヘプタノールは低濃度であった。

D. 考察

シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会中間報告書（厚生省生活衛生局企画課、生活化学安全対策室）には、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、スチレン、パラジクロロベンゼン等の分析基準は GC/MS を用いた方法としている。分析機器の性能も詳細に決められており、今回使用した機器もこれらの性能に適合している。確認イオンと定量イオンの選定は MS イオンの組み合わせを変えて検討した結果、表 4 に示した定量イオンと確認イオンを決定した。イオンの決定には 1 番強度の強いイオンを定量イオンに、2 番目の強度のイオンを確認イオンとして測定・定量操作を行うとされているが、一番強度の強いピーク ($m/z = 45$ 付近) では確認イオンを設定しても低濃度領域での誤認識が多く、定量下限が高くなるために今分析では使用していない。確認イオンが一致する化学物質があるがピーク検出時間が異なるので定量には問題が無かった。これらイオンを用いた検量線は 0.008~8 $\mu\text{g}/\text{mL}$ までの直線性が得られ、低濃度の分析に十分に適応可能と考えられた。

活性炭からの MVOC 脱着は二硫化炭素だけでは悪く、IPA を 5% が含有することで改善することができた。メタノール 1% 含有 CS_2 で MVOC を脱着可能との報告 (Kathie et al., 1999) もあるが、メタノールの含有率が 5% になると濁りが生じたため、本研究では分析の対象から除外した。既存の VOC 42 物質は CS_2 による脱着なので、MVOC と同時脱着はできない。装置の定量下限値は標準溶液 0.05ppm を基準に計算し、環境中濃度に換算した値は最も高い値で 1-ペンタノールの 0.178 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であるが、捕集時間の短い場合を考慮し、MVOC 8 物質全てを 0.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ とした。これらの定量下限値の計算は、環境省の調査

マニュアルに準じて求めた。

有害化学物質を捕集する方法には主に二種類に分類される。捕集剤とポンプをつなぎ、ポンプで吸引して捕集剤に有害物質を吸着させる方法と有害物質の拡散の原理を用いて捕集剤に吸着させる方法である。後者はポンプを必要とせず、小型・軽量であること、電気を用いないので引火の心配が無いこと、ポンプの稼働状態の確認が不必要などの理由で、近年広く使用されるようになってきている。拡散型サンプラーは数社から市販されているが、その取扱書には一部溶剤の拡散速度は示されているものの、その保証はしていない。このことから拡散法による測定を行なう場合は、当該物質の捕集速度をあらかじめ実験で求めることが必要である。本研究では独自に作成した曝露チャンバーを用いて、水溶液に溶解した混合化学物質を空気でバブリングすることで気化させ、その気体をポンプ法と拡散法で捕集し、濃度を比較することで捕集速度を求めた。この方法は多種類の化学物質の捕集速度を同時に求めることが可能な新しい方法である。この方法で求めた MVOC 8 物質の捕集速度は、30~35 mL/min の範囲であった。夏 (8 月) に実施した 2 住居の測定例では、2 日間室内を密閉して測定すると一部の MVOC が検出され、2 住居とも 1-ペンタノールが高値であった。MVOC 8 物質の低濃度分析が可能となり、住宅における MVOC の実態調査が可能となった。また同じ手法で、他の物質の捕集速度を今後求めることが可能である。

E. 結論

1) GC/MS による MVOC の低濃度分析条件が確立された。2) 拡散型サンプラーの捕集速度が実験より求められた。3) 一般住宅での応用が可能になった。4) 今後、全国的な調査により一般家屋における MVOC 濃度を明らかにし、シックハウス関連症状との関連を明らかにできる。

F. 健康危険情報 なし

G. 研究発表

1. 論文発表
なし

2.学会発表

- 1) 竹田誠, 河合俊夫, 永滝陽子, 荒木敦子, 金澤文子, 岸玲子:「新規シックハウス関連物質 (MVOC) の測定法について」、日本産業衛生学会第 34 回有機溶剤中毒研究会、大阪 (2006.12.1-2)
- 2) 竹田誠, 河合俊夫, 永滝陽子, 荒木敦子, 金澤文子, 岸玲子:「一般住宅における微生物由来有機化合物 (MVOC) 測定法の確立と実態調査」、第 80 回日本産業衛生学会、大阪 (2007.4.25-27)

参考文献

- 1) 岸玲子, 田中正敏, 吉村健清, 森本兼曩, 長谷川友紀, 柴田英治, 西條泰明, 瀧川智子: 厚生労働科学研究費補助金健康科学総合研究事業 全国規模の疫学研究によるシックハウス症候群の実態と原因の解明 平成17年度総括・分担研究報告書、2006
- 2) Wessen B, Schoeps KO., : Microbial volatile organic compounds--what substances can be found in sick buildings? *Analyst* 121:1203-5. 1996
- 3) Elke K, Begerow J, Oppermann H, Kramer U, Jermann E, Dunemann L : Determination of selected microbial volatile organic compounds by diffusive sampling and dual-column capillary GC-FID—a new feasible approach for the detection of an exposure to indoor mould fungi? *J Environ Monit.*1:445-452. 1999
- 4) Schleichinger H.,Laubmann D.,Bratting C., Mangler M., Eis D.,Ruden H.,:Emission and emission rates of MVOC and the possibility for predicting hidden mold damage? *Indoor Air* 9: 98-104,2005
- 5) Katja E.,Jutta B., Hanna O.,Ursula K., Erich J., Lothar D. :Determination of selected microbial organic compounds by diffusive sampling and dua-column capillary GC-FID-a

- new feasible approach for detection of an exposure to indoor mould fungi? *J. Environ. Monit.*,1: 445-452,1999
- 6) ANNE K., YVES A., VELI-MATTI K. : Sensory Irritating Potency of Some Microbial Volatile Organic Compounds (MVOCs) and a Mixture of Five MVOCs *Archives of Environmental Health.* 54 : 342-352, 1999
- 7) Pieckova E, Jesenska Z. : Microscopic fungi in dwellings and their health implications in humans. *Ann Agric Environ Med.*;6 : 1-11. 1999
- 8) Yasugi T.,Kawai T., Mizumuma K., Horiguti S., Iguchi H., Ikeda M. :Occupational dimethylformamide exposure 1.Diffusive sampling of dimethylformamide vapor for determination of time-weighted average concentration in air *Int Arch Occup Environ Health* 63:449-453 1992
- 9) Kawai T., Yasugi T., Uchida Y., Ikeda M. A personal diffusive sampler for occupational acetone vapor exposure monitoring *Toxicology Letters*, 55:295-302 1991
- 10) Kawai T., Yasugi T., Uchida Y., Ikeda M.: Personal Diffusive Sampler for Methanol a Hydrophilic Solvent. :*Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 44:514-520 1990
- 11) 平成13年3月環境省環境管理局水環境部水環境管理課要調査項目等調査マニュアル (水質、底質、水生生物)

表 1. MVOC8種類の化学性質

| 物質名 | CAS NO. | 化学式 | 分子量 | 形状 | 色 | 臭い | 蒸気圧: hPa | 沸点 |
|-----------------|-----------|---|-------|----|--------|-------|-------------|-----|
| ケトン類 (3種類) : | | | | | | | | |
| 1 2-ヘキサン | 591-78-6 | CH ₃ CO(CH ₂) ₃ CH ₃ | 100.2 | 液体 | わずかに黄色 | 芳香臭 | 13.3 | 127 |
| 2 3-オクタン | 106-68-3 | CH ₃ (CH ₂) ₄ COCH ₂ CH ₃ | 128.2 | 液体 | わずかに黄色 | 果実様芳香 | 1.0 | 167 |
| 3 2-ヘプタン | 110-43-0 | CH ₃ CO(CH ₂) ₄ CH ₃ | 114.2 | 液体 | 無色 | 果実臭 | 3.5 | 151 |
| アルコール類 (6種類) | | | | | | | | |
| 4 3-メチル-1-ブタノール | 123-51-3 | (CH ₃) ₂ CHCH ₂ CH ₂ OH | 88.2 | 液体 | 無色 | 特異臭 | 3.7 | 132 |
| 5 2-ペンタノール | 6032-29-7 | CH ₃ (CH ₂) ₂ CH(OH)CH ₃ | 88.2 | 液体 | 無色 | 特異臭 | 3.0 | 118 |
| 6 1-オクタノール | 3391-86-4 | CH ₃ (CH ₂) ₄ CH(OH)CH ₂ CH ₃ | 128.1 | 液体 | 無色 | 無臭 | 3.0 | 174 |
| 7 3-オクタノール | 589-98-0 | CH ₃ (CH ₂) ₄ CH(OH)CH ₂ CH ₃ | 130.2 | 液体 | 無色 | 特異臭 | データなし | 177 |
| 8 1-ペンタノール | 71-41-0 | CH ₃ (CH ₂) ₃ CH ₂ OH | 88.2 | 液体 | 無色 | 特異臭 | 1.3 | 138 |
| * トルエン | 108-88-3 | C ₆ H ₅ CH ₃ | 92.1 | 液体 | 無色 | 芳香臭 | 2.9kPa(20℃) | 111 |

