

とにより、放散実験で観察された活性成分の挙動を精度良く予測できることを明らかにした。また、タンスを設置した部屋で8時間を過ごす居住者を想定して暴露評価を行った結果、防虫剤の暴露に関してはタンス扉の開閉時の暴露よりもタンス内から室内に漏出する活性成分の恒常的な暴露の寄与が大きいことが明らかになった。

E. 研究発表

E.1 論文発表

なし

E.2 学会発表

なし

F. 知的財産権の出願・登録状況

F.1 特許取得

なし

F.2 実用新案登録

なし

F.3 その他

なし



図 1 モデルルーム内に設置した洋服タンス

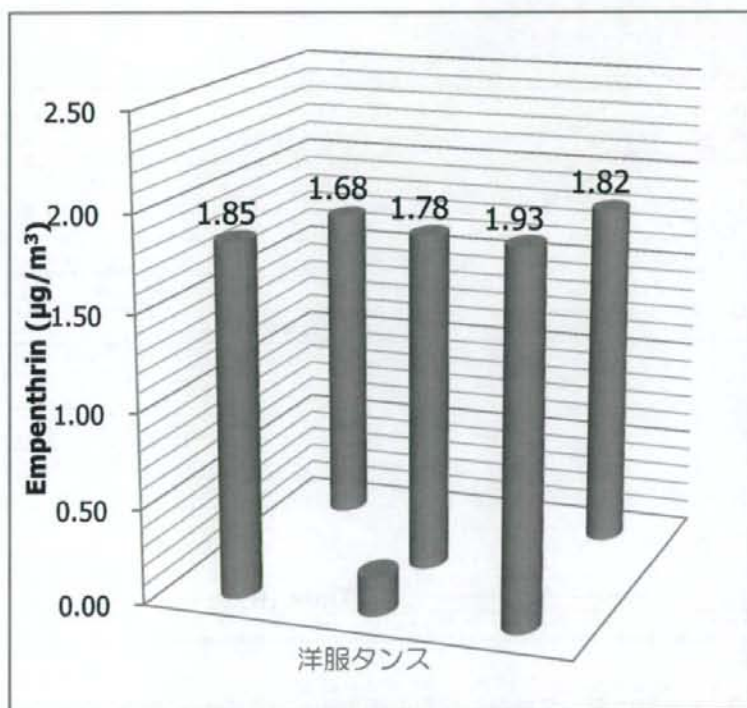


