

厚生労働科学研究費補助金

化学物質リスク研究事業

化学物質、特に家庭内の化学物質の暴露評価手法の開発
に関する研究

平成19年度 総括研究報告書

主任研究者

国立医薬品食品衛生研究所

徳永 裕司

分担研究者

国立医薬品食品衛生研究所

神野 透人

城西大学薬学部

杉林 堅次

神奈川県衛生研究所

辻 清美

愛知県衛生研究所

林 留美子

滋賀県衛生科学センター

田中 博子

平成20(2008)年3月

目次

I. 総括研究報告	
化学物質、特に家庭内の化学物質の暴露評価手法の開発に関する研究	1
徳永 裕司	
II. 分担研究報告	
1. 化学物質、特に殺虫剤の経皮暴露量に関する研究	21
杉林 堅次	
2. 空気質中のピレスロイド系殺虫剤の分析法の検討と放散試験試料及び再放出試料 の分析	29
辻 清美	
3. 空気質中のピレスロイド系殺虫剤の分析法の構築と放散試験試料の分 析	43
林 留美子	
4. ピレスロイド系の殺虫剤を対象とした放散試験について	57
田中 博子	
III. 研究成果の刊行に関する一覧	69
IV. 研究成果の刊行物・別冊	69

厚生労働科学研究費（化学物質リスク研究事業）

総括研究報告書

化学物質、特に家庭内の化学物質の暴露評価手法の開発に関する研究

主任研究者 徳永 裕司 国立医薬品食品衛生研究所 部長

家庭用に用いられる化学物質の暴露は、事故による誤飲が原因である経口暴露を除き、化学物質の揮散による気道暴露あるいは製品との接触による経皮暴露が主要な経路である。化学物質の室内暴露評価のスキームを構築するため、化学物質の空気質への揮散量と揮発性から気道暴露モデルを設定することが本研究の目的である。

平成19年度はフタルスリン及びレスメトリンを含むエアゾール剤、プラレトリンを含む液体蚊取り剤及びイムプロトリン及びフェノトリンを含むゴキブリ用エアゾール剤を取り上げ、モデルルームを用いた放散試験の実施と μ -クレゾール、ダイアジノン、レスメトリンを用いた皮膚透過性の評価を行った。

杉林 分担研究員：モデル暴露物質として、昨年に続き μ -クレゾール、さらにダイアジノンとレスメトリンを用い、この水溶液もしくはケロシン溶液を試験製剤とし、ヘアレスラット皮膚透過性を評価した結果と殺虫剤成分の皮膚透過実験後のラット皮膚中濃度を測定した結果を報告する。

辻 分担研究員：放散試験の対象としてプラレトリンを含む液体蚊取「アースノーマット 60 日用」を選択し、モデルルーム（24.3 m³）内で放散試験を行ったところ、プラレトリンの気中濃度は通電後 4-8 時間に最大値（1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ~8.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）を示した。サンプリング位置の高さは床上 1.2 m が 0.2 m よりも高い値を示した。付着量は天井 251~527 $\mu\text{g}/\text{m}^2$ 、壁面 16~194 $\mu\text{g}/\text{m}^2$ 、床面 <14~17 $\mu\text{g}/\text{m}^2$ であり、天井、壁、床の順で高い値を示し、ほとんどが（約 75~90%）が天井に付着していた。

林 分担研究員：ゴキブリ用エアゾール剤「ゴキブリフマキラー」を帯状に 5 秒間噴射し、モデルルーム中央及び四隅の床上 0.2 及び 1.2 m の空気を経時的にサンプリングした。また、モデルルームの床面四隅と中央、壁面四方の中央、天井の四隅と中央に石英フィルタ 2 枚ずつを設置し、室内空気のサンプリング終了後に回収した。その結果、イムプロトリン、フェノトリンの気中濃度は噴射直後が最も高く（イムプロトリン 33~74 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、フェノトリン 34~77 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、その後時間経過とともに濃度は減少し、4 時間後には両物質ともに 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 付近となった。

田中 分担研究者：室内空気中のエンペントリンの分析法の構築に向けて、これまでに本研究により構築されたレスメトリンおよびフタルスリンの分析法を用いて同時分析するため、その方法である石英繊維フィルターとエムポアディスク C18 を積層した捕集剤を使ったアセトンによる超音波抽出・精製法について、検証を行った。

分担研究者

杉林堅次 城西大学薬学部 教授

辻 清美 神奈川県衛生研究所 専門研究員

林 留美子 愛知県衛生研究所 科長

田中博子 滋賀県衛生科学センター 主査

A. 研究目的

家庭用に用いられる化学物質の暴露は、事故による誤飲が原因である経口暴露を除き、化学物質の揮散による気道暴露あるいは製品との接触によ

る経皮暴露が主要な経路である。

気道暴露あるいは経皮暴露は室外での暴露よりもむしろ室内での暴露量が多いと考えられる。化学物質の室内暴露評価のスキームを構築するため、使用頻度の高いバイオサイド（殺虫剤、消毒剤）及び難燃剤を選択し、化学物質の揮散性により大別し、モデルルームを用いた放散試験を行い、空気質中への揮散量と床、壁への吸着量の測定を行う。化学物質の空気質への揮散量と揮発性から気道暴露モデルを設定する。選択した化学物質の経皮吸収試験を実施し、経皮吸収性に対する物質の脂溶性や分子量の影響の程度を調べ、経皮吸収スキームを作成する。モデルルームでの床、壁への吸着量と経皮吸収実験の結果より経皮暴露モデルから居室に居住するヒトが経皮的に体内に吸収する量を設定する。

実際の住環境を用いた実験を実施し、空気質、浮遊粉塵中の化学物質の存在量の測定と居住者の気道あるいは経皮を通じて吸収された化学物質及びその代謝物のバイオモニターを実施し、両モデルの検証と生体暴露の評価に適応する。

この結果は、化学物質の気道暴露評価を化学物質の揮散性、化学物質の経皮吸収暴露を化学物質の脂溶性、分子量という因子により評価できる可能性を導くことができる。また、OECDのバイオサイドタスクフォースでは、家庭用殺虫剤のESDの作成を検討している。ESDでの消費者暴露を推計する算出式の設定の方法を取り入れながら家庭用の化学物質の室内暴露評価モデルの再構築に生かすことが期待される。

本年度は、使用頻度の高いハエ・蚊用エアゾール剤「キンチョール」中の有効成分であるピレスロイド系の殺虫剤のレスメトリン及びフタルスリンについて、モデルルーム内での放散試験、液体蚊取り剤の有効成分であるプラレトリンのモデルルーム内での放散試験並びにゴキブリ用エアゾール剤の有効成分であるイムプロトリン及びフェノトリンのモデルルームでの放散試験を行った。また、化学物質の暴露の一種として皮膚との接触による経皮暴露を取り上げ、*in vitro*皮膚透過実験法を用いて、モデル物質として、*p*-クレゾール、

ダイアジノンとレスメトリンの水溶液もしくはケロシン溶液を試験製剤とし、ヘアレスラット皮膚透過性を評価した結果とこれら殺虫剤成分の皮膚透過実験後のラット皮膚中濃度を測定したので報告する。

B. 研究方法

B-1. 試薬及び材料

ブチルヒドロキシトルエン（BHT）、メタノール、ケロシン、クリセン- d_{12} 、*p*-クレゾール及びダイアジノンは和光純薬製のものを購入して用いた。フタルスリン、レスメトリン、プラレトリン、イミプロトリン、フェノトリン及びエンペントリンは、住友化学より供与されたものを使用した。エムポアディスク C18（直径 47 mm）は 3M 製、石英フィルター（直径 47 mm）は東京ダイレック製、シリカゲルカートリッジは Waters 製 Sep-pak silica を用いた。なお、石英フィルターは 300°C で 2 時間加熱後放冷した。石英フィルター及びエムポアディスク C18 は、1 ppm BHT-メタノール溶液に浸した後すぐに取り出し、風乾後使用した。シリカゲルカートリッジは、1 ppm BHT-メタノール溶液 2 mL を通過させ、窒素気流下で乾燥後使用した。