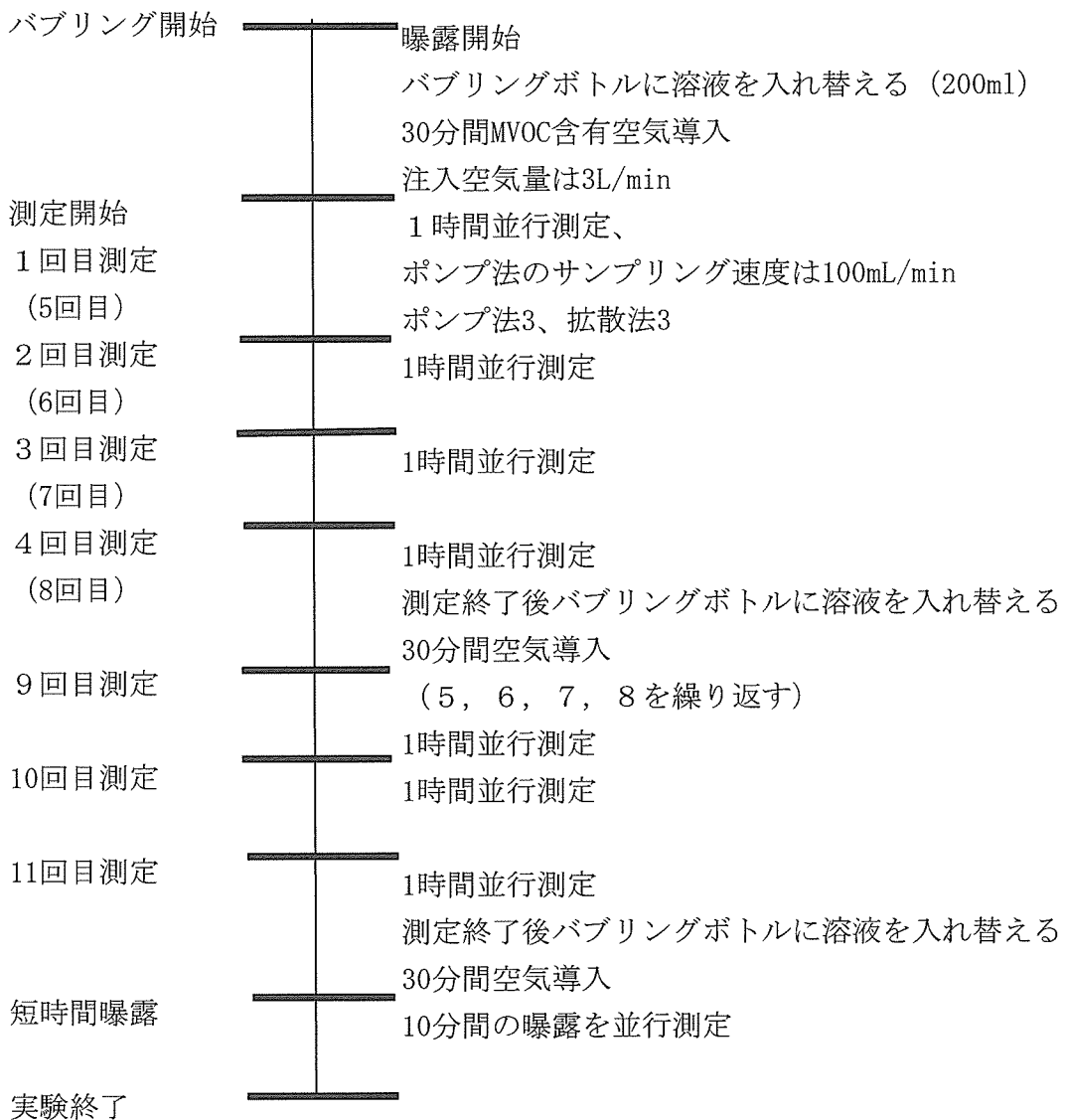
*トルエンはもつともポピュラーな物質であり、他の物質を比較するためにその性質を示した

*蒸気圧はmmHgをhPaに計算した。

表 2. 使用化学物質と分析機器等

| 物質名 | 使用薬品等の製造会社 | 純度 (%) | 比重 |
|---------------------|------------|---------------|------------------|
| ケトン類 (3種類) : | | | |
| 1 2-ヘキサン | Lancaster | 98 | 0.811 |
| 2 3-オクタン | 和光純薬 | 99 | 0.826 |
| 3 2-ヘプタン | Lancaster | 99 | 0.816 |
| アルコール類 (6種類) | | | |
| 4 3-メチル-1-ブタノール | 和光純薬 | 98 | 0.813 |
| 5 2-ペンタノール | Lancaster | 99 | 0.806 |
| 6 1-オクタノール | Lancaster | 98 | 0.833 |
| 7 3-オクタノール | Lancaster | 99 | 0.825 |
| 8 1-ペンタノール | 和光純薬 | 98 | 0.823 |
| その他 | | | |
| 二硫化炭素 | 和光純薬 | | |
| トルエン d8 | 関東科学 | | |
| イソプロピルアルコール | 和光純薬 | | |
| 作業環境用 標準溶液 特級 | | | |
| 捕集機材 | | | |
| 拡散型サンプラー | シグマアルドリッチ | VOC-SD | |
| アクチブサンプラー | GLサイエンス | AEROLEハイプー活性炭 | |
| ポンプ | SKC | | |
| 暴露チャンバー | 試作品 | | |
| 分析機器 | GC/MS機器 | Agilent (米国) | GC6890A / MS5973 |