図2 タンス開扉30分後のモデルルーム内 Empenthrin 濃度分布

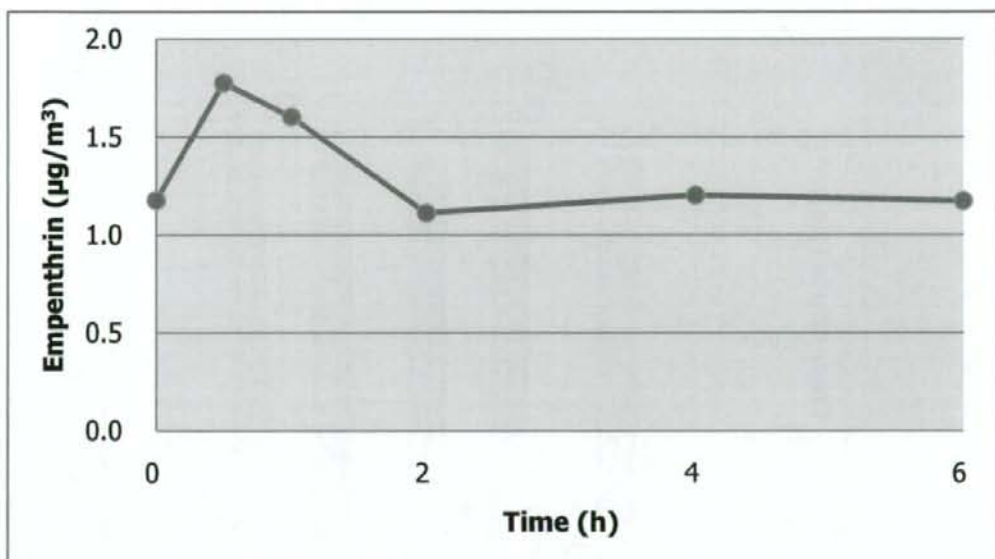


図3 1分間のタンス開扉に伴うモデルルーム内 Empenthrin 濃度の経時変化

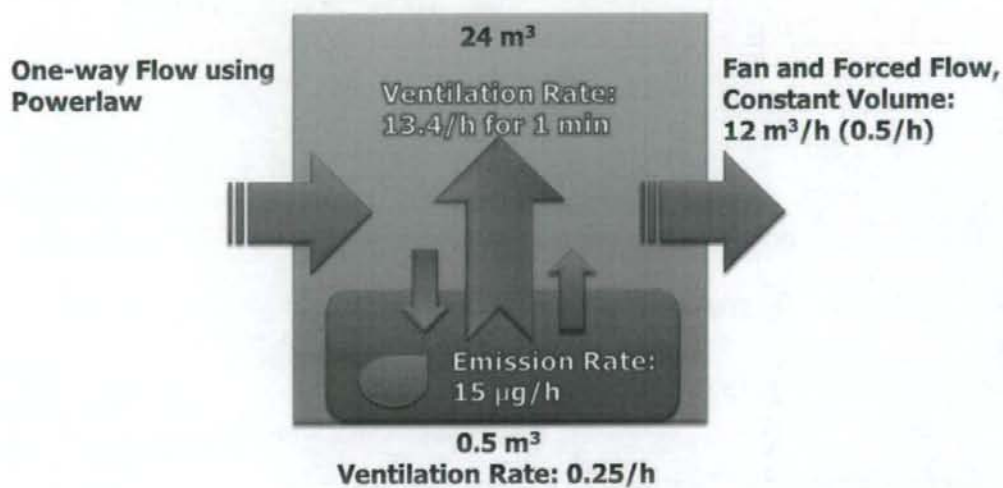


図 4 CONTAM 2.4 シミュレーションモデルのパラメーター設定

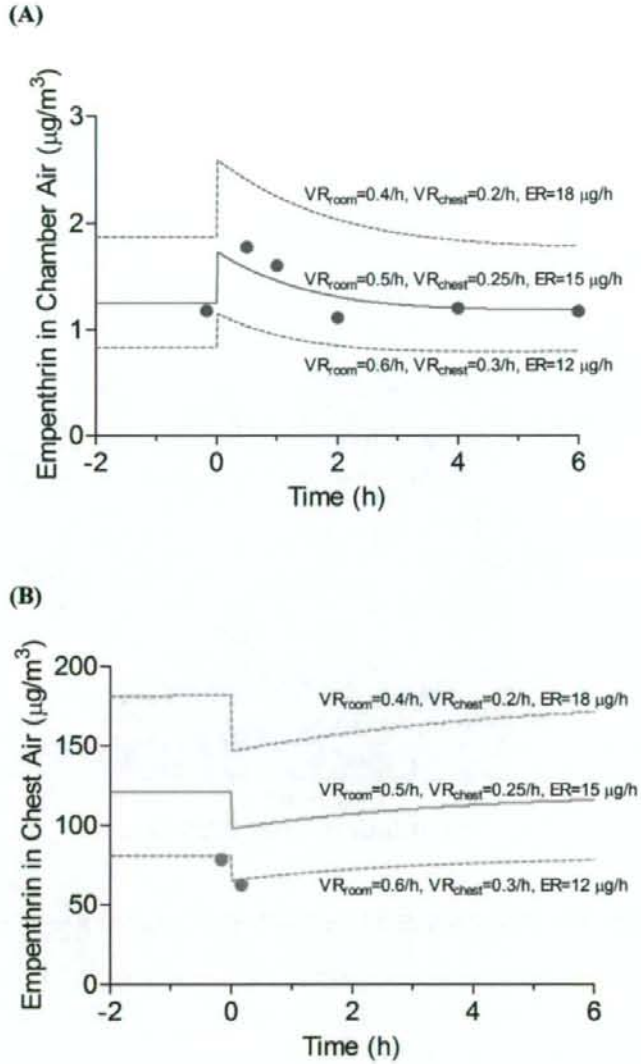
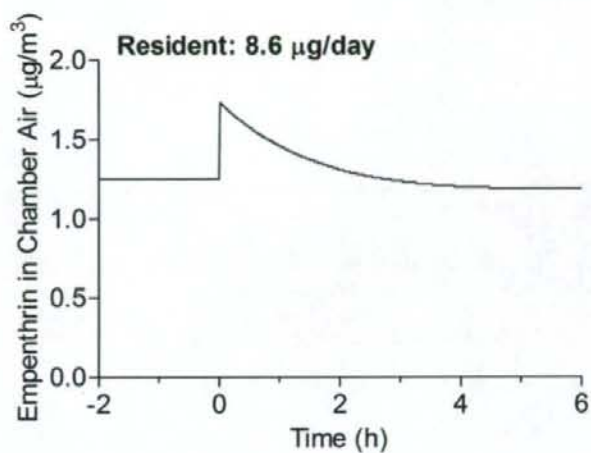