ハエ・蚊用エアゾール剤「キンチョール」は、大日本除虫菊株式会社より、プラレトリンを含む液体蚊取「アースノーマット 60 日用」はアース製薬株式会社より、イミプロトリン及びフェノトリンを含むゴキブリ用エアゾール剤「ゴキブリフマキラー」はフマキラー株式会社より提供を受けた。

B-2. 皮膚透過実験

WBN/ILA-Ht 系雄性ヘアレスラットの腹部を摘出しフランツ型拡散セル（有効透過面積 0.64 cm²）に挟み、角層側に *p*-クレゾールの水溶液またはケロシン溶液を適用し、真皮側には pH 7.4 等張緩衝液（PBS）を適用して *in vitro* 皮膚透過実験を行った。ただし、レスメトリンはケロシン溶液のみ試験した。90 分まで、経時的にレシーバー側からサンプリングを行い、定法により各殺虫剤成分の皮膚透過量を測定した。

B-3. モデルルーム内での放散試験

日本環境衛生センターに設置されているモデルルーム (24.3 m³) を用いて行った。ハエ・蚊用エアゾール剤の放散試験をプロトコール1に示した。エアゾールは Chamber 4 隅の 1.5m の高さから、壁面に平行に、水平方向に噴射し、噴射時間は各 1.25 秒とした (1.25 秒×4 回=5 秒)。室内空気のサンプリングはモデルルーム中央及び四隅で床上 0.2 及び 1.2 m で、0、2、4、6、8 時間後に採取した。捕集剤は前段に BHT 処理した石英フィルターと後段に BHT 処理したエムポアディスク C18 をろ紙ホルダーに積層し、流速 1 L/分 で 20 分間空気を吸引した。付着量の測定には、モデルルームの床面と天井は 4 隅と中央に石英フィルター各 2 枚ずつ、壁面は四方の中央部分に石英フィルターを 2 枚ずつ設置し、通電 8 時間 20 分後に回収した。換気率を測定後、アエロディスクを中央スタンドの 1.2 m 高にセットし、2 L/min. で 12 時間、アエロディスク用ポンプで吸引し、天井等に吸着したフタルスリン及びフェノトリンの再放出量の測定を行った。

液体蚊取り用の放散試験のプロトコール2に示した。モデルルーム内の中央床面に液体蚊取「アースノーマット 60 日用」を設置し、通電により放散を開始した。室内空気のサンプリングはモデルルーム中央及び四隅で床上 0.2 及び 1.2 m で、通電 2、4、8、12 時間後に採取した。捕集剤は前段に BHT 処理した石英フィルターと後段に BHT 処理したエムポアディスク C18 をろ紙ホルダーに積層し、流速 1 L/分 で 20 分間空気を吸引した。付着量の測定には、モデルルームの床面と天井は 4 隅と中央に石英フィルター各 2 枚ずつ、壁面は四方の中央部分に石英フィルターを 2 枚ずつ設置し、通電 12 時間 20 分後に回収した。再放出試験は天井等付着試験用の石英フィルターを回収後の約 12 時間後から (実験開始 24 時間後) あらかじめ BHT 処理したアエロカートリッジ (SDB400HF) を用い、モデルルーム中央の床上 1.2 m で 2 L/分 で 12

時間空気を吸引捕集し、天井等に吸着したプラレトリンの再放出量の測定を行った。

ゴキブリ用エアゾール剤の放散試験をプロトコール3に示した。モデルルーム内4辺の中央床面それぞれに縦10cm×横100cmの化粧板を敷き、そこに化粧板1枚につきゴキブリ用エアゾール剤「ゴキブリフマキラー」を真上より約20cmの距離から帯状に5秒間噴射した。室内空気のサンプリングはモデルルーム中央及び四隅で床上0.2及び1.2mで、エアゾール噴射直後、1、2、4、8時間後に採取した。モデルルームの床面4隅と中央、壁四方の中央、及び天井四隅と中央に石英フィルター各2枚ずつを設置し、噴射後8時間目のサンプリング終了後に回収した。再放出試験は、床面等付着試験用の石英フィルターを回収後、実験開始約9時間後からあらかじめBHT処理したアエロカートリッジ (SDB400HF) を用い、モデルルーム中央の床上1.2mで2L/分で12時間空気を吸引捕集し、床面等に吸着したイミプロトリン及びフェノトリンの再放出量の測定を行った。

以上の試験を2回繰り返し実施し、国立医薬品食品衛生研究所、神奈川県衛生研究所、愛知県衛生研究所、滋賀県衛生科学センターの4機関で分析を行った。

B-3. 空気及び床面付着試料のサンプリング

ハエ・蚊用エアゾール剤の場合の空気の採取は、モデルルーム内中央の床上0.2及び1.2mの高さで、噴射直後、2、4、6、8時間後に行った。捕集剤は、前段に石英フィルター、後段にエムポアディスクC18を用い、ろ紙ホルダーにセットした。空気の吸引量は、流速1L/分で20分間とした。液体蚊取り剤の場合の空気の採取は、モデルルーム内中央の床上0.2及び1.2mの高さで、通電2、4、8、12時間後に採取した。ゴキブリ用エアゾール剤の場合の空気採取は、噴射直後、1、2、4、8時間後に採取した。採取後の捕集剤は、アルミホイルに包み、冷蔵保存した。

付着量の測定には、モデルルームの床面と天井は4隅と中央に石英フィルター各2枚ずつ、壁面は四方の中央部分に石英フィルターを2枚ずつ設

置し、エアゾール剤の場合には、噴射 8 時間 20 分後、液体蚊取り剤の場合には 12 時間 20 分後に回収した。回収した石英フィルターは、アルミホイルに包み、冷蔵保存した。

モデルルーム内のクリーニングは、各放散試験終了後に、洗剤と水を用いた拭き掃除と、12 時間以上の強制換気を行った。

B-4. 皮膚透過実験

WBN/ILA-Ht 系雄性ヘアレスラットの腹部を摘出しフランツ型拡散セル (有効透過面積 0.64 cm²) に挟み、角層側に μ -クレゾールの水溶液またはケロシン溶液を適用し、真皮側には pH 7.4 等張緩衝液 (PBS) を適用して *in vitro* 皮膚透過実験を行った。ただし、レスメトリンはケロシン溶液のみ試験した。90 分まで、経時的にレシーバー側からサンプリングを行い、定法により各殺虫剤成分の皮膚透過量を測定した。

B-5. 皮膚中濃度測定実験

皮膚透過実験で使用した皮膚の有効透過面積部位を切除、細断した。PBS を加え、氷冷下で電動ホモジナイザー (Polytron PT-MR 3000, Kinematica, Switzerland) を用いて、10,000 rpm, 3 min, 4°C でホモジネートを作成した。このホモジネートに同量のジクロロメタンを加え、振とう後、ジクロロメタン層を分取し、定法により各殺虫剤成分の皮膚貯留量を測定した。

B-6. ピレスロイド類の定量操作法

エアゾール剤の放散試験でのピレスロイドの測定には、下記の方法を用いた。

(1) 測定

捕集剤を 10 mL の共栓試験管に入れ、アセトン 5 mL 及び内部標準溶液 (10 ppm クリセシ- d_{12}) 50 μ L を加えた後、10 分間超音波を照射した。その後、2000~3000 rpm で 5 分間遠心分離し、得られた上清 2 μ L を GC/MS に注入した。

