

図4 防虫剤活性成分の気中濃度の経時変化  
 ムシューダ(引出用)及びミセスロイド

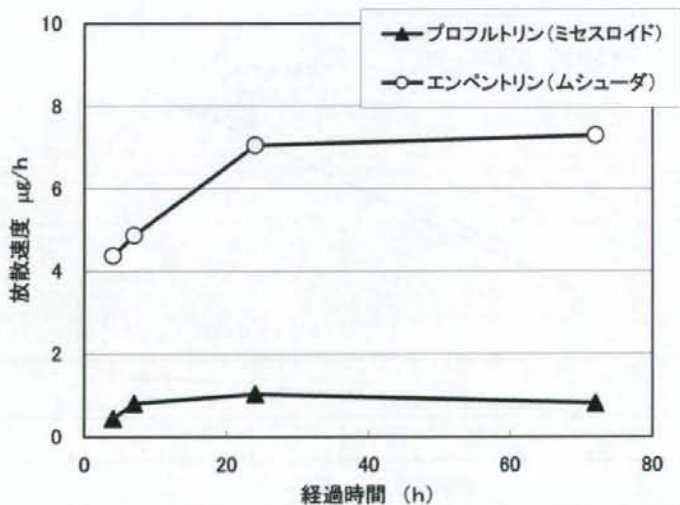


図5 防虫剤活性成分の放散速度の経時変化  
 ムシューダ(引出用)及びミセスロイド

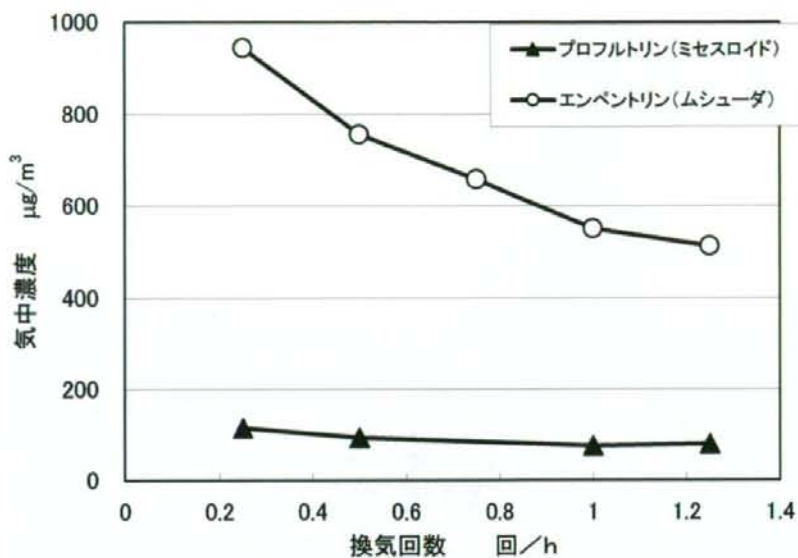


図6 防虫剤活性成分の気中濃度と換気回数  
—ムシューダ（引出用）及びミセスロイド—

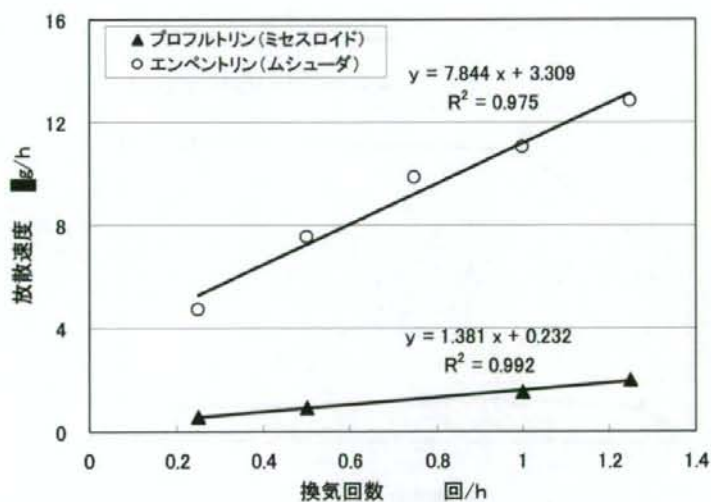


図7 防虫剤活性成分の放散速度と換気回数  
—ムシューダ（引出用）及びミセスロイド—

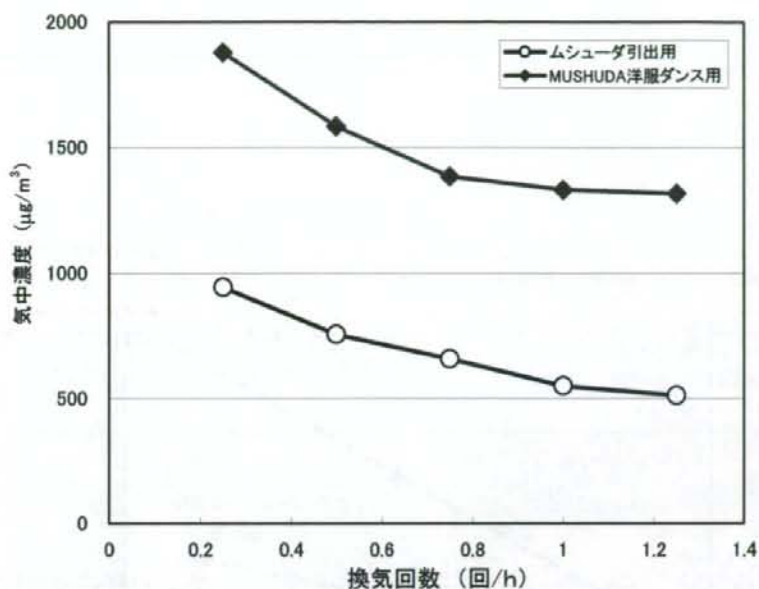


図8 エンペントリンの気中濃度と換気回数

ムシューダ（引出用）及び MUSHUDA 洋服ダンス用

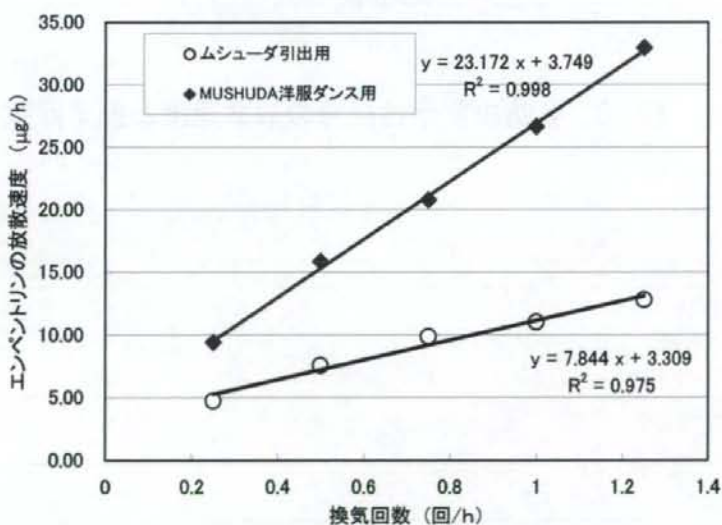


図9 エンペントリンの放散速度と換気回数

ムシューダ（引出用）及び MUSHUDA 洋服ダンス用

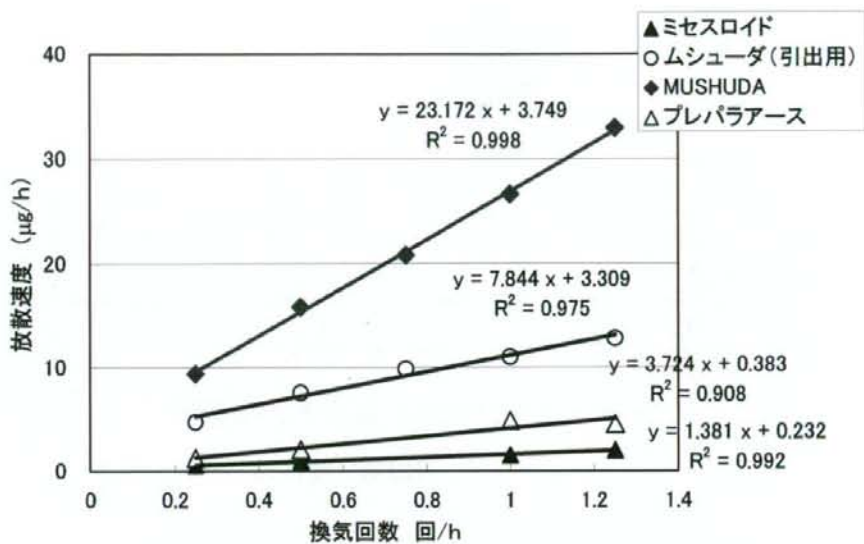


図 10 各防虫剤活性成分の放散速度と換気回数

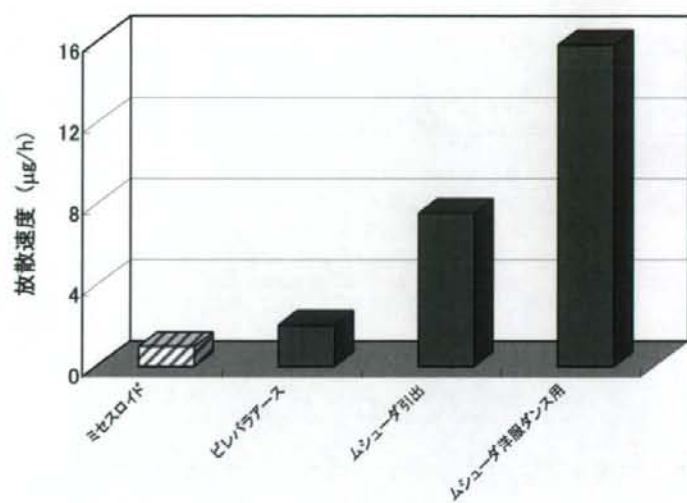


図 11 換気回数 0.5 回/h における各防虫剤成分の放散速度

厚生労働科学研究費補助金（化学物質リスク研究事業）  
分担研究報告書

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