図5 CONTAM 2.4によるモデルルーム内空气中 (A) 及びタンス内空气中 (B) Empenthrin 濃度のシミュレーション結果 (実測値を Closed Circle で示した, VR_{room} , モデルルームの換気回数; VR_{chest} , タンスの換気回数; ER, 活性成分の放散速度)

(A)



(B)

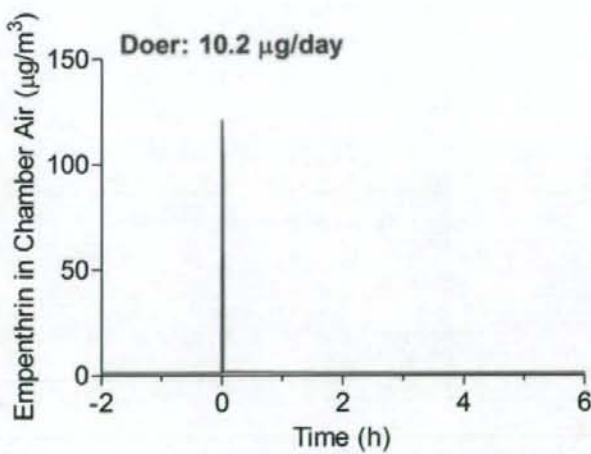


図6 居住者 (A) 及び行為者 (B) の Empenthrin 暴露濃度並びに推定暴露量

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

暴露シミュレーションモデルの開発 — 衣料収納容器の換気回数 —

研究代表者	神野 透人	国立医薬品食品衛生研究所	環境衛生化学部
研究分担者	香川(田中) 聡子	国立医薬品食品衛生研究所	環境衛生化学部
研究協力者	古川 容子	国立医薬品食品衛生研究所	環境衛生化学部