(2) 検量線及び定量方法

フタルスリン、レスメトリン、プラレトリン、イミプロトリン及びフェノトリンの濃度が 0.01、

0.02、0.05、0.1、0.2、0.5、1.0 ppm となるようにアセトンで段階的に希釈した。また、内部標準溶液としてクリセシ- d_{12} を 0.1 ppm となるように添加した。検量線は、各濃度の混合標準溶液を GC/MS で測定し、測定した標準物質の量と、検出された測定対象物質及び内部標準物質のピーク面積比から作成した。

なお、フタルスリン、レスメトリン、イミプロトリン及びフェノトリンはともに 2 つのピーク (異性体) として検出されるため、それぞれの大きい方のピークのみを用いた。フェノトリン及びクリセシ- d_{12} は 1 つのピークを示した。また、検量線は 0.01~1.0 ppm の濃度範囲において二次曲線となるため、0.01~0.2 ppm と 0.2~1.0 ppm の濃度範囲に分けて作成し、測定濃度に応じて使い分けることにした。

GC/MS の条件は以下のようであった。

1. GC/MS 条件(1)

装置 : Agilent 6890N GC/5973N MSD

イオン源 : EI

カラム : HP-5MS SV

(30 m x 0.25 mm ID、膜厚 0.5 μ m)

カラム温度 : 80°C (3 分) \rightarrow 20°C/分 \rightarrow 240°C \rightarrow 10°C/分 \rightarrow 300°C (5 分)

キャリアガス : He (カラム流量 1.2 mL/分)

注入口温度 : 250°C

試料注入法 : パルスドスプリットレス

四重極温度 : 150°C

イオン源温度 : 230°C

検出法 : 選択イオン検出 (SIM)

モニターイオン : フタルスリン m/z 164、

レスメトリン m/z 123、クリセシ- d_{12} m/z 240、

プラレトリン m/z 123、イミプロトリン m/z

123、フェノトリン m/z 123

2. GC/MS 条件(2)

装置 : 島津 GCMS-QP2010

イオン源 : EI

カラム : Rtx-5MS

(30 m x 0.32 mm ID、膜厚 0.25 μ m)

カラム温度 : 50°C (2 分) \rightarrow 50°C/分 \rightarrow 150°C \rightarrow 8°C/分 \rightarrow 278°C (0 分)

キャリアガス：He（カラム流量 2.24 mL/分）
 注入口温度：250°C
 試料注入法：パルスドスプリットレス
 四重極温度：230°C
 イオン源温度：250°C
 検出法：選択イオン検出（SIM）
 モニターイオン：GC/MS 条件(1)と同じ

B-6. 皮膚透過実験の定量法（HPLC 分析）

皮膚透過実験で得られた μ -クレゾール及びダイアジノンサンプルは、アセトニトリルまたは酸化防止剤 BHT（2,6-Di-*t*-butyl-4-methylphenol）入りメタノールと 1:1 で混和し、遠心分離した上清 20 μ L を HPLC に注入した。皮膚中濃度測定サンプルはジクロロメタン層をそのまま注入した。HPLC 分析に用いた移動相、検出波長は、以下の通りであった。

（HPLC 条件）検出器：SHIMADZU, UV-VIS DETECTOR SPD-10A、カラム：SUPERIOREX ODS S-5 μ m 4.6×250 mm（SHISEIDO）、カラム温度：40° C、 μ -クレゾール、移動相：アセトニトリル：水=4：6、流速：1.2 mL/min、波長：280 nm、ダイアジノン、移動相：アセトニトリル：メタノール：水=6：2：2、流速：1.2 mL/min、波長：245 nm

B-7. 皮膚透過実験の定量法（GC/MS 分析）

皮膚透過実験で得られたレスメトリンサンプルは BHT 入りメタノールと 1:1 で混和し、この混液 0.5 mL に同量のジクロロメタンを加え、1 分間振とう後、ジクロロメタン層を GC/MS に注入した。皮膚中濃度測定サンプルはジクロロメタン層をそのまま注入した。GC/MS 分析に用いた移動相、検出波長は、以下の通りであった。

（GC/MS 条件）検出器：Agilent 6890N, 5973inert、カラム：HP-5MS（30 m x 0.25 mm ID、膜厚 0.25 μ m）、注入方式：パルスドスプリットレス、2 μ L、注入口温度：280° C、イオン源温度：230° C、四重極温度：150° C、カラム温度：50° C（2分）、40° C/分→170° C、6° C/分→300° C（2分）、内部標準物質：クリセン-d12、移動相：

He（カラム流量 1 mL/分）、検出法：選択イオン検出、モニターイオン：レスメトリン（*m/z* 123、171）、クリセン-d12（*m/z* 240、223）

B-8. 倫理面への配慮

研究の目的は、家庭用に用いられる化学物質、特に使用頻度の高いバイオサイド及び難燃剤を選択し、モデルルームでの床、壁への吸着量と経皮吸収実験の結果より経皮暴露モデルから居室に居住するヒトが経皮的に体内に吸収する量を設定することである。

本年度はモデルルームでのピレスロイド含有のエアゾール剤及び液体蚊取り剤の放散試験及び *in vitro* 皮膚透過実験法として、動物皮膚及び培養皮膚を用いて検討であった。最終年度の検討でヒトを対象とした暴露量調査を計画する際には、調査対象者への研究目的の説明と承諾を文章による承諾を得ると同時に調査対象者の個人情報の管理のための統括責任者を置き、統括責任者のもとで、ランダムに振られた番号を使い、実験データの管理を実施する。更に、国内実験室研究については、各参加機関の倫理委員会の承諾を得て実験を実施する予定である。

C. 結果及び考察

C-1. フタルスリン、レスメトリンを含むハエ・蚊用エアゾール剤のモデルルームでの放散試験

(1) 室内空気中濃度

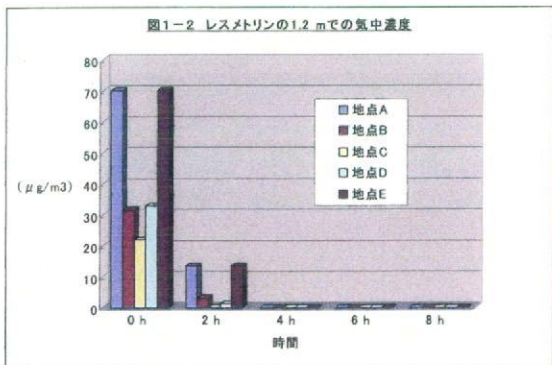
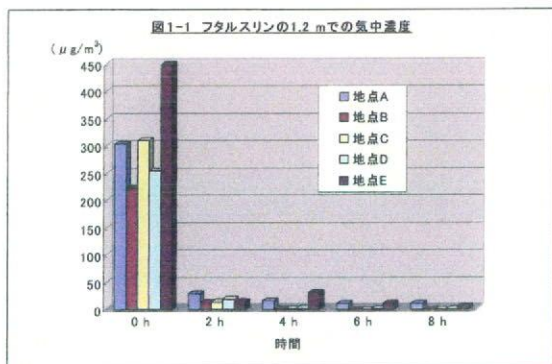
モデルルーム内の 4 隅から中央に向けてフタルスリン及びレスメトリンを含有するハエ・蚊用エアゾール剤を噴霧し、放散試験を開始した。

室内空気のサンプリングはモデルルーム中央及び四隅で床上 0.2 及び 1.2 m で、噴霧直後、2、4、6、8 時間後に毎分 1 L の流速で 20 分間捕集し、放散量を測定した。放散試験の実施状況を表 1 に示した。

表1 ハエ・蚊用エアゾール剤の放散試験の実施状況

測定日	第1回目 9月13日	第2回目 9月28日
換気回数(回/hr)	0.81	0.66
0 hr	0.81	0.66
8 hr 20 min	0.45	0.62
温度	28.6~29.1	28.8~29.4
湿度	49~71	54~56
エアゾール噴射量	2.21 g/5 sec	2.55 g/5 sec