ピレスロイド系の防虫剤を対象とした放散試験について

研究分担者 田中 博子 滋賀県衛生科学センター  
研究分担者 五十嵐 良明 国立医薬品食品衛生研究所

研究要旨：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、フタルスリン、プラレトリン、イミプロトリンおよびフェノトリンの分析法（以下、「構築一斉法」という）によりエンペントリンを同時分析するため、昨年度に引き続き、空気中試料採取方法や試料保存の安定性について検証した。

捕集剤にエンペントリンを  $1\mu\text{g}$  添加し、空気を流速  $1\text{L}/\text{min}$  で 20 分間および 60 分間吸引し、構築一斉法のとおり、アセトンによる超音波抽出、精製後、ガスクロマトグラフ質量分析計の SIM 法により測定したところ、良好な回収率が得られた。

試料保存の安定性については、密閉・遮光・冷蔵での保存では、抽出・精製前の捕集剤に吸着した状態で 7 日間、抽出・精製後のアセトン試料溶液で 3 日間安定していることがわかった。

これらの各種検証結果から、エンペントリンも、構築一斉法での同時分析が可能であることがわかった。すなわち、空気中試料は、捕集剤として、加熱および  $1\mu\text{g}/\text{mL}$  ジブチルヒドロキシトルエン（以下、「BHT」という）メタノール溶液で処理した石英繊維フィルター、および同溶液で処理したエムポアディスク C18 を積層し、空気を流速  $1\text{L}/\text{min}$  で 60 分間吸引し、採取する。