研究要旨：衣類用防虫剤に由来する化学物質の室内空気質に対する影響の予測を行うためには、防虫剤が使用される小空間での挙動を把握することが必要不可欠である。そこで、本研究では防虫剤の室内濃度シミュレーションに必要な換気回数に関する情報を得る目的で、衣料収納容器について炭酸ガス法による換気率の測定を行った。タンスを含む衣料収納容器 16 製品を対象として、繊維製品を充填あるいは未収納の状態に容器内に炭酸ガスを充填させ、CO₂ 濃度の経時変化を測定することにより換気率を算出した。さらに、本研究で得られた換気率に基づいて算出した衣料収納容器内の防虫剤活性成分濃度の予想値と、実際に防虫剤を入れた収納容器中の活性成分の濃度との関係を明らかにするために、Empenthrin を含有する市販の防虫剤を収納容器に入れ、加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法により容器内 Empenthrin 濃度を定量した。収納容器 16 製品の換気回数の最小値は 0.01 回/h（繊維製品未収納時）、0.05 回/h（繊維製品充填時）、最高値は 17.43 回/h（繊維製品未収納時）、15.56 回/h（繊維製品充填時）であった。容器内 Empenthrin 濃度について、換気率等を用いて予測した容器内濃度と実測値とを比較した結果から、防虫剤からの活性成分の気中への放散速度や容器等への吸着効率等の情報に加えて、本研究で得られた種々の収納容器の換気率に関するデータは室内環境における防虫剤の暴露シナリオの作成や暴露濃度の予測を行う上で貴重な情報となると考えられる。

A. 研究目的

欧州化学品規制（REACH）に代表されるように、化学物質の管理政策がハザードベースの規制からリスクベースの管理へと移行しつつあり、精度の高いリスク評価を実施する上で暴露評価の重要性が高まっている。室内環境中の多様な製品から放散、放出される種々の化学物質について迅速な暴露評価を行うためには、適切な暴露シナリオの作成

とともに暴露濃度予測手法の開発が重要な課題となっている。

室内環境で汎用される家庭用品の一つである *p*-ジクロロベンゼンやピレスロイド剤など衣類用防虫剤について、このような室内空気質に対する影響の予測を行うためには、防虫剤が使用される小空間での挙動を把握することが必要不可欠である。そこで、本研究では防虫剤の室内濃度シミュレーションに

必要な換気回数に関する情報を得る目的で、タンスを含む衣料収納容器 16 製品 (Table 1, Fig. 1) について炭酸ガス法による換気率の測定を行った。

B. 研究方法

B.1 換気率の測定

換気率の測定は国立医薬品食品衛生研究所内の一般実験室で行った (実験期間中の室温は 22-32°C の範囲であった)。容器内に繊維製品等を充填しない空の状態 で 6000 ppm 以上の濃度となるように炭酸ガスを充満させ、容器内にデータロガー機能付の CO₂ 計 (SenseAir 74001) を入れ、少なくとも 6 時間にわたって濃度の減衰を記録した。また、容器内に繊維製品を収納した状態で、同様に炭酸ガスを充満させ、炭酸ガス濃度の減衰を記録した。データ解析には Prism 5.00 (GraphPad Software Inc.) を使用した。得られたデータを非線形回帰により One Phase Decay モデル ($Y=(Y_0 - \text{Plateau}) \cdot \exp(-K \cdot X) + \text{Plateau}$) に当てはめ、 $R^2 > 0.95$ の一致度が得られた場合のみ換気率を算出した。結果は、1 製品について 3 回の測定を行った平均値を示した。

B.2 衣料収納容器内 Empenthrin 濃度の測定

炭酸ガス法で求めた換気率に基づいて算出した衣料収納容器内の防虫剤活性成分濃度の予想値と実際に防虫剤を入れた収納容器中の活性成分の濃度との関係を明らかにするために、活性成分として Empenthrin を含有する市販の防虫剤 (引き出し・衣装ケース 1 年間用) を容器に入れ、10 日後の容器内 Empenthrin 濃度を測定した。

Pocket Pump 210 (SKC Inc.) を用いて、収納容器内の空気を 50 mL/min の流速で 2 分ないし 10 分間吸引し、Tenax TA 吸着管