フタルスリンの気中濃度は照射直後に床上 0.2 m の位置に設置された捕集器で最大値を示し、A～E 地点での濃度は 1 回目の放散試験で 178, 130, 110, 106 及び 184.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。同様に 2 回目の放散試験では、0.2 m の位置では、それぞれ、82.6, 104, 188, 115.2 及び 66.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。また、床上 1.2 m の位置に設置された捕集器でも最大値を示し、A～E 地点での濃度は、1 回目の放散試験では 303, 222, 309, 253 及び 448 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、2 回目の放散試験では 94, 257, 22, 142 及び 448 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。図 1-1 及び図 1-2 に 1.2 m の位置での各捕集地点(A, B, C, D, E)でのフタルスリン及びレスメトリンの気中濃度の経時変化を示した。



中央部 (地点 E) のフタルスリン及びレスメトリンの量が一番高い値を示しているが、時間の経過に伴い、急速に気中からピレスロイドが消失していることが明らかになった。

モデルルームの測定地点 5 カ所の平均値を用いた 1 及び 2 回の放散試験のピレスロイドの気中濃度の変化を表 2 に示した。サンプリング位置の高さは床上 1.2m が 0.2m よりも照射直後のフタル

スリン及びレスメトリンの濃度が高い値を示した。

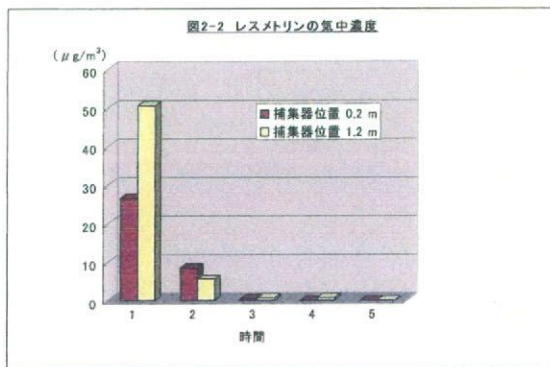
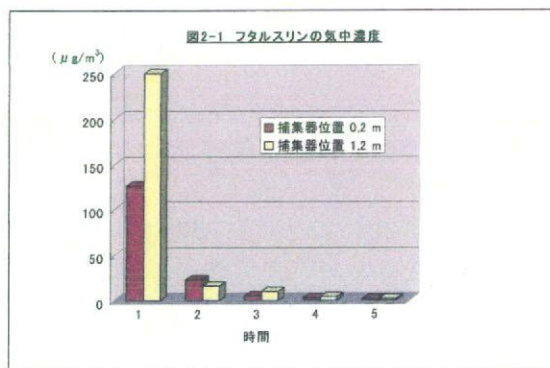
表2 ハエ・蚊用エアゾール剤の気中濃度の経時変化 [フタルスリン] ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

噴射後経過時間 (時間)	0	2	4	6	8
0.2m-1回目	141.7	26.0	4.3	4.7	3.5
0.2m-2回目	111.3	19.5	6.0	2.4	0.4
1.2m-1回目	307.1	17.6	10.5	4.7	3.5
1.2m-2回目	192.3	14.8	9.8	4.5	1.5

[レスメトリン] ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

噴射後経過時間 (時間)	0	2	4	6	8
0.2m-1回目	37.2	10.6	0.8	0.2	0.2
0.2m-2回目	16.2	6.3	0.3	0.0	0.0
1.2m-1回目	45.3	6.3	0.0	0.0	0.0
1.2m-2回目	55.9	4.7	1.6	1.6	0.0

2 回の放散試験の気中濃度経時変化を図 2-1 及び図 2-2 に示した。



フタルスリン及びレスメトリンの気中濃度の経時変化はほぼ同じであり、エアゾール剤からモデルルーム中に放散された両ピレスロイドは同様な挙動を示しながら減衰することが観察された。

(2) 床面等付着量

付着量はモデルルームの床面と天井は 4 隅と中央に石英フィルター各 2 枚ずつ、壁面は四方の中央部に石英フィルターを 2 枚ずつ設置し、8 時間 20 分後にすべて回収し、分析を行った。その結果、

を表3に示した。

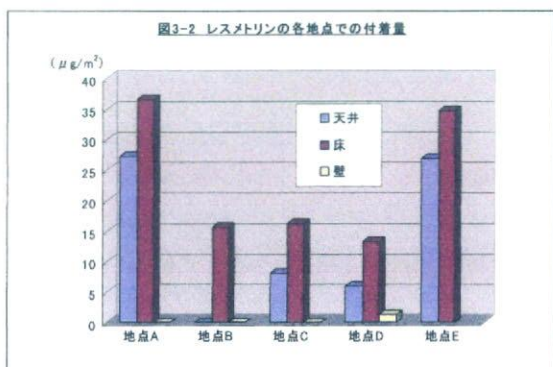
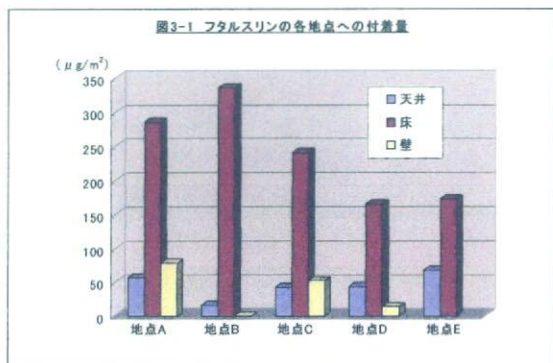
表3 プレスロイドの各地点での付着量

(1)フタルスリン($\mu\text{g}/\text{m}^2$)					
第1回放散試験					
	地点A	地点B	地点C	地点D	地点E
天井	102	17	29	46	119
床	404	279	278	194	196
壁	114	0	43	11	
第2回放散試験					
	地点A	地点B	地点C	地点D	地点E
天井	10	15	57	41	17
床	168	393	203	137	149
壁	42	0	61	17	-

(2)レスメトリン($\mu\text{g}/\text{m}^2$)					
第1回放散試験					
	地点A	地点B	地点C	地点D	地点E
天井	53	0	0	7	53
床	61	11	8	14	61
壁	0	0	0	3	-
第2回放散試験					
	地点A	地点B	地点C	地点D	地点E
天井	1	0	16	6	1
床	12	20	25	13	8
壁	0	0	0	0	-

床へのフタルスリン及びペルメトリンの付着量が一番高い値を示すことが分かった。測定地点でのプレスロイドの付着量に大きな差は見られなかった。

2回の放散試験の付着量のデータを用い、各測定地点への付着量を計算し、図3-1及び図3-2に示した。



プレスロイドの床への付着量が一番高く、天井、壁の順番で付着量が低下していた。

C-2. プラレトリンを含む液体蚊取り剤のモデルルームでの放散試験

(1) 室内空気中濃度

モデルルーム内の中央床面にプラレトリンを含む液体蚊取り「アースノーマット 60 日用」を設置し、通電により放散を開始した。

室内空気のサンプリングはモデルルーム中央及び四隅で床上0.2及び1.2 mで、通電後2、4、8、12時間後に毎分1 Lの流速で20分間捕集し、放散量を測定した。プラレトリンの気中濃度は通電後4-8時間後で最大値 ($1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 8.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$)を示した。サンプリング位置の高さは床上1.2 mが0.2 mよりも高い値を示した。特に、2回目の床上1.2 mが高い値を示した。また、各サンプリング地点におけるプラレトリン気中濃度の違いについては、特徴的な傾向は認められなかった。