採取した捕集剤からの試料の抽出・精製は、アセトンによる超音波抽出とし、得られた試料溶液は、ガスクロマトグラフ質量分析計（以下、「GC/MS」という）の選択イオン検出法で測定し、内部標準法または絶対検量線法で定量する方法である。

これにより、換気回数を約 0.5 回/hr に設定した簡易型試験用チャンパー（以下、「モデルルーム」という）でエンペントリン放散試験を実施した。

放散試験は、モデルルーム内に配置した洋服ダンスの扉内空間に衣類の防虫剤「ムシューダ 洋服ダンス用 6 ヶ月間有効」を入れた後、開扉前後に、4 隅の床上  $0.2\text{m}$  および中央の床上  $0.2\text{m}$  と  $1.2\text{m}$  で空気中試料を採取するとともに、床、天井の 4 隅および各壁の中央への付着試料を採取し、エンペントリンを分析した。

空気中濃度は、開扉直前が  $<0.17\sim 0.65\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、開扉直後では  $0.45\sim 1.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、床上  $0.2\text{m}$  および  $1.2\text{m}$  では、大差なく、ほぼ同じ濃度であったが、開扉直後は、開扉直前に比べて、濃度が高く、約 1.5～4.7 倍であった。しかしながら、2 時間 30 分後には、開扉直前とほぼ同じ濃度となり、5 時間 30 分後も開扉直前および 2 時間 30 分後とほぼ同じ濃度であった。