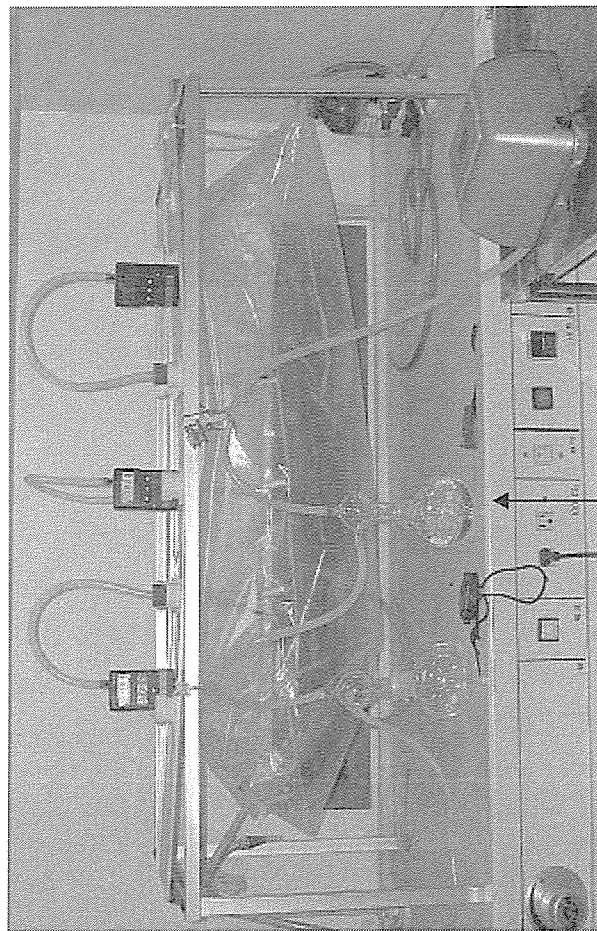
図1. 曝露工程



注) バブリング溶液は1000mLの蒸留水に各MVOC溶液30 μ Lを加えた。

図2. ガス発生装置と捕集（標準ガスが無い場）

試作暴露装置



MNOC発生バブラー

捕集サンプラー



拡散捕集剤

ポンプ捕集剤

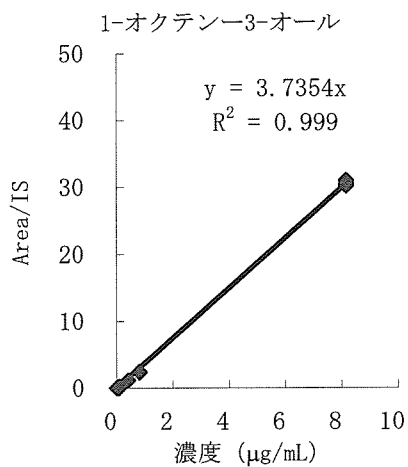
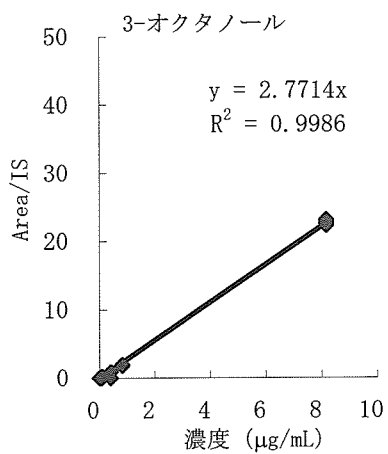
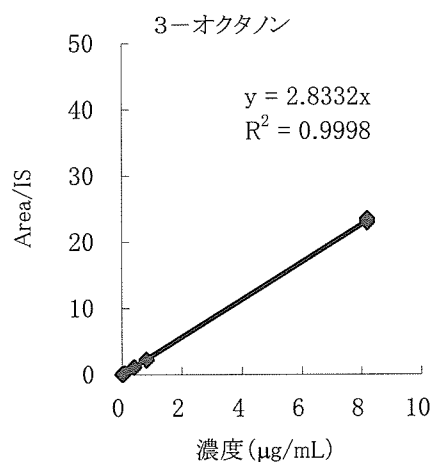
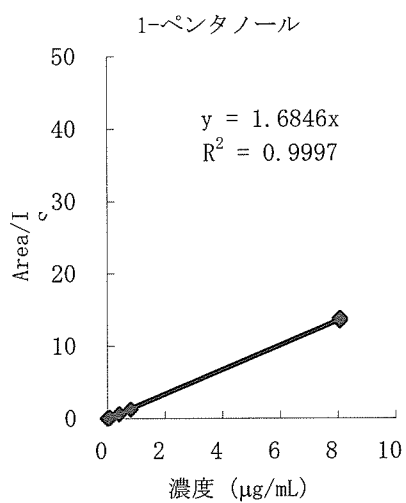
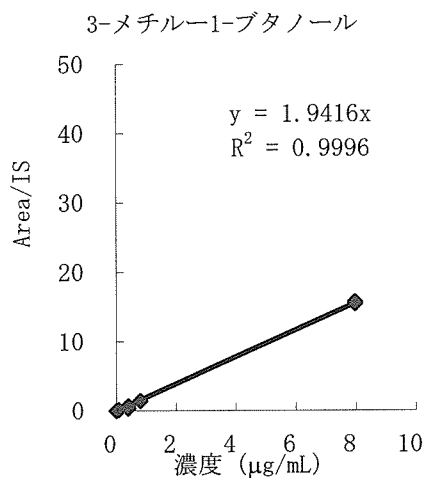
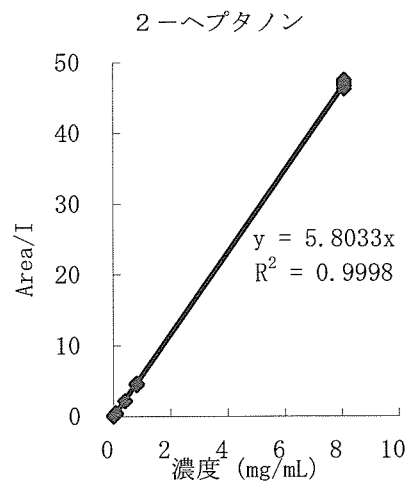
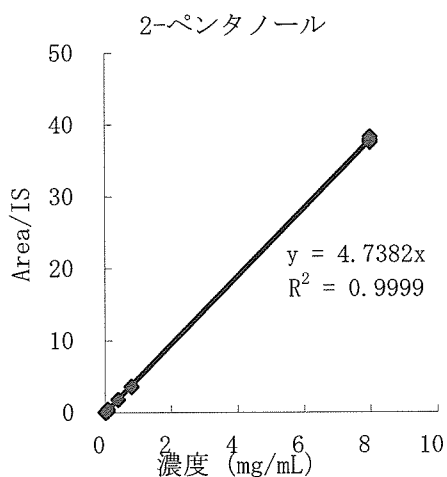
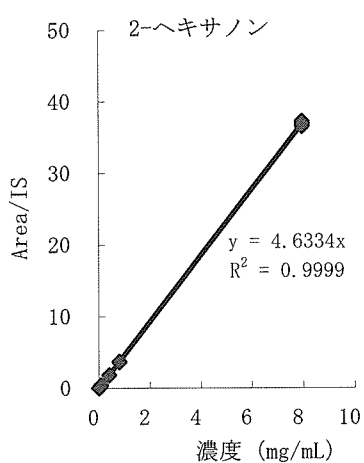


図3. 8種類のMVOCの検量線
各濃度5サンプルを測定し、図を作成

表 5. 装置定量下限値

| 物質名 | 2-ヘキサン | 2-ヘノタンノール | 2-ヘブタン | 3-メチル-1-ブタンノール | 1-ヘノタンノール | 3-オクタノール | 1-オクタノール-3-オール |
|----------------|--------|-----------|--------|----------------|-----------|----------|----------------|
| 標準溶液濃度 (μg/mL) | 0.0398 | 0.0399 | 0.0404 | 0.0399 | 0.0404 | 0.0409 | 0.0408 |
| 1 | 0.0387 | 0.0373 | 0.0383 | 0.0381 | 0.0408 | 0.0359 | 0.0348 |
| 2 | 0.0369 | 0.0385 | 0.0339 | 0.0360 | 0.0351 | 0.0350 | 0.0316 |
| 3 | 0.0335 | 0.0361 | 0.0340 | 0.0347 | 0.0371 | 0.0341 | 0.0315 |
| 4 | 0.0375 | 0.0346 | 0.0344 | 0.0333 | 0.0356 | 0.0336 | 0.0309 |
| 5 | 0.0352 | 0.0356 | 0.0346 | 0.0354 | 0.0334 | 0.0329 | 0.0312 |
| 平均値 | 0.036 | 0.036 | 0.035 | 0.036 | 0.036 | 0.034 | 0.032 |
| 標準偏差 | 0.002 | 0.001 | 0.002 | 0.002 | 0.003 | 0.001 | 0.002 |
| IDL | 0.004 | 0.003 | 0.004 | 0.004 | 0.006 | 0.002 | 0.001 |
| MDL | 0.004 | 0.003 | 0.004 | 0.004 | 0.006 | 0.003 | 0.001 |
| LOQ | 0.013 | 0.010 | 0.012 | 0.011 | 0.018 | 0.008 | 0.010 |

IDL=標準偏差×2倍 (装置検出下限値 Instrument Detection Limit)

MDL=標準偏差×2.132 (検出下限値: Method Detection Limit)、2.132は自由度n-1 の危険率5% (片側) のt 値

LOQ=MDL×3倍 (定量下限値: Limit of Quantitation)