(2) 床面等付着量

付着量はモデルルームの床面と天井は4隅と中央に石英フィルター各2枚ずつ、壁面は四方の中央部に石英フィルターを2枚ずつ設置し、通電12時間20分後にすべて回収し、分析を行った。その結果、天井のプラレトリン付着量は $251 \sim 527 \mu\text{g}/\text{m}^2$ 、であり、測定地点中央が一番高い値であった。壁面は $16 \sim 194 \mu\text{g}/\text{m}^2$ 、床面 $14 \sim 17 \mu\text{g}/\text{m}^2$ であり、天井、壁、床の順で高い値を示した。プラレトリンは通電(加熱)により、揮散、上昇し、付着量の約75~90%が天井に付着したと考えられた。

1回目と2回目を比較すると、天井は1回目の値が高く、壁面と床面は2回目が高い値を示した。気中濃度も、2回目が高かったことから、1回目(室温約 27.5°C)は、プラレトリン付着量の約90%は、天井に付着したが、2回目は1回目より温度が低かった(約 26°C)ため、天井への付着量は約75%と1回目より減少し、その分が壁面への付着を6%から22%へ増加させ、気中濃度(床面1.2 m)も1回目より高い値を示したと考えられた。

C-3. イミプロトリン及びフェントリンを含むゴキブリ用エアゾール剤のモデルルームでの放散

試験

(1) 室内空気中濃度

モデルルーム内四辺の床に、ゴキブリ用エアゾール剤「ゴキブリマキラー」を噴射し、モデルルーム内中央及び四隅の床上0.2及び1.2mの空気を経時的にサンプリングして得られた試料の分析を行った。その結果、気中濃度5地点の平均値は、イミプロトリン、フェノトリンともに噴射直後が最も高く、その後時間経過とともに減少した。イミプロトリンの気中濃度は4時間後には $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ 未満となり、フェノトリンにおいても8時間後には $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ 付近となった。床からの高さでは、イミプロトリン、フェノトリンともに噴射直後では床上0.2mのほうが1.2mより高濃度であったが、1時間後には同程度となった。この結果から、イミプロトリン及びフェノトリンの気中濃度は、噴射直後には噴射した床面により近い床上0.2mで高濃度となり、時間の経過とともに室内空気の拡散によって均一化し、さらに換気によって減少していくことが明らかとなった。

(2) 床面等付着量

モデルルームの床4隅と中央、壁四方の中央及び天井四隅と中央に石英フィルターを設置し、噴射後8時間目のサンプリング終了後に回収した試料の分析を行った。その結果、イミプロトリン、フェノトリンいずれも床面への付着量が非常に多く(イミプロトリン $316\sim 1274\mu\text{g}/\text{m}^2$ 、フェノトリン $423\sim 1252\mu\text{g}/\text{m}^2$)、壁ではイミプロトリン、フェノトリンともに $20\mu\text{g}/\text{m}^2$ 未満、天井ではイミプロトリン $20\mu\text{g}/\text{m}^2$ 未満、フェノトリン $7\sim 31\mu\text{g}/\text{m}^2$ と、壁、天井への付着量は少量であった。この結果から、床面に噴射して使用するゴキブリ用エアゾール剤では、噴射された薬剤の多くが床面に吸着し、壁や天井への揮散による吸着はほとんどないと考えられた。

C-4. 再放出試験試料の分析

(1) プラレトリンの再放出試験

放散試験終了(液体蚊取「アースノーマット60日用」の通電を止めた後)の約12時間後から再放散試験を開始した。天井面、床面や壁面からの再

放出は平均温度 $24\sim 27^\circ\text{C}$ 前後で12時間吸引したところ、プラレトリン $0.06\sim 0.43\mu\text{g}/\text{m}^3$ が検出された。天井等に付着したプラレトリンはわずかであるが、再放出することを確認した。

(2) イミプロトリン及びフェノトリンの再放出試験

再放出試験は、ゴキブリ用エアゾール剤を噴射後約9時間後から、モデルルーム中央の床上1.2mで12時間空気を吸引捕集し、床面等に吸着したイミプロトリン及びフェノトリンの再放出量を測定した。その結果、イミプロトリン、フェノトリンの再放出量は、1回目、2回目ともにいずれも定量下限値($0.007\mu\text{g}/\text{m}^3$)未満であり、床面等に吸着した両物質はほとんど再放出しないと考えられた。

C-5. エンペントリン分析法の検証結果

エンペントリンは、5つのピーク(異性体)が検出された。

検量線は、ピークと内部標準物質であるクリセン-d12のピークとの面積比により、エンペントリン1~5(異性体)の各ピークおよび各ピークを合計して1ピークとするエンペントリン6について、作成した。また、 $0.01\sim 0.1\mu\text{g}/\text{mL}$ を低濃度定量用、 $0.1\sim 2.0\mu\text{g}/\text{mL}$ を高濃度定量用とした。

抽出・精製法による添加回収試験では、各ピークの回収率は、エンペントリン1が103%、エンペントリン2が101%、エンペントリン3が103%、エンペントリン4が88%、エンペントリン5が101%、1~6を合計したエンペントリン6が98%であった。

C-6. 皮膚透過実験

角層を有する全層膜(intact skin)を介する μ -クレゾールの透過性はクロシン基剤を用いた方が、pH7.4リン酸緩衝液(PBS)を基剤として用いた場合と比較して高い値を示した。一方、角層を除去した皮膚(stripped skin)を介した μ -クレゾールの透過性は基剤の種類によらず同程度であった。これらを速度論解析した結果、基剤としてクロシンを用いた場合の K_{sc} および D_{sc} はそれぞれ 73 、 $1.7\times 10^{-9}\text{cm}^2/\text{s}$ 、であり K_{ved} および D_{ved} はそれ

ぞれ、 $3.1, 5.5 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$ であった。一方、PBSを基剤として用いた場合の K_{sc} および D_{sc} はそれぞれ、 $7.4, 1.7 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$ 、であり K_{ved} および D_{ved} はそれぞれ、 $2.8, 6.3 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$ であった。これらの結果より、ケロシン基剤は、*p*-クレゾールの角層への分配性を著しく増加させることが分かった。

ダイアジノンのラット皮膚透過性は、角層を有する全層膜 (intact skin) および角層を除去した皮膚 (stripped skin) どちらを介しても、ケロシン基剤および pH7.4 リン酸緩衝液 (PBS) を基剤の両方でダイアジノンの皮膚透過性は観察されなかった。また、レスメトリンのラット皮膚透過性も、角層を有する全層膜 (intact skin) および角層を除去した皮膚 (stripped skin) どちらを介しても、ケロシン基剤および pH7.4 リン酸緩衝液 (PBS) を基剤の両方でレスメトリンの皮膚透過性は観察されなかった。さらに、ドナー濃度を10倍にし、レシーバーに4%アルブミンを添加し、実験時間を90分から24時間に延長した系でもレスメトリンの皮膚透過性は観察されなかった。このことから、ダイアジノンおよびレスメトリンは真皮下部には移行しないか、皮膚上層に分配分布することが考えられた。

C-7. 皮膚中濃度

皮膚透過実験後の *p*-クレゾールの皮膚中濃度は、intact skin において、ケロシン基剤を用いたときは $15.0 \text{ mg}/\text{cm}^3$ 、PBS 基剤を用いたときの皮膚中濃度は $7.49 \text{ mg}/\text{cm}^3$ であり、ケロシンを基剤に用いた方が2.0倍高かった ($P < 0.01$)。また、stripped skin において、ケロシン基剤を用いたときの *p*-クレゾール皮膚中濃度は $7.39 \mu\text{g}/\text{cm}^3$ 、PBS 基剤を用いたときの皮膚中濃度は $7.20 \mu\text{g}/\text{cm}^3$ であり、油基剤と水基剤間で違いが見られなかった。*p*-クレゾールの皮膚中濃度は、intact skin にケロシン基剤を適用した系で最も高かった。

皮膚透過実験後のダイアジノンの皮膚中濃度は、intact skin において、ケロシン基剤もしくはPBS基剤のいずれを用いた場合でも $0.23 \text{ mg}/\text{cm}^3$ であ