付着量は、いずれも定量下限値未満であった。



## A. 研究目的

化学物質は、あらゆる家庭用品に使用され、用途もさまざまである。その健康被害についても、多様であるが、厚生労働省の「家庭用品等に係る健康被害病院モニター報告」の制度により、その実態が明らかとなりつつある。

平成 19 年度の報告によると、吸入事故等の原因となった家庭用品等の種類は、前年度と同様、殺虫剤が最も多く、事故の発生の防止とともに、より安全性の高い製品の開発が必要なことは言うまでもない。

殺虫剤は、人への安全性を考慮し、ピレスロイド系薬剤が使用された製品が多く、防虫剤も同様である。ピレスロイド系薬剤は、安全性が認識されているものの、家庭内での使用頻度が高く、暴露量も多いと考えられ、発達段階での神経系への有害作用や環境ホルモン作用等による健康影響が懸念される。

本研究では、化学物質の室内暴露評価のスキームを構築するため、家庭内で使用頻度の高いピレスロイド系の殺虫剤や防虫剤に注目し、動態や暴露に関する各種試験研究を行ってきた。

本年度は、昨年度に引き続き、構築一斉法でのエンペントリンの分析について、検証するとともに、家庭内での実態調査に向けた予備試験として、換気回数を設定したモデルルームにおいて、エンペントリンの放散試験を行った。

## B. 研究方法

### B-1. 試薬類および捕集剤等

#### (1) 試薬類

BHT：和光純薬工業(株)製、特級。

メタノール：和光純薬工業(株)製、残留農薬・PCB 試験用 5000。

アセトン：和光純薬工業(株)製、残留農薬・PCB 試験用 5000。

クリセン-d<sub>12</sub>：関東化学(株)製、環境分析用。内部標準物質として、アセトンで溶解し、10μg/mL を作製した。

EZ-エンペントリン：住友化学より供与さ

れた標準物質をアセトンで溶解し、標準原液(1000μg/mL)を調製した。この標準原液を希釈して標準溶液を調製した。

#### (2) 捕集剤等

石英繊維フィルター：東京ダイレック(株)製、2500QAT-UP 47mm 径。

エムポアディスク C18：住友 3M(株)製、Empore™DISK C18 FF 2215UP 47mm 径

フィルターホルダー：GL サイエンス(株)製、EMO-47。

なお、石英繊維フィルターは、電気炉で 300℃、2 時間加熱処理後、1μg/mL BHT メタノール溶液に浸潤し、直ちに風乾して使用し、エムポアディスク C18 は、1μg/mL BHT メタノール溶液に浸潤し、直ちに風乾して使用した。

### B-2. 抽出・精製および測定

昨年度のエンペントリン分析法の検証において、良好な結果が得られた構築一斉法の抽出・精製および測定による方法で行った。すなわち、試料を採取した捕集剤をあわせて 10mL 容遠心沈澱管に入れ、アセトン 5mL および内部標準溶液(クリセン-d<sub>12</sub>) 50μL を添加し、10 分間超音波抽出を行い、抽出後、3,000rpm で 5 分間遠心分離し、得られた上清を試料溶液とし、その 2μL をガスクロマトグラフ質量分析計(以下、「GC/MS」という)によって分析する方法である。使用した GC/MS およびその測定条件は表 1、モニターイオンについては、表 2 に示す。

### B-3. 構築一斉法の検証

#### (1) 空気中試料採取方法の検証

捕集剤は、構築一斉法で使用する石英繊維フィルターおよびエムポアディスク C18 の積層とした。

フィルターホルダーの吸入口側にセットする石英繊維フィルターに標準物質を 1μg 添加し、流速 1L/min、吸引時間を 20 分間、60 分間、120 分、240 分間として、空気を吸引し、抽出・精製および測定を行い、標準物

質の回収率を確認し、空气中試料採取方法の妥当性を検証した。

#### B-4. 試料保存による安定性の検証

##### (1) 抽出・精製前

標準物質を 1 $\mu$ g 添加した石英繊維フィルターを密閉、遮光、冷蔵し、保存期間を 1、2、3、4、5、6、7 日間として、抽出・精製および測定を行い、標準物質の回収率を確認し、試料の安定性を検証した。

##### (2) 抽出・精製後

石英繊維フィルターに標準物質を 1 $\mu$ g 添加し、直ちに抽出・精製を行い、得られた試料溶液を保存した。保存条件は、密閉、遮光、冷蔵とし、保存期間を 1、2、3、4、5 日間として、測定し、標準物質の回収率を確認し、試料の安定性を検証した。