表 6. 脱着率の比較

| 物質名 | 2ppm (V/V) 標準液 | | 2ppm (V/V) 5% IPA/CS2脱着 | | 5% 7tEt/CS2 | | CS2 脱着率 % |
|----------------|----------------|-------|-------------------------|-------|-------------|-------|-----------|
| | ave | SD | ave | SD | 脱着率 % | 脱着率 % | |
| 2-ヘキサン | 4.038 | 1.211 | 3.799 | 0.447 | 94.1 | 80.0 | 92.3 |
| 2-ヘノタンノール | 2.452 | 0.703 | 2.462 | 0.342 | 100.4 | | |
| 2-ヘブタン | 5.548 | 1.086 | 5.472 | 0.724 | 98.6 | | |
| 3-メチル-1-ブタンノール | 3.486 | 0.837 | 3.611 | 0.404 | 103.6 | 63.2 | 58.5 |
| 1-ヘノタンノール | 2.765 | 1.316 | 2.886 | 0.523 | 104.4 | 65.1 | 55.6 |
| 3-オクタノール | 4.213 | 0.904 | 4.101 | 0.550 | 97.3 | 86.0 | 95.9 |
| 3-オクタノール | 4.965 | 1.076 | 5.228 | 0.637 | 105.3 | 77.5 | 75.1 |
| 1-オクタノール-3-オール | 6.186 | 2.345 | 7.574 | 1.044 | 122.4 | 71.0 | 68.3 |

10サンプルの平均 (ave) と標準偏差 (SD)

単位は面積/IS比である

検討は8物質の混合溶液を活性炭に2μLを添加・混合後、窒素で乾燥させ約1時間放置後、各溶媒1mLで脱着し、標準溶液と比較した。標準溶液は溶媒0.998mLに2μLの標準溶液を加え容量比が2ppmになる様に調製した

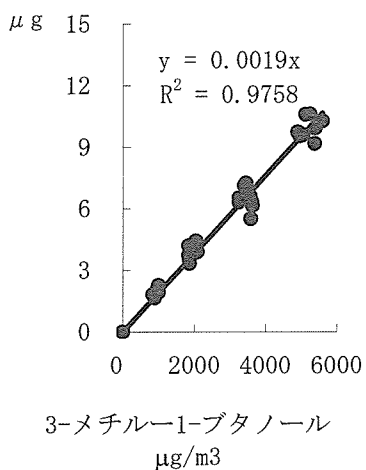
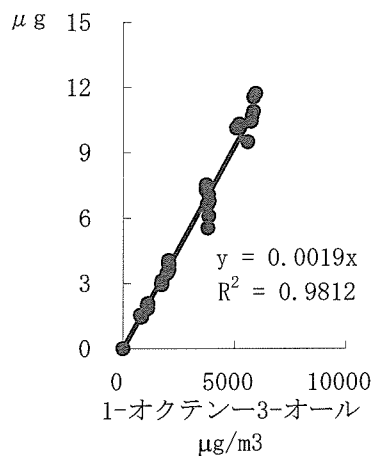
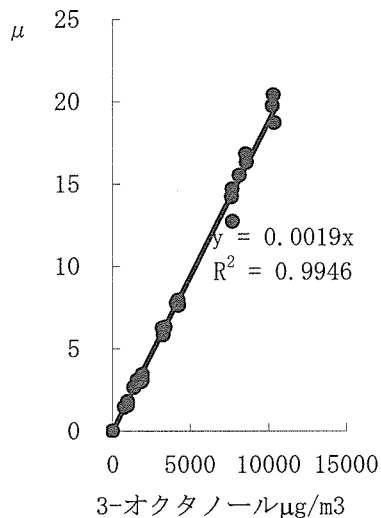
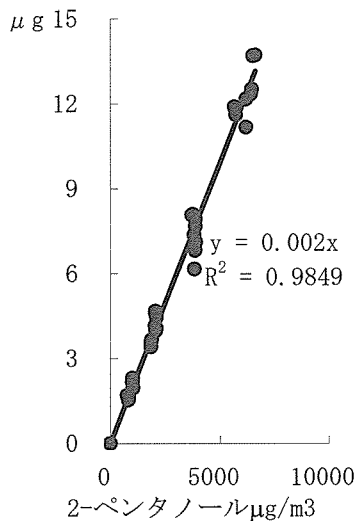
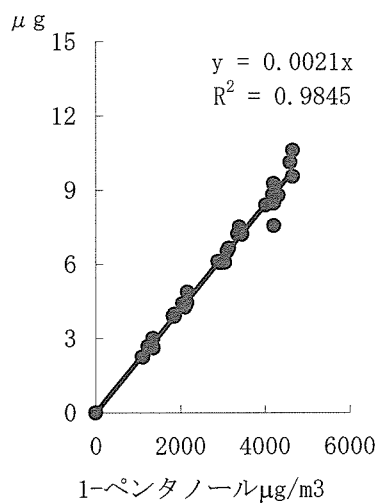
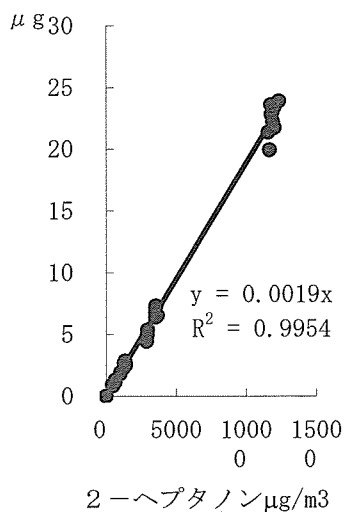
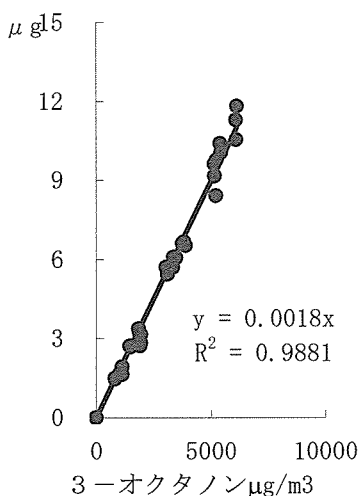
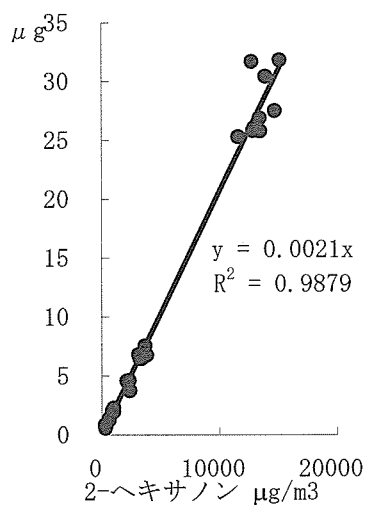


図4. ポンプ法と拡散法の関係

N:33、捕集時間は60分、ポンプの捕集速度は100mL/min

表7. 捕集速度

| 物質名 | 拡散法捕集量 (y: µg) とポンプ濃度 (X: µg/m ³) との関係 | 相関係数 | 捕集速度 (mL/min) |
|---------------|--|-------|---------------|
| 2-ヘキサン | Y=0.0021X | 0.993 | 35 |
| 2-ペンタノール | Y=0.0020X | 0.993 | 33 |
| 2-ヘプタリン | Y=0.0019X | 0.997 | 32 |
| 3-メチル-1-ブタノール | Y=0.0019X | 0.988 | 32 |
| 1-ペンタノール | Y=0.0021X | 0.993 | 35 |
| 3-オクタリン | Y=0.0018X | 0.994 | 30 |
| 3-オクタノール | Y=0.0019X | 0.998 | 32 |
| 1-オクテン-3-オール | Y=0.0019X | 0.99 | 32 |