(Supelco) にサンプリングした。

加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法による Empenthrin の分析には TDTS-2010 及び GC/MS-QP2010 (島津製作所) を使用した。50 mL/min の流速で He ガスを通しながら吸着管を 280°C に加熱し、脱離した Empenthrin を予め -10°C に冷却した Tenax TA トラップ管で再吸着した。その後トラップ管を 280°C まで急加熱し、気化した Empenthrin を Rtx-1 カラム (0.32 mm i.d. × 60 m, 1 μm) で分離し、m/z 123 のフラグメントイオンを SIM 法で検出した。

B.3 統計的解析手法

結果の解析は Prism 5.00 (GraphPad Software, San Diego, CA) を用いた。

C. 研究結果

Fig. 2 に本研究で得られた炭酸ガス濃度減衰曲線を示した。

Fig. 3 は空の状態 で測定した衣類収納容器の換気率をまとめたものである。布製箱形ケース (No. 6)、布製クローゼット (No. 13) 及びクローゼットカバー (No. 14) は 10 回/h 以上の換気率であった。これらに対して密閉コンテナ (No. 1) の気密性は極めて高く、ついでプラスチック製密閉型衣類収納容器 (No. 2-No. 4) 及び桐ケース (No. 5) の換気率が小さい値 (0.1 - 0.2 回/h) となった。

Fig. 4 は繊維製品 (木綿製タオル又はコート等衣料) を充填した衣類収納容器の換気率をまとめたものである。繊維製品を充填することにより布製箱形ケース (No. 6) 及び布製クローゼット (No. 13) の換気率はそれぞれ 43%、52% に低下したもののクローゼットカバー (No. 14) に次いで高かった。これら以外の収納容器に関しては繊維製品を

充填することによる影響はほとんど認められなかった。

次に、収納容器 No. 1 から No. 10 について、実際に衣料用防虫剤として Empenthrin 製剤を設置した後の容器内の Empenthrin 濃度に関して検討を行った。防虫剤を 7 日間ブレインキュベーションした後に収納容器内に設置し、容器内の Empenthrin 濃度を経時的に測定した結果、設置 3 日目以降に容器内の濃度が安定した値を示したので、防虫剤設置後 7 日、8 日及び 9 日目に測定した 3 回の濃度結果を平均した値を、定常状態の濃度として Table 2 に示した。換気率の高かった布製箱形ケース (No. 6)、コットンボックス (No. 7) 及び紙引出 (No. 8) の容器内 Empenthrin 濃度は、それぞれ $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $12.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $5.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と低く、それ以外の 7 容器において約 $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ から $85 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲内であった。

製剤中の Empenthrin の含有量、収納容器の容積、及び今回測定した収納容器の換気回数より計算した容器内の Empenthrin 濃度の予測値を横軸に、実際に Empenthrin を活性成分として含む衣類防虫剤を容器内に設置した後の Empenthrin 濃度の実測値を縦軸にとり、その関係を示した図が Fig. 5 である。容器内 Empenthrin 濃度の実測値と予想値との間に相関関係は認められず、実際に容器内 Empenthrin 濃度を測定した結果は予想値比べてきわめて低いことが明らかになった。

D. 考察

Shinohara ら (2008) は *p*-ジクロロベンゼンの実測値を基にした 6 種類の衣類収納容器の換気率として 0.41-78 回/h の値を報告している。本研究結果と Shinohara らの結果を厳密に比較することは困難であるものの、本研究で得られた 1 段プラスチック引出 (No.

9 及び No. 10) の換気率はそれぞれ 0.58、0.55 回/h であり、Shinohara らによる Chest of Drawers 型ケースの換気率 0.41 回/h に相当する値となっている。

容器内に Empenthrin を活性成分として含有する防虫剤を設置した場合の Empenthrin 濃度に関して、実測値が予想値をはるかに下回った理由を現時点で明らかに説明することは難しいが、防虫剤からの活性成分の気中への放散速度及びその温度による影響や、容器への吸着等を考慮して容器内濃度をより正確に予測することができれば、収納容器に設置した防虫剤に由来する活性成分の室内空気への負荷量を容易に推測することが可能になるであろう。