#### B-5. 放散試験

##### (1) 実施施設

財団法人日本環境衛生センター内に建築したモデルルームで、換気回数を約 0.5 回/hr に設定した。なお、モデルルームの大きさは、3.67m $\times$ 3.00m $\times$ 2.21m (容積 24.29m<sup>3</sup>) である。

##### (2) 試験方法

モデルルーム内に洋服ダンスを配置し、扉内空間に衣類の防虫剤「ムシューダ 洋服ダンス用 6 ヶ月間有効」を入れた後、その翌日から土、日曜日を除いて毎日 1 回開扉し、週一回開扉前後の空气中および開扉から 24 時間の付着試料を採取し、防虫剤の活性成分であるエンペントリンを分析した。

また、空气中試料では、最終回の試験日に開扉前後に加え、2 時間 30 分後、5 時間 30 分後も採取した。

##### ① 試験期間

8 月 4 日～9 月 11 日

##### ② 試験日程

表 3 に示す。

##### ③ 試験対象とした防虫剤

衣類の防虫剤「ムシューダ 洋服ダンス用 6 ヶ月間有効」(活性成分：エンペントリン)

##### ④ 防虫剤入洋服ダンスの配置および試料採取地点

試料採取地点は、図 1 のモデルルーム平面図に示す。洋服ダンスは壁に密着させて配置した。なお、洋服ダンスの大きさは 75cm $\times$ 58cm $\times$ 180cm で、防虫剤を入れた扉内の空間容積は 0.5m<sup>3</sup> である。

採取地点は、空气中試料では、4 隅の床上 0.2m、中央の床上 0.2m および 1.2m、付着試料では、床および天井が 4 隅の各 2 箇所、壁が洋服ダンスの密着した壁を除いた 3 面の中央 2 箇所とした。

##### ⑤ 試料採取

空气中試料は、B-2. (1) の検証結果を踏まえ、吸引時間を 60 分間として空気を吸引し、採取した。

付着試料は、石英繊維フィルターを採取地点に 24 時間静置し、採取した。

##### ⑥ 抽出・精製および測定

B-2. と同様である。

##### ⑦ 検量線

検量線用の標準溶液はアセトン溶液とし、0.002～2.0 $\mu$ g/mL に希釈した各標準溶液 5mL に内部標準溶液(10 $\mu$ g/mL クリセン-d<sub>12</sub>) 50 $\mu$ L を添加した。

#### C. 結果および考察

##### C-1. 構築一斉法の検証

##### (1) 空气中試料採取方法の検証

エンペントリンは、図 2 の標準溶液クロマトグラムに示すとおり、5 つのピーク(異性体)が検出されるため、各ピークの合計面積と内部標準物質であるクリセン-d<sub>12</sub> のピークとの面積比によって定量した。

各空気吸引時間でのエンペントリン回収率は、標準溶液 0.02 $\mu$ g/mL を 100% とし、表 4 に示す。

空気吸引時間が 120 分および 240 分間では 10% 未満であったが、20 分間および 60 分間では、100～120% の範囲内にあり、良好な結果が得られた。エンペントリンは、構築一斉法による空气中試料採取の方法によって、分析が可能であることがわかった。なお、放散



試験では、空気吸引を流速 1L/min、60 分間とした。

### C-2. 試料保存による安定性の検証

#### (1) 抽出・精製前

各保存期間でのエンペントリン回収率は、標準物質を添加後、直ちに抽出・精製を行った試料を 100%とし、表 5 に示す。

いずれの保存期間も 90~120%の範囲内で良好な回収率が得られた。モデルルームでの放散試験等で試料を保存する場合、保存期限は密閉・遮光・冷蔵で 7 日間までとした。

#### (2) 抽出・精製後

各保存期間でのエンペントリン回収率は、標準物質を添加後、直ちに抽出・精製を行った試料を 100%とし、表 6 に示す。

保存期間が 1 日~3 日では 80~90%の範囲内で良好な回収率が得られた。5 日では 70%未満であった。モデルルームでの放散試験等で試料を保存する場合、保存期限は密閉・遮光・冷蔵で 3 日間までとした。

### C-3. エンペントリンの放散試験

#### (1) 換気回数、室内温度および湿度

換気回数は、0.51~0.68 回/min、室内温度は 23.6~27.9°C、湿度は 40~66% であった。

#### (2) 放散量

活性成分含量は、製造元の情報による公称値 500 mg であった。これにより推定されるエンペントリンの放散速度は 114  $\mu\text{