サンプリング時間は60分であるので、傾き/60minが捕集速度となる。

表8. 気中濃度換算による定量下限値

| | 2-ヘキサン | 2-ペンタノール | 2-ヘプタリン | 3-メチル-1-ブタノール | 1-ペンタノール | 3-オクタリン | 3-オクタノール | 1-オクテン-3-オール |
|--------------------------|--------|----------|---------|---------------|----------|---------|----------|--------------|
| 捕集速度 (mL/min) | 34.64 | 32.65 | 31.25 | 30.67 | 34.8 | 31.56 | 30.67 | 30.7 |
| 捕集時間 (min) | 2880 | 2880 | 2880 | 2880 | 2880 | 2880 | 2880 | 2880 |
| IDL (µg/m ³) | 0.040 | 0.032 | 0.041 | 0.040 | 0.056 | 0.026 | 0.014 | 0.036 |
| MDL (µg/m ³) | 0.043 | 0.034 | 0.043 | 0.043 | 0.059 | 0.028 | 0.015 | 0.039 |
| LOQ (µg/m ³) | 0.129 | 0.102 | 0.130 | 0.129 | 0.178 | 0.083 | 0.044 | 0.117 |
| 今回の気中濃度定量下限値 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |

捕集速度 (mL/min) は実験で得られた値

指定した捕集時間 (2日間の捕集: 60分×48時間)

IDL (µg/m³)、MDL (µg/m³)、LOQ (µg/m³) は表8. 装置定量下限値に捕集容量を加味して計算した

今回の気中濃度定量下限値: 指定した捕集時間に満たないサンプルも存在したことから安全を考えた値

I. ダニアレルゲンの簡易評価法に関する検討

II. 築年数の経過した集合住宅における湿度環境とシックハウス症状の検討

分担研究者 西條 泰明 旭川医科大学健康科学講座 助教授

研究要旨

ダニアレルゲンの簡易評価法に関する検討では、簡易測定法として、現在市販されているマイティーチェッカー（MC）、アカレックテスト（AT）をELISA法と比較した。WHOの基準である、Der 1 \geq 2.0 ($\mu\text{g/g} \cdot \text{dust}$)において、MCは感度91.8%、特異度71.1%、ATは感度100%、特異度13.3%、②Der 1 \geq 10.0 ($\mu\text{g/g} \cdot \text{dust}$)において、MCは感度85.7%、特異度79.5%、ATは感度46.4%、特異度96.2%であった。以上より、簡易測定法としてMCがより適していると考えられた。

築年数の経過した集合住宅における湿度環境とシックハウス症状の検討では、質問票調査を行い、旭川市某地区の公営住宅に居住する480人が解析対象となった。シックハウス症状ありは19.4%であった。湿度環境の指標では、窓の結露81.3%、壁、押入れの結露39.8%、風呂のカビ78.8%、壁、窓枠、押入れのカビ58.8%、カビ臭い臭い61.7%、風呂場のタオルの乾きにくさ62.7%、水漏れ20.2%、風呂の排水が悪い59.2%といずれも比較的高い割合であった。さらに、各指標は、性、年齢、アレルギー、住宅の種類、部屋数/居住者数で調整したロジスティック回帰分析で、風呂のカビ以外は有意にシックハウス症状出現のオッズ比を上昇した。また、湿度環境指標数が増える毎に有意にオッズ比が上昇し（ p for trend <0.0001 ）、指標が8つ全て陽性の場合、0-1個の場合に比べ、オッズ比は36.9（95%信頼区間：5.79-235.6）となった。以上より、築年数の経過した集合住宅におけるシックハウス症候群対策として、湿度環境対策も重要であることが考えられた。

研究協力者

| | |
|-------|--------------------------------|
| 吉田 貴彦 | 旭川医科大学健康科学講座教授 |
| 伊藤 俊弘 | 旭川医科大学健康科学講座講師 |
| 杉岡 良彦 | 旭川医科大学健康科学講座講師 |
| 中木 良彦 | 旭川医科大学健康科学講座助手 |
| 遠藤 整 | 旭川医科大学健康科学講座 |
| 黒田 光 | 旭川医科大学内科学講座 循環・呼吸・神経病態内科学分野 |
| 辻 明日香 | 旭川医科大学 |
| 秦 泉 | 旭川医科大学 |
| 濱本 佳恵 | 旭川医科大学 |
| 安濃 英里 | 旭川医科大学 |
| 鷹架 健一 | 旭川医科大学 |
| 呉 健太 | 旭川医科大学 |
| 伊東哲宏 | 旭川医科大学 |
| 吉田友直 | 旭川医科大学 |
| 酒井克也 | 旭川医科大学 |
| 佐藤雅之 | 旭川医科大学 |
| 高松昌史 | 旭川医科大学 |
| 竹口 諒 | 旭川医科大学 |
| 小林慶子 | 旭川医科大学 |
| 山田郁美 | 旭川医科大学 |

A. 研究目的

ダニアレルゲンの評価法として研究ベース

ではELISA法による塵中の曝露評価が行われている(1,2)。また、一般的に市販品のダニ環境評価製品による評価も簡易測定として行われている。しかし、日本において市販品をgold standardであるELISA法と感度・特異度の面から検討したものはなかった。そこで、「I. ダニアレルゲンの簡易評価法に関する検討」では、日本の簡易測定キットによる室内塵中のダニアレルゲン汚染評価をELISA法と感度・特異度の面から比較を行う。

築年数の浅い戸建て住宅における湿度環境のシックビルディング症候群への報告がなされている(3,4)。しかし、築年数の経過した集合住宅における湿度環境のシックビルディング症状への影響について、北欧の古い集合住宅での報告はあるが(5)、日本では認められない。

日本の公営住宅では、鉄筋コンクリート製で築年数が経過している住居が多く、湿度環境はよくないことが懸念される。そこで、「II. 比較的築年数の経過した集合住宅における湿度環境とシックハウス症状の検討」では北海道における築年数の経過した公営住宅における湿度環境の指標とシックハウス症状につい

で実態を明らかにすることを目的とする。

B. 研究方法

I. ダニアレルゲンの簡易評価法に関する検討

簡易測定法として、現在市販されているマイティーチェッカー（MC）、アカレックテスト（AT）を選択した。ダニスキャンはスティック型で対象となる面をこするもので、定量的ではないので検討から除外した。

検体の収集は、24時間以上掃除機を使用していない、同室内における同一性状の床面、もしくは寝具等より、1平方メートルをマーキングして行った。3検体あるので、各1平方メートルの合計3平方メートルを吸引することになる。なるべく中央よりで少なくとも30cmの間隔をあけて、MC様、AT様、ELISA用の3つの集塵袋に、そこで使用している掃除機を用いて各2分間吸引した。

MC、AT用の検体は-20℃に保存後、キットのマニュアル通りに測定を行った。

MCでは、

- : < 1 μg (<10匹) m^2
→とても快適な状態です。
- + : 5 μg (50匹) m^2
→良好なレベルです。
- + : 10 μg (100匹) m^2
→一般家庭の通常レベルです。
- ++ : >35 μg (350匹) m^2
→通常より多く除去が必要です。

と判定される。

ATでは、

- D : 現在のところ、ダニは検出されていません。
- C : ダニが多少検地されました。なるべく早く対処を考えてください。
- B : ダニの量が多く、早めの対処が必要です。
- A : ダニの量が非常に多く、抜本的な処理を考えてください。

と判定される。

ELISAの検体は-20℃に保存後、ニチニチ製薬（株）に送付し、Der p1・f1 ELISA kit（ニチニチ製薬）により測定した（ND: <0.1 $\mu\text{g}/\text{g}\cdot\text{dust}$ ）。

WHO（世界保健機関）が定めているダニアレルゲンの室内における汚染基準として、喘息についてはDer I量が塵1gあたり2 $\mu\text{g}/\text{g}\cdot\text{dust}$ で感作し、10 $\mu\text{g}/\text{g}\cdot\text{dust}$ で発作を引き起こす危険がある数値とされる(6)。そこで、それらのあたいをカットオフとして、感度、特異度を検討した。

II. 比較的築年数の経過した集合住宅における湿度環境とシックハウス症状の検討

旭川市某地区の公営住宅のうち、市営住宅40棟998戸、道営住宅24棟584戸に調査票『住まいと健康に関するアンケート調査票』を配布し、回答のない住宅には、再配布を行った。そのうち返信は493戸で、性・年齢・自覚症状に回答のない13戸を除外し、480戸を解析対象とした。