本研究で得られた種々の衣類収納容器の換気率に関するデータは、室内環境における防虫剤の暴露シナリオの作成や暴露濃度の予測を行う上で貴重な情報となるであろう。

E. 結論

衣類用防虫剤に由来する化学物質の室内空気質に対する影響の予測を行うために必要な収納容器の換気回数に関する情報を得ることができた。

収納容器 16 製品の換気回数の最小値は 0.01 回/h (繊維製品未収納時)、0.05 回/h (繊維製品充填時)、最高値は 17.43 回/h (繊維製品未収納時)、15.56 回/h (繊維製品充填時) であった。容器内 Empenthrin 濃度について、換気率等を用いて予測した容器内濃度と実測値とを比較した結果から、防虫剤からの活性成分の気中への放散速度や容器等への吸着効率等の情報に加えて、本研究で得られた種々の収納容器の換気率に関するデータは室内環境における防虫剤の暴露シナリオの作成や暴露濃度の予測を行う上で貴重な情報となると考えられる。

F. 引用文献

Shinohara N, Ono K, Gamo M (2008)
p-Dichlorobenzene emission rates from moth repellents and leakage rates from cloth storage cases. *Indoor Air* 18:63-71.

G. 研究発表

G.1 論文発表

なし

G.2 学会発表

神野透人、香川（田中）聡子、古川容子、辻 清美、林 留美子、田中博子、大河原 晋、安藤正典、西村哲治：常温揮散性ピレスロイドの経気道暴露評価に関する研究 フォーラム 2008:衛生薬学・環境トキシコロジー (2008.10)

古川容子、香川（田中）聡子、辻 清美、林 留美子、田中博子、西村哲治、神野透人：防虫剤の室内濃度予測に関する研究－衣料収納容器の換気率 平成 20 年度室内環境学会総会 (2008.10)

香川（田中）聡子、古川容子、辻 清美、林 留美子、田中博子、大河原 晋、安藤正典、西村哲治、神野透人：室内空气中常温揮散性ピレスロイド Transfluthrin および Metofluthrin の実態調査 平成 20 年度室内環境学会総会 (2008.10)

H. 知的所有権の取得状況

H.1 特許取得

なし

H.2 実用新案登録

なし

H.3 その他

なし

Table 1 Clothes storage boxes evaluated in this study.

Type	No.	Sample Name
Airtight Container	1	Plastic Buckle Container (密閉コンテナ)
	2	Plastic Suitcase (スーツケース型)
	3	Plastic Hanging Wardrobe Box (ドーム型ケース)
	4	Plastic Storage Box (プラスチックコンテナ)
Case	5	Paulownia Case (桐ケース)
	6	Canvas Case (布製箱形ケース)
	7	Cotton Storage Box (コットンボックス)
Stacking Drawer	8	Paper Stacking Drawer (紙引出)
	9	Plastic Stacking Drawer A (1段プラスチック引出A)
	10	Plastic Stacking Drawer B (1段プラスチック引出B)
Drawer Chest	11	Plastic Three Drawer Chest A (3段プラチェストA)
	12	Plastic Three Drawer Chest B (3段プラチェストB)
Closet	13	Canvas Closet (布製クローゼット)
	14	Frameless Canvas Dress Bag (クローゼットカバー)
Chest of Drawers	15	Seven-Drawer Chest (Upper Drawer)
		Seven-Drawer Chest (Lower Drawer)
	16	Eight-Drawer Chest (Upper Drawer)
		Eight-Drawer Chest (Lower Drawer)

1. Plastic Buckle Container



2. Plastic Suitcase



3. Plastic Hanging Wardrobe Box



4. Plastic Storage Box



Fig. 1-1

Clothes storage boxes filled with cotton towels or clothes.

5. Paulownia Case



6. Canvas Case



7. Cotton Storage Box



Fig. 1-2

Clothes storage boxes filled with cotton towels or clothes.