った。特に、ケロシン基剤適用した場合は適用したダイアジノン量の34.8%が、皮膚中に貯留した。また、stripped skin において、ケロシン基剤を用いたときのダイアジノン皮膚中濃度は $0.12 \text{ mg}/\text{cm}^3$ 、PBS 溶液を用いたときの皮膚中濃度は $0.21 \text{ mg}/\text{cm}^3$ であった。これらの結果より、ダイアジノンは基剤によらず高い皮膚貯留性を示すことが分かった。

ケロシン基剤を用いて調製した $0.2 \text{ mg}/\text{mL}$ レスメトリン溶液を皮膚に適用した後の皮膚中濃度を調べた。 $0.2 \text{ mg}/\text{mL}$ レスメトリン溶液を intact もしくは stripped skin に適用した時の皮膚中濃度はそれぞれ $0.024 \text{ mg}/\text{cm}^3, 0.018 \text{ mg}/\text{cm}^3$ であり、ダイアジノンと同様に皮膚貯留性が認められた。しかしながら、皮膚に貯留しているレスメトリン量は適用したレスメトリン量の1%にも相当しなかったことから、レスメトリンはほとんど皮膚には分配しないことが推定された。

皮膚に適用された化学物質による刺激性は、基本的にはその物質が持つポテンシャルとその作用部位への送達性によって決定される。本報告で用いたケロシン基剤は、*p*-クレゾールの皮膚への高い分配性を示し、低濃度の物質をも皮膚へ浸透しやすくなる可能性を示した。また、ケロシン基剤を用いた場合には、PBS 基剤と比較して生きた表皮中の *p*-クレゾール濃度が高いことから、皮膚中物質濃度と皮膚刺激性についても十分に検討する必要があると思われた。

ダイアジノンは、皮膚透過性がみられないものの、皮膚貯留性がかなり高く、その毒性が懸念される結果となった。

レスメトリンは、皮膚透過性および皮膚貯留性がほとんどみられないことから、その使用に問題はないと考えられた。

D. 結論

1. モデルルーム内でのハエ・蚊用エアゾール剤の放散試験は、気中濃度において、中央部のフタルスリン及びレスメトリン量が一番高い値を示した。サンプリング位置の床上1.2 m が0.2 m に比べて照射直後は高い値を示し、エアゾール剤が気中に

放散して行き、徐々に均一化されて行くことが観察された。フタルスリン及びレスメトリンの気中からの減衰はほぼ同様な挙動を示すことが観察された。

2. モデルルーム内でのハエ・蚊用エアゾール剤の放散試験は、付着量において、床面が一番高い付着量を示し、天井、壁の順番であった。

3. モデルルーム内で液体蚊取り「アースノーマット 60 日用」の放散試験を行ったところ、プラレトリンの気中濃度は通電後 4-8 時間後に最大値 ($1.5 \cdot \text{g}/\text{m}^3 \sim 8.0 \cdot \text{g}/\text{m}^3$) を示した。サンプリング位置の高さは床上 1.2 m が 0.2 m よりも高い値を示した。

4. 天井等への付着量は天井 $251 \sim 527 \cdot \text{g}/\text{m}^2$ 、壁面 $16 \sim 194 \cdot \text{g}/\text{m}^2$ 、床面 $14 \sim 17 \cdot \text{g}/\text{m}^2$ であり、天井、壁、床の順で高い値を示した。通電 (加熱) により、揮散、上昇し、付着量の約 75~90% が天井に付着したと考えられた。

5. モデルルーム内での液体蚊取り「アースノーマット 60 日用」の放散試験終了から 12 時間後に再放出試験を開始した。気中からプラレトリン $0.06 \sim 0.43 \mu\text{g}/\text{m}^3$ が検出された。天井等に付着したプラレトリンはわずかであるが、再放出することを確認した。

6. モデルルーム内でのゴキブリ用エアゾール剤「ゴキブリフマキラー」の放散試験の結果、噴射直後に気中濃度が最も高くなり (イミプロトリン $33 \sim 74 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、フェノトリン $34 \sim 77 \mu\text{g}/\text{m}^3$)、その後時間経過とともに濃度は減少し、4 時間後には両物質ともに $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 付近となった。

7. 床面等付着量については、床面の付着量が最も多く (イミプロトリン $316 \sim 1274 \mu\text{g}/\text{m}^2$ 、フェノトリン $422 \sim 1252 \mu\text{g}/\text{m}^2$)、壁、天井への付着はほとんどみられなかった。

8. 再放出試験はゴキブリ用エアゾール剤を噴射後約 9 時間後から、モデルルーム中央の床上 1.2 m で 12 時間空気を吸引捕集し、床面等に吸着したイミプロトリン及びフェノトリンの再放出量を測定した。その結果、両物質の再放出量は検出下限値 ($0.007 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 未満であった。

9. 室内空気中のエンペントリンの分析法の構築

に向けて、これまでに本研究で構築したレスメトリンおよびフタルスリンの分析法で同時分析するため、その方法である石英繊維フィルターとエムポアディスク C18 を積層した捕集剤を使ったアセトンによる超音波抽出・精製法について、検証を行った。内部標準物質としてクリセン- d_{12} を添加したアセトンによる超音波抽出後、ガスクロマトグラフ質量分析計の SIM 法により測定した結果、エンペントリンは、5 つのピーク (異性体) が検出された。いずれのピーク面積、または 5 ピークの合計面積を 1 ピークの面積として、内標準物質との面積比により定量しても良好な回収率が得られた。本抽出・精製法及び測定法により、可能であることがわかった。実態調査では、5 つのピークを合計し、内標準物質との面積比により定量することとした。これによる定量下限値は $0.0007 \mu\text{g}/\text{mL}$ であった。なお、捕集方法等については、今後の課題である。

10. *p*-クレゾールの皮膚透過性は基剤により異なり、クロシンを基剤として用いた場合には PBS を基剤として用いた場合と比較して皮膚透過性が増加することがわかった。

11. *p*-クレゾールの累積透過データの実測値を Fick の拡散則に基づく差分式を用いた非線形最小二乗法で解析した結果、クロシン基剤は PBS 基剤と比較して *p*-クレゾールの皮膚分配性を大きくすることが分かった。

12. *p*-クレゾールは皮膚透過性が観察されたため、*p*-クレゾールが全身循環系に入ることによる毒性の発現を考えなくてはいけないことが分かった。

13. ダイアジノンには皮膚透過性がみられないものの、皮膚貯留性が高く、皮膚中に高濃度で存在するため、皮膚局所刺激性について十分に検討する必要があることが分かった。

14. レスメトリンは皮膚透過性がみられないため、皮膚貯留性が期待されたが、皮膚中にもほとんど存在していなかった。そのため、皮膚局所刺激性についてもほとんどないのではないかと考えられ

た。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

1) 辻 清美、上村 仁、伏脇裕一、長谷川一夫、徳永裕司、室内空気中のシロアリ駆除剤等農薬成分濃度に関する研究、平成19年度室内環境学会、平成19年12月

2) 田中博子、辻 元宏 : 室内環境におけるエアゾール殺虫剤成分の物理的動態について、第66回日本公衆衛生学会総会、平成19年10月

3) Hiroshi Tokunaga, Kiyomi Tuji, Kimio Kondo, Hiroko Tanaka: Studies for exposure assessment of phthalthrin and resmethrin in Peet-Grady Chamber sprayed by the aresol, EUROTOX 2007, October 2007