調査票には、対象者本人については、年齢、性別、記入日、職業（常勤、非常勤・パート・アルバイト、学生、無職）について質問した。

住居については、築年数（9年以内、10～19年、20～29年、30年以上）、部屋数（居間や寝室、子供部屋などの数-バス・トイレや物置は除く）、居住人数、居住年数、5年以内の水漏れの有無、窓の結露の有無、壁や押入れの結露の有無、風呂のカビの有無、壁や窓枠・押入れのカビの有無、カビくさい臭いの有無、風呂場でぬれタオルがかわきにくいかどうか、風呂場の排水が悪いかどうか、について質問した。

これまでの健康状態については、アレルギー疾患の治療歴（喘息、アトピー性皮膚炎、アレルギー性結膜炎、アレルギー性鼻炎・花粉症）について質問した。

症状については、スウェーデンのAnderssonらによる sick building 症状の質問調査票（MM040EA）の日本語版を用い(7,8)、眼症状、鼻症状、皮膚症状、喉・呼吸器症状、精神・神経症状の5つのカテゴリ、全体で12項目について頻度と環境によるものかどうかの自覚症状を聞いた。

症状については「はい、よくあった（毎週のように）」、「はい、ときどき」、

「いいえ、まったく」の3段階の回答のうち、「はい、よくあった（毎週のように）」と回答したものを症状ありと考え、その中で「その症状は自宅の環境によるものと思いますか。」という質問に対し「はい」を「シックハウス症状あり」として定義した。

また、湿度環境の8項目のうち、各項目について「はい」と回答した場合1項目1点とし、合計点を湿度指標数として用いた。

アレルギー疾患の治療歴については、いずれかの項目で「はい」と回答があったものをアレルギーの既往ありとして解析した。

統計処理はSPSS for Windows version 15.0を用い、眼症状、鼻症状、皮膚症状、喉・呼吸器症状、精神・神経症状、いずれかの症状ありとの関係をロジスティック回帰を用いて検定した。有意水準は5%とし、オッズ比（OR）、95%信頼区間（95%CI）を求めた。

（倫理面への配慮）

本研究は旭川医科大学倫理委員会の承認を得ている。

C. 研究結果

I. ダニアレルゲンの簡易評価法に関する検討

測定は、集合住宅中の39戸、戸建て住宅17戸、病院1軒、大学1軒で行い、のべ106の床・寝具等より3方法で測定するための検体を得た。Table 1に測定対象の特徴を示す。

Table 2にELISA法による測定結果を示す。Der f1が優位であった。

図1に測定対象の種類によるDer 1値を示す。床の性状では、高い順に、カーペット、畳、フローリングとなっていた。

図2、3に1平方メートル当たりのDer 1量を、簡易測定法の判定基準による箱ひげ図で示した。Spearman 順位相関係数もMC: $r=0.805$ 、AT: $r=0.559$ とMCの方が良好な相関を得ていた。

今回の目的の、WHO基準との比較をTable 3、4に示す。MCでは、①Der 1カットオフ2.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)以上において、+以上を判定基準とすると、感度91.8%、特異度71.1%、②Der 1カットオフ10.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)以上におい

て、+以上を判定基準とすると、感度85.7%、特異度79.5%であった。③Der 1 \leq 2.0、2.0-1.0、 \geq 10.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)との比較では、 $\kappa=0.505$ であった。

ATでは、①Der 1カットオフ2.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)以上において、C以上を判定基準とすると、感度100%、特異度13.3%、②Der 1カットオフ10.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)以上において、B以上を判定基準とすると、感度46.4%、特異度96.2%であった。③Der 1 \leq 2.0、2.0-1.0、 \geq 10.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)との比較では、 $\kappa=0.505$ であった。

II. 比較的築年数の経過した集合住宅における湿度環境とシックハウス症状の検討

Table 5に基本属性を示す。女性の割合が高く、また、高齢者が多くなっていた。また、湿度環境悪化の指標がありと答える割合は高かった。

Table 6にシックハウス症状有症率を示す。女性のほうで、鼻、喉・呼吸器、いずれかの症状に有症率が高かった。

図7に、各要因のオッズ比（単変量解析）を示す。全体として、女性のオッズ比が高く、年齢では30~39歳で、鼻、いずれかの症状のオッズ比が高かった。職業では関連を認めず、アレルギー歴は全てに有意に関連していた。道営住宅に比べ、市営住宅でいずれかの症状のオッズ比が高くなっていた。築年数では有意な関連を認めなかった。部屋数/居住者数は鼻症状で有意な関連を認めた。湿度環境の指標は、多くが各症状に有意に関連していた。

Table 8では、各湿度環境指標の調整オッズ比を示す。調整は、性、年齢（カテゴリー）、アレルギー（あり、なし）、住宅の種類（市営住宅、道営住宅）、部屋数/居住者数（連続数、欠損値は平均値を代用）で行った。いずれかの症状では、風呂のカビ以外、全て有意の関連を認めた。

Table 9では、湿度環境指標数と症状の関連を示す。同様に、調整して各症状で、トレンド検定は有意で、量-反応関係を認めた。

D. 考察

I. ダニアレルゲンの簡易評価法に関する

検討

MC に関しては、Der 2 抗原を測定する方法であるが、開発会社からの有用性の報告があり、学校環境の ELISA で測定した 1 平方メートル当たりの Der f2 との相関は $r=0.83$ と今回の結果と同様であった(9)。今回、我々は WHO の基準で用いられている Der 1 を用いたが、Der 1 と Der 2 の相関は $r=0.9$ 以上で、実測値もほぼ同量から、やや Der 2 が多いと報告されている(10)。

AT は、グアニンを測定する方法であり、フランスで ELISA により測定した dust あたりの Der p1 と良好な相関があることが指摘されている(11)。今回の検討では、キットに付属の集塵袋が長方形で、塵が袋内で分散しているので、それを集めて、測定しにくい欠点があった。それに対し、MC では集塵袋自体をそのまま測定できるので、その問題が無い。ELISA 用の袋も、三角形となっており、頂上に塵がたまるようになっている。前者のフランスの検討では、一つの袋に集めた物を分けて使用している。そのような、測定時の塵の扱いやすさが関係しているかもしれない、キット中の集塵袋を改善したら、測定精度も向上すると考えられる。また、AT で測定しているグアニンは、クモや鳥の糞にも少量であるが含まれていて、影響を受けるとされている(12)。

コスト面では、MC は AT の 2 倍強で、その点がマイナス面であった。

II. 比較的築年数の経過した集合住宅における湿度環境とシックハウス症状の検討

今回、比較的築年数の経過した公営住宅でシックハウス症状を検討したが、有症率は全体で 19.4% であった。ただこれは、全対象者に対する解析対象者の割合は 30.3% であったので、回答のなかったところが、すべて症状が無かったとすると、5.9% となる。これは、対象年齢層も異なるので、単純には比較できないが、築年数の浅い住宅で調査した全国 2,298 軒の調査では 2.0% であったので、高い数字であった(13)。

湿度環境の指標は、前述の調査では、窓の結露 50.0%、窓以外の結露 3.3%、風呂のカビ 33.2%、風呂以外のカビ 10.3%、

カビ臭 7.1%、タオルの乾きにくさ 7.8% と、やはり本対象が湿度環境の指標が悪くなっていた。北欧の古い集合住宅で 9,808 人を調査した報告では、目の症状 8%、鼻の症状 13%、喉の症状 9%、咳 8%、皮膚の症状 8%、z 頭痛 10%、倦怠感 24% と症状の訴えは、本研究より多いが、湿度環境の指標は、窓の結露 6.8~12.5%、タオルの乾きにくさ 7.1~14.1%、カビ臭 2.8~10%、水漏れ 9.6~16.1% と少なくなっている(9)。