8. Paper Stacking Drawer



9. Plastic Stacking Drawer A



10. Plastic Stacking Drawer B



Fig. 1-3

Clothes storage boxes filled with cotton towels or clothes.

11. Plastic Three Drawer Chest A



12. Plastic Three Drawer Chest B



Fig. 1-4

Clothes storage boxes filled with cotton towels or clothes.

13. Canvas Closet



14. Frameless Canvas Dress Bag

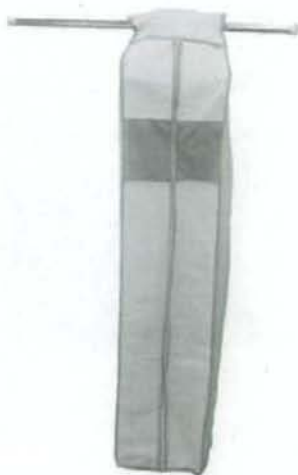


Fig. 1-5

Clothes storage boxes filled with cotton towels or clothes.

15. Seven-Drawer Chest



16. Eight-Drawer Chest



Fig. 1-6

Clothes storage boxes filled with cotton towels or clothes.

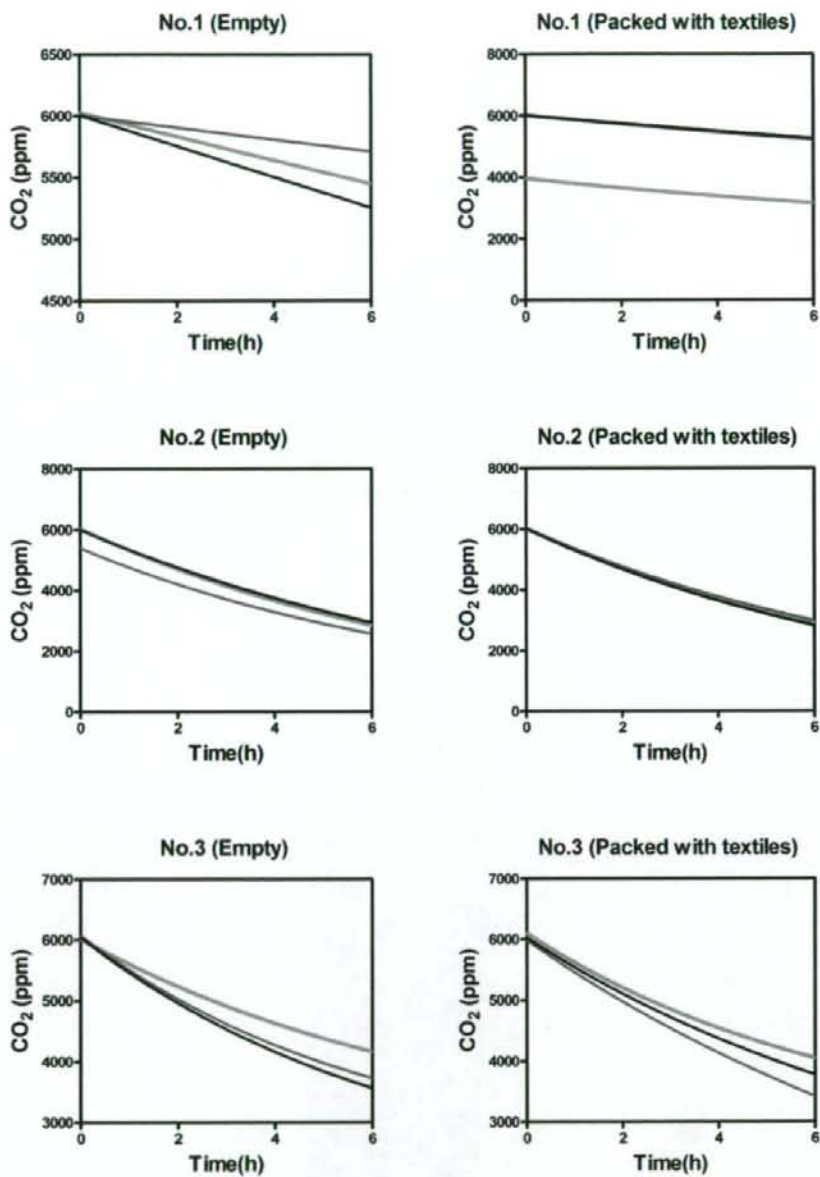


Fig. 2-1

Representative CO₂ concentration decay curves
for the clothes storage boxes.

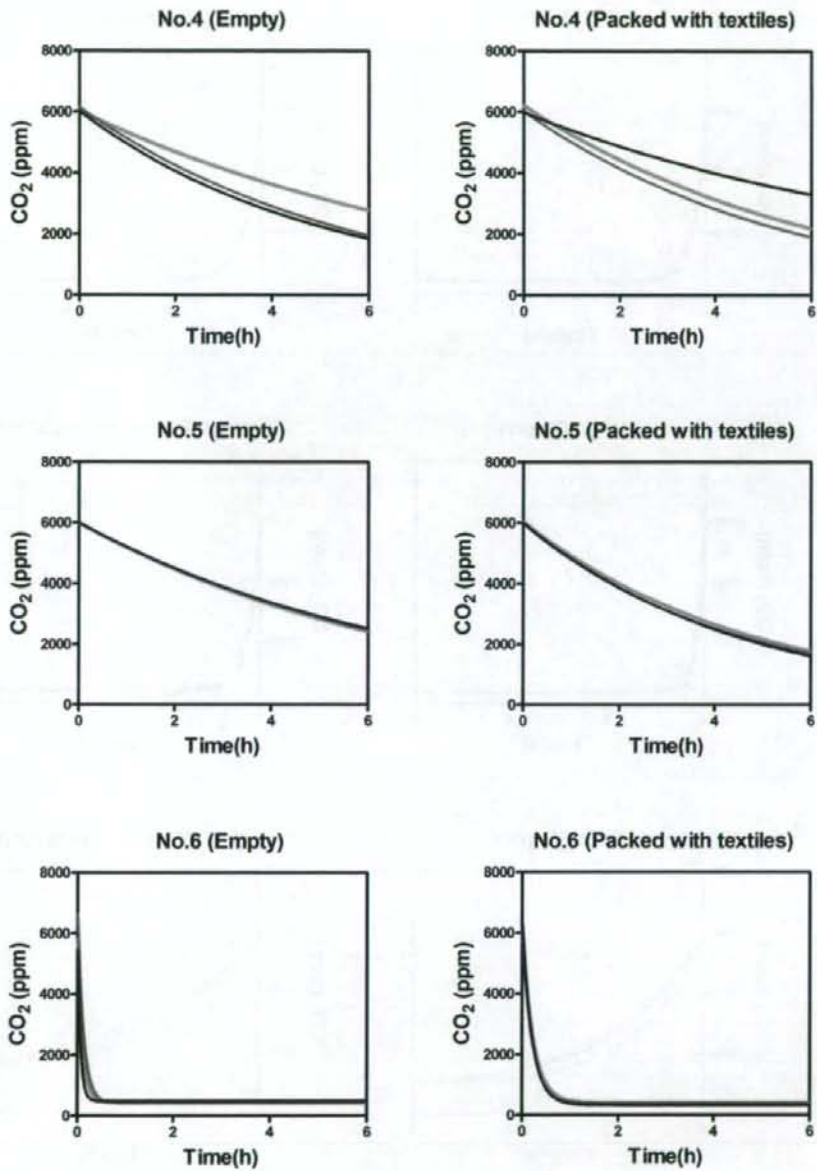


Fig. 2-2

Representative CO₂ concentration decay curves
for the clothes storage boxes.