4) 田中博子、山中 直 : 室内環境におけるエアゾール殺虫剤成分の物理的動態について、第38回滋賀県公衆衛生学会、平成20年2月

5) 中田圭一、藤堂浩明、辻清美、徳永裕司、杉林堅次、家庭内化学物質の経皮暴露評価：p-クレゾールおよび市販殺虫剤成分、日本薬学会第128年会、平成20年3月

F. 知的財産権の出願・登録状況

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

プロトコール1 「簡易型チャンバー室を用いたハエ・蚊用エアゾール剤の放散試験」

1. 事前準備

- 1) 石英フィルタのみを 300℃で 2 時間焼く。
- 2) 1ppmBHT メタノール溶液に、石英フィルタとエムポアディスクを浸漬し、30 分程度風乾する。アエロディスクには、0.1ml の 1ppmBHT メタノール溶液を添加し、15 分程度風乾する。
- 3) Chamber 内の換気率を炭酸ガスを用いて測定し、0.5～1.0 回/hr の範囲内の換気率であれば試験を開始する。

2. サンプルングおよび薬剤処理方法

1) Chamber (24.3 m³) 内へのサンプルング機材のセット

- ① Chamber 4 隅、中央にスタンドを置き、1.2m および 0.2m の位置に、各 5 個 (直後、2,4,6,8 時間後採取用) ずつホルダをセットする。
- ② ホルダには石英フィルタ、エムポアディスク各 1 枚をセットする (エムポアディスクを吸引側にセットし、石英フィルタのスムーズ面を表にして吸入側にセットする)。
- ③ 直後のサンプルング用ホルダを除いて、アルミホイル等を用いてカバーをし、遠隔操作ではずせるようにしておく。
- ④ Chamber の床面 4 隅、中央にシャーレに入れた石英フィルタのみを 2 枚ずつ、壁四方中央、天井四方中央に両面テープをつけた石英フィルタを 2 枚ずつ配置する。

2) エアゾールの処理 (図参照)

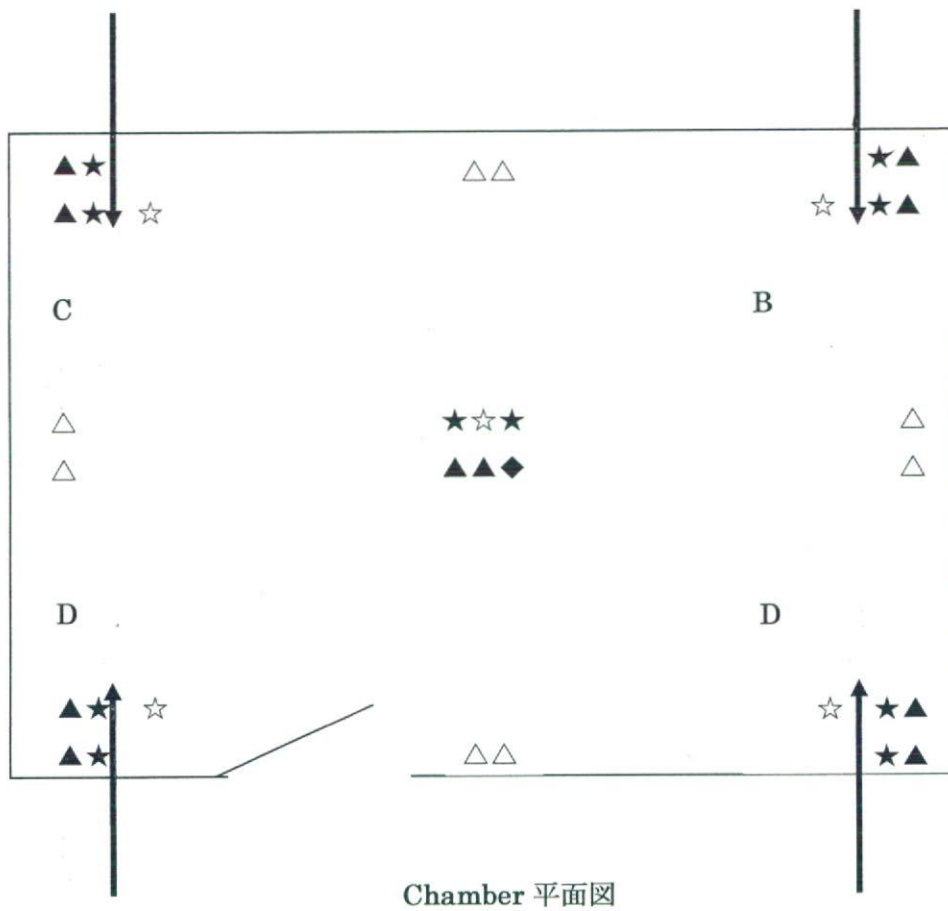
- ① エアゾールは Chamber 4 隅の 1.5m の高さから、壁面に平行に、水平方向に噴射する。
- ② 噴射時間は各 1.25 秒とする (1.25 秒×4 回=5 秒)。

3) 噴射後のサンプルング等

- ① 噴射直後、2,4,6,8 時間後に 1 L/min. で 20 分間ずつサンプルングする。
- ② 8 時間目のサンプルング終了後、全ホルダおよび床面、壁、天井の石英フィルタを回収する。
- ③ 回収した石英フィルタとエムポアディスクはアルミホイルで包んでビニール袋に入れ、冷蔵庫で保管する。なお、ホルダ内のフィルタとディスクは一緒にアルミホイルで包んで保管してよい。
- ④ 採取場所等のデータは、アルミホイルおよびビニール袋に記入する。
- ⑤ 上記②回収後、炭酸ガスを用いて、再度換気率を測定する。このとき、部屋中均一に炭酸ガスが充満するように一時的に扇風機を使用する。
- ⑥ 換気率を測定後、アエロディスクを中央スタンドの 1.2m 高にセットし、2 L/

min.で12時間、アエロディスク用ポンプで吸引する。

- ⑦翌日、アエロディスクを回収し、専用ホルダに入れ、アルミホイルに包み、ビニール袋に入れ、発送まで冷蔵庫で保管する。
- ⑧換気ファンは、ディスク回収後に再度換気率を測定するとき以外は、試験中常に作動させる。
- ⑨フィルタおよびディスクは、採取して3日以内に各共同研究者（1セット：ホルダ分10枚、床2枚、壁2枚）に冷蔵便で送付する。



Chamber 平面図

- ☆ : 空気サンプル採取位置 (0.2 及び 1.2m) →エアゾール噴射 0,2,4,6,8 経過時点で各 20 分間 (1L/min) 採取
- ★ : 床面サンプル採取位置→0~8 時間 20 分後まで配置
- ▲ : 天井サンプル採取位置
- ◆ : 再放散用空気サンプル採取位置 (1.2mのみ)
- △ : 壁面サンプル採取位置
- : エアゾール噴射方向 (噴射高 : 1.5m)

プロトコール2「簡易型チャンバー室を用いた液体蚊取用の放散試験」

1. 事前準備

- 1) 石英フィルタのみを 300℃で 2 時間焼く。
- 2) 1 ppm BHT メタノール溶液（濃度検討中）に、石英フィルタとエムポアディスクを浸漬し、30 分程度風乾する。アエロディスクには、0.1ml の 1ppmBHT メタノール溶液を添加し、15 分程風乾する。
→採取日に実施し、作り置きはしない。
- 3) Chamber 内の換気率を炭酸ガスを用いて測定し、0.5～1.0 回/hr の範囲内の換気率であれば試験を開始する。

2. サンプルングおよび薬剤処理方法

1) Chamber (24.3 m³) 内へのサンプルング機材のセット

- ①Chamber 中央及び 4 隅にスタンドを置き、1.2m および 0.2m の位置に、各 6 個 (2, 4, 8, 12 時間後採取用) ずつホルダをセットする。
- ②ホルダには石英フィルタ、エムポアディスク各 1 枚をセットする (エムポアディスクを吸引側にセットし、石英フィルタのスムーズ面を表にして吸入側にセットする)。
- ③直後のサンプルング用ホルダを除いて、アルミホイル等を用いてカバーをし、遠隔操作ではずせるようにしておく。
- ④Chamber の床面 4 隅にシャーレに入れた石英フィルタのみを 2 枚ずつ、壁四方中央、天井四方にクリップで挟んだ石英フィルタを 2 枚ずつ配置する。