可能性としては、今回調査した公営住宅の湿度環境は良いと言えず、それが、シックハウス症状出現のリスクを上昇させていることが考えられる。

E. 結論

ダニアレルゲンの簡易調査法として、今回の検討ではマイティーチェッカーのほうが有用性が高いと考えられた。

北海道の築年数の経過した公営住宅では、湿度環境の指標がシックハウス症状に有意に関連し、湿度環境の改善が必要と考えられた。

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 西條泰明、岸玲子：シックハウ症候群。化学療法 2007 (In press)
- 2) 西條泰明：北海道の一般住宅におけるシックハウス症候群に関する疫学研究。北海道公衆衛生学雑誌 2007 (In press)

2. 学会発表

なし

H. 知的財産権の出願・登録状況（予定を含む。）

なし

1. Yasueda H, Saito A, Nishioka K, Kutsuwada K, Akiyama K. Measurement of Dermatophagoides mite allergens on bedding and human skin surfaces. Clin Exp Allergy 2003; 33: 1654-1658.
2. Simpson A, Simpson B, Custovic A, Cain G,

- Craven M, Woodcock A. Household characteristics and mite allergen levels in Manchester, UK. *Clin Exp Allergy* 2002; 32: 1413-1419.
3. 西條泰明, 岸玲子, 佐田文宏, 片倉洋子, 浦嶋幸雄, 畠山亜希子, 向原紀彦, 小林智, 神和夫, 飯倉洋治. シックハウス症候群の症状と関連する要因 北海道の一般住宅を対象にした実態調査. *日本公衆衛生雑誌* 2002; 49: 1169-1183.
4. Saijo Y, Kishi R, Sata F, Katakura Y, Urashima Y, Hatakeyama A, Kobayashi S, Jin K, Kurahashi N, Kondo T, Gong YY, Umemura T. Symptoms in relation to chemicals and dampness in newly built dwellings. *Int Arch Occup Environ Health* 2004; 77: 461-470.
5. Engvall K, Norrby C, Norback D. Sick building syndrome in relation to building dampness in multi-family residential buildings in Stockholm. *Int Arch Occup Environ Health* 2001; 74: 270-278.
6. Platts-Mills TA, Thomas WR, Aalberse RC, Vervloet D, Champman MD. Dust mite allergens and asthma: report of a second international workshop. *J Allergy Clin Immunol* 1992; 89: 1046-1060.
7. Andersson K. Epidemiological approach to indoor air problems. *Indoor Air* 1998; 8(suppl 4): 32-39.
8. Mizoue T, Reijula K, Andersson K. Environmental tobacco smoke exposure and overtime work as risk factors for sick building syndrome in Japan. *Am J Epidemiol* 2001; 154: 803-808.
9. 田中彩美, 石川哲也, 森脇裕美子, 広田進, 上原弘三. ダニアレルゲン簡易検査法の有用性に関する研究. *学校保健研究* 2002; 44: 309-316.
10. 萩野敏, 榎本雅夫, 和田光雄. アレルギー性鼻炎と住環境ダニ抗原量. *耳鼻咽喉科臨床* 2002; 95: 45-50.
11. van der Brempt X, Haddi E, Michel-Nguyen A, Fayon JP, Soler M, Charpin D, Vervloet D. Comparison of the ACAREX test with monoclonal antibodies for the quantification of mite allergens. *J Allergy Clin Immunol* 1991; 87: 130-132.
12. Kalpakoglu AF, Misirhigil Z, Gubruz L, Demirel YS. Evaluation of exposure to mite allergens; flotation, ELISA and Acarex comparative study. *Allergol Immunopathol (Madr)* 1996; 24: 248-253.
13. 岸玲子, 田中正敏, 吉村健清, 森本兼曩, 吉良尚平, 長谷川友紀, 柴田英治, 西條泰明, 瀧川智子. 「全国規模の疫学研究によるシックハウスの実態と原因の解明」厚生労働科学研究費補助金（健康科学総合研究事業）. 平成15～17年度 総合研究報告書, 2006.

Table 1 測定対象の特徴(n=106)

| | Number | % |
|---------|--------|------|
| 建物の種類 | | |
| 一軒家 | 43 | 40.2 |
| 集合住宅 | 59 | 55.1 |
| 病院 | 3 | 2.8 |
| 大学 | 1 | 0.9 |
| 構造 | | |
| 木造 | 70 | 65.4 |
| 鉄筋 | 36 | 33.6 |
| 測定場所 | | |
| 床 | | |
| フローリング | 37 | 34.6 |
| カーペット | 49 | 45.8 |
| 畳 | 13 | 12.1 |
| 寝具 | 6 | 5.6 |
| ソファ・カバー | 1 | 0.9 |

Table 2 ELISA 測定結果

| | Mean | SD | Median | Min | 25 percentile | 75 percentile | Max |
|---------------------------------|-------|-------|--------|-----|---------------|---------------|--------|
| Der p1(μ g/g \cdot dust) | 2.19 | 7.36 | ND | ND | ND | 0.37 | 55.45 |
| Der f1(μ g/g \cdot dust) | 8 | 15.91 | 2.15 | ND | 0.42 | 8.37 | 110.86 |
| Der 1(μ g/g \cdot dust)* | 10.24 | 17.29 | 2.94 | ND | 0.55 | 11.16 | 110.98 |

*Der p1 + Der f1、NDは0として計算

図1 床の種類-その他によるDer I値

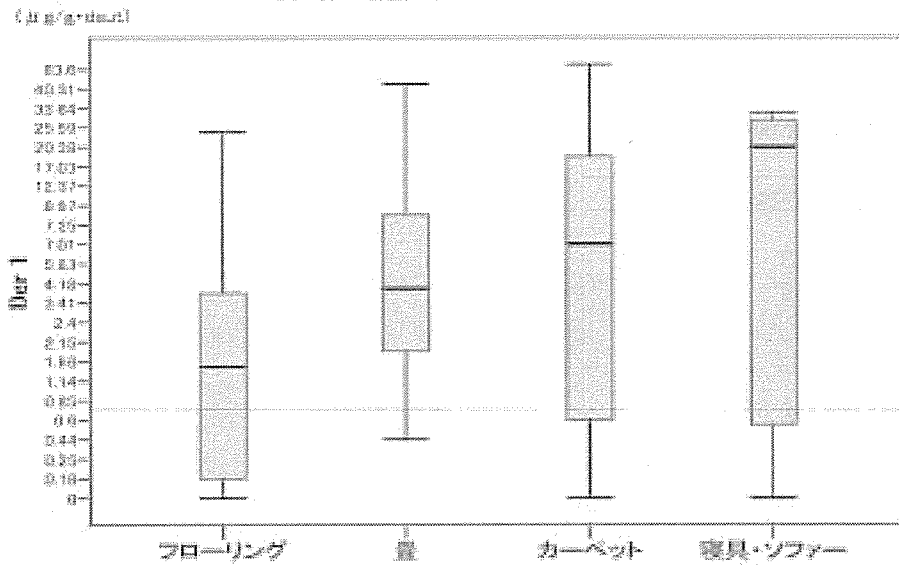


図2 マイティチェッカーとELISAの比較

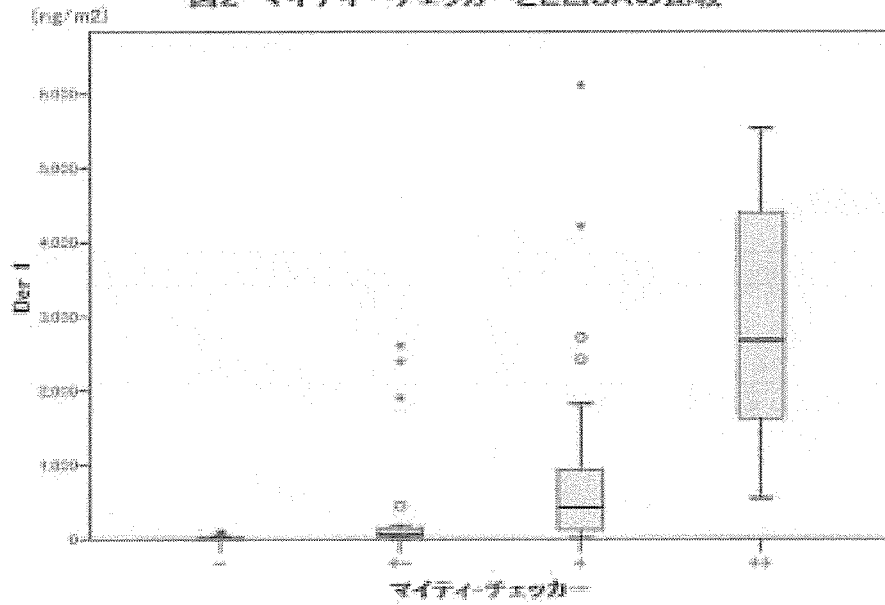


図3 アカレックテストとELISAの比較

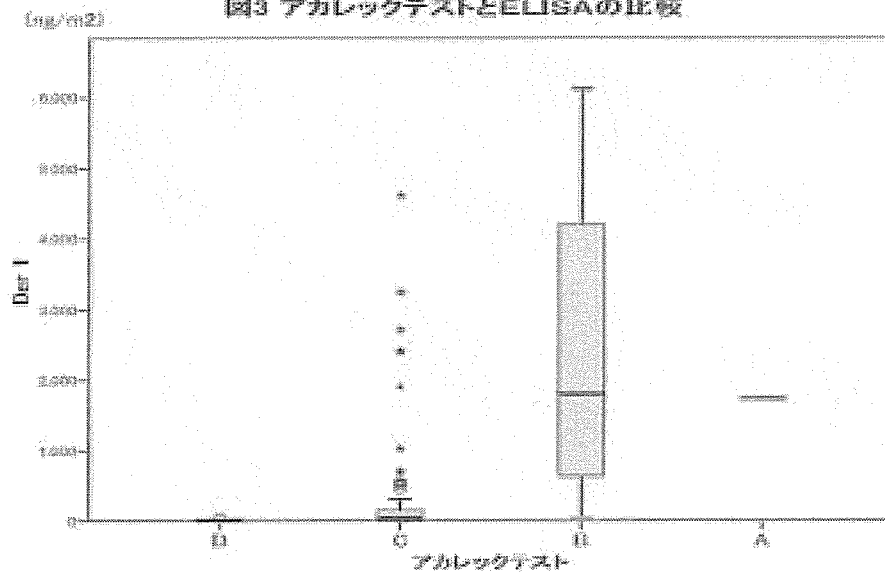


Table 3 マイティーチェッカー(MC)とELISAの比較

①Der 1カットオフ2.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)以上

| | | Der 1 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$) | | 合計 |
|----|------|---|------------|-----|
| | | <2.0 | ≥ 2.0 | |
| MC | (-) | 32 | 5 | 37 |
| | (+-) | 10 | 19 | 29 |
| | (+) | 3 | 29 | 32 |
| | (++) | 0 | 8 | 8 |
| 合計 | | 45 | 61 | 106 |

※(+/-)以上で、感度91.8%、特異度71.1%

②Der 1カットオフ10.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)以上

| | | Der 1 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$) | | 合計 |
|----|------|---|-------------|-----|
| | | <10.0 | ≥ 10.0 | |
| MC | (-) | 37 | 0 | 37 |
| | (+-) | 25 | 4 | 29 |
| | (+) | 15 | 17 | 32 |
| | (++) | 1 | 7 | 8 |
| 合計 | | 78 | 28 | 106 |

※(+/-)以上で、感度85.7%、特異度79.5%

③Der 1 <2.0、2.0-10、 ≥ 10.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)との比較

| | | Der 1 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$) | | | 合計 |
|----|-------------|---|------|-------------|-----|
| | | <2.0 | 2-10 | ≥ 10.0 | |
| MC | (-) | 32 | 5 | 0 | 37 |
| | (+-) | 10 | 15 | 4 | 29 |
| | (+) or (++) | 3 | 13 | 24 | 40 |
| 合計 | | 45 | 33 | 28 | 106 |

$\kappa = 0.505$

Table 4 アカレックテスト(AT)とELISAの比較

①Der 1カットオフ2.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)以上

| | | Der 1 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$) | | 合計 |
|----|---|---|------------|-----|
| | | <2.0 | ≥ 2.0 | |
| AT | D | 6 | 0 | 6 |
| | C | 39 | 44 | 83 |
| | B | 0 | 16 | 16 |
| | A | 0 | 1 | 1 |
| 合計 | | 45 | 61 | 106 |

※C以上で、感度100%、特異度13.3%

②Der 1カットオフ10.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)以上

| | | Der 1 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$) | | 合計 |
|----|---|---|-------------|-----|
| | | <10.0 | ≥ 10.0 | |
| AT | D | 6 | 0 | 6 |
| | C | 69 | 14 | 83 |
| | B | 3 | 13 | 16 |
| | A | 0 | 1 | 1 |
| 合計 | | 78 | 28 | 106 |

※B以上で、感度46.4%、特異度96.2%

③Der 1 <2.0、2.0-10、 ≥ 10.0 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$)との比較

| | | Der 1 ($\mu\text{g/g}\cdot\text{dust}$) | | | 合計 |
|----|--------|---|------|-------------|-----|
| | | <2.0 | 2-10 | ≥ 10.0 | |
| AT | D | 6 | 0 | 0 | 6 |
| | C | 39 | 30 | 14 | 83 |
| | A or B | 0 | 3 | 14 | 17 |
| 合計 | | 45 | 33 | 28 | 106 |

$\kappa = 0.234$

Table 5 Characteristics

| | Number | % |
|-----------------------|-------------|------|
| 性 | | |
| 男性 | 156 | 32.5 |
| 女性 | 324 | 67.5 |
| 年齢 (range) | 18-93 | |
| 30歳未満 | 26 | 5.4 |
| 30～39歳 | 72 | 15.0 |
| 40～49歳 | 56 | 11.7 |
| 50～59歳 | 110 | 22.9 |
| 60歳以上 | 216 | 45.0 |
| 職業 | | |
| 常勤 | 115 | 24.0 |
| 非常勤・パート・アルバイト | 90 | 28.8 |
| 学生 | 4 | 0.8 |
| 無職 | 265 | 55.2 |
| 不明 | 6 | 1.3 |
| アレルギー | 216 | 45.0 |
| 住宅の種類 | | |
| 市営住宅 | 289 | 60.2 |
| 道営住宅 | 191 | 38.3 |
| 築年数 | | |
| 9年以内 | 17 | 3.5 |
| 10～19年 | 12 | 2.5 |
| 20～29年 | 152 | 31.7 |
| 30年以上 | 299 | 62.3 |
| 部屋数 | | |
| 2 | 17 | 3.5 |
| 3 | 255 | 53.1 |
| 4 | 208 | 43.3 |
| 居住者数 (n=474) | | |
| 1 | 166 | 34.6 |
| 2 | 177 | 36.9 |
| 3 | 63 | 13.1 |
| 4-5 | 68 | 14.2 |
| 不明 | 6 | 1.3 |
| 部屋数/居住者数 (n=474) | 2.03 ± 0.94 | |
| 湿度環境 | | |
| 窓の結露 (n=477) | 390 | 81.3 |
| 壁、押入れの結露 (n=470) | 191 | 39.8 |
| 風呂のカビ (n=477) | 378 | 78.8 |
| 壁、窓枠、押入れのカビ (n=474) | 282 | 58.8 |
| カビ臭い臭い (n=477) | 296 | 61.7 |
| 風呂場のタオルの乾きにくさ (n=475) | 301 | 62.7 |
| 水漏れ (n=466) | 97 | 20.2 |
| 風呂の排水が悪い (n=468) | 284 | 59.2 |

Table 6 有症率

| | 男 (%) (n=156) | 女 (%) (n=324) | 全体 (%) (n=480) |
|-------|------------------|------------------|-------------------|
| 眼 | 4.5 | 6.2 | 5.6 |
| 鼻 | 7.1 | 15.1 | 12.5 |
| 皮膚 | 5.1 | 5.9 | 5.6 |
| 喉・呼吸器 | 5.1 | 12.3 | 10.0 |
| 精神・神経 | 3.8 | 7.4 | 6.3 |
| いずれか | 12.8 | 22.5 | 19.4 |