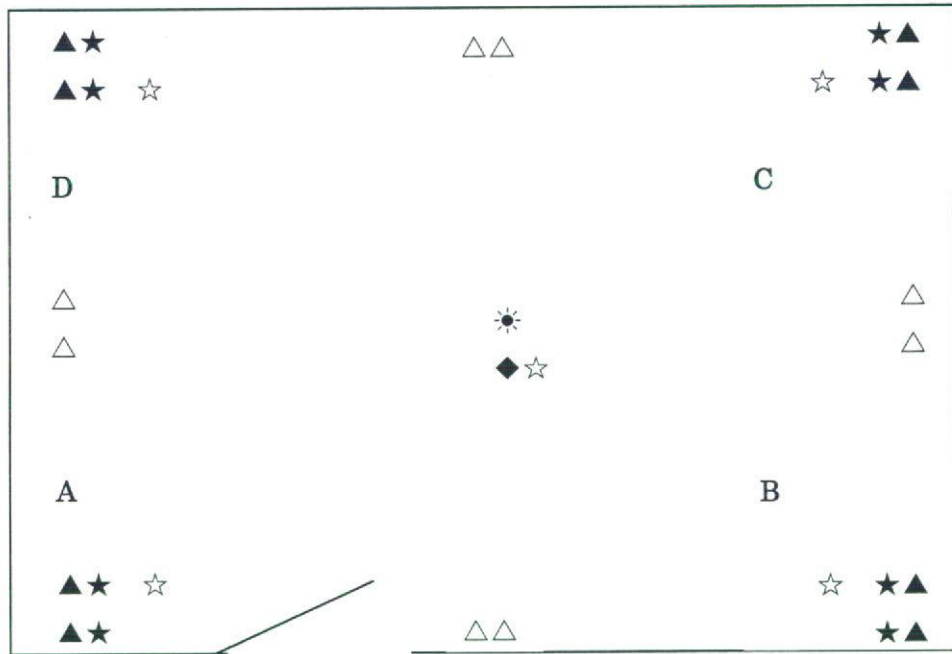
2) 液体蚊取の処理 (図参照)

- ①液体蚊取は Chamber 中央床面に設置し、通電する。通電は 12 時間後までとする。

3) 通電後のサンプルング等

- ①2, 4, 8, 12 時間後に 1 L/min. で 20 分間ずつサンプルングする。
- ②12 時間目のサンプルング終了後、全ホルダおよび床面、壁、天井の石英フィルタを回収する。
- ③回収した石英フィルタとエムポアディスクはアルミホイルで包んでビニール袋に入れ、冷蔵庫で保管する。なお、ホルダ内のフィルタとディスクは一緒にアルミホイルで包んで保管してよい。
- ④採取場所等のデータは、アルミホイルおよびビニール袋に記入する。
- ⑤上記②回収後、炭酸ガスを用いて、再度換気率を測定する。このとき、部屋中均一に炭酸ガスが充満するように一時的に扇風機を使用する。
- ⑥実験開始から 24 時間後、アエロディスクを 1.2m 高にセットしたスタンドを中央にセットし、2 L/min. で 12 時間、アエロディスク用ポンプで吸引する。

- ⑦翌日、アエロディスクを回収し、専用ホルダに入れ、アルミホイルに包み、ビニール袋に入れ、発送まで冷蔵庫で保管する。
- ⑧換気ファンは、ディスク回収後に再度換気率を測定するとき以外は、試験中常に作動させる。
- ⑨フィルタおよびディスクは、採取して 3 日以内に各共同研究者（1セット：ホルダ分 12 枚、床 2 枚、壁 2 枚、天井 2 枚）に冷蔵便で送付する。



Chamber 平面図

- ☆：空気サンプル採取位置（0.2 及び 1.2m）→液体蚊取通電実験開始から 24 時間経過時点で各 20 分間（1L/min）採取
- ★：床面サンプル採取位置→0～12 時間 20 分後まで配置
- ▲：天井サンプル採取位置
- ◆：再放散用空気サンプル採取位置（1.2mのみ）
- △：壁面サンプル採取位置
- ☀：液体蚊取（床面に設置）

プロトコール3 「簡易型チャンバー室を用いたゴキブリ用エアゾール剤の放散試験」

1. 事前準備

- 1) 石英フィルタのみを 300℃で 2 時間焼く。
- 2) 1 ppm BHT メタノール溶液に、石英フィルタとエムポアディスクを浸漬し、30 分程度風乾する。アエロディスクには、0.1ml の 1ppm BHT メタノール溶液を添加し、15 分程風乾する。
- 3) Chamber 内の換気率を炭酸ガスを用いて測定し、0.5～1.0 回/hr の範囲内の換気率であれば試験を開始する。

2. サンプルングおよび薬剤処理方法

1) Chamber (24.3 m³) 内へのサンプルング機材のセット

- ① Chamber の 4 隅より数センチ離れた個所、中央にスタンドを置き、1.2m および 0.2m の位置に、各 5 個 (直後、1,2,4,8 時間後採取用) ずつホルダをセットする。
- ② ホルダには石英フィルタ、エムポアディスク各 1 枚をセットする (エムポアディスクを吸引側にセットし、石英フィルタのスムーズ面を表にして吸入側にセットする)。
- ③ 直後のサンプルング用ホルダを除いて、アルミホイル等を用いてカバーをし、遠隔操作ではずせるようにしておく。
- ④ Chamber の 4 隅より数センチ離れた床面、中央にシャーレに入れた石英フィルタのみを 2 枚ずつ、壁四方中央、天井四方中央に石英フィルタを 2 枚ずつ配置する。

2) ゴキブリ用エアゾールの処理 (図参照)

Chamber 4 辺の中央床面それぞれに縦 10cm×横 100cm の化粧板を敷き、そこに化粧板 1 枚につきゴキブリ用エアゾールを真上より約 20cm の距離から帯状に 5 秒間噴射する。

3) 噴射後のサンプルング等

- ① 4 か所に設置した化粧板に噴射後、サンプルングを開始する。
- ② 噴射直後、1,2,4,8 時間後に 1 L/min. で 20 分間ずつサンプルングする。
- ③ 8 時間目のサンプルング終了後、全ホルダ、床面、壁、天井の石英フィルタを回収する。
- ④ 回収した石英フィルタとエムポアディスクはアルミホイルで包んでビニール袋に入れ、冷蔵庫で保管する。なお、ホルダ内のフィルタとディスクは一緒にアルミホイルで包んで保管してよい。
- ⑤ 採取場所等のデータは、アルミホイルおよびビニール袋に記入する。
- ⑥ 上記②回収後、炭酸ガスを用いて、再度換気率を測定する。このとき、部屋中均一に炭酸ガスが充満するように一時的に扇風機を使用する。

⑦換気率を測定後、アエロディスクを中央スタンドの1.2m 高にセットし、2L/min.で12時間、アエロディスク用ポンプで吸引する。

⑧翌日、アエロディスクを回収し、専用ホルダに入れ、アルミホイルに包み、ビニール袋に入れ、発送まで冷蔵庫で保管する。

⑨換気ファンは、ディスク回収後に再度換気率を測定するとき以外は、試験中常に作動させる。

⑩フィルタおよびディスクは、採取して3日以内に各共同研究者（1セット：ホルダ分10枚、床2枚、壁2枚、天井2枚）に冷蔵便で送付する。

（徳永先生はサンプル1セット+スタンド中央のホルダ分10枚、床中央2枚、天井2枚）

（辻先生はサンプル1セット+アエロディスク1個）

3. 実施日程

本試験：1月25日（金）、1月30日（水）

発送：1月28日（月）、1月31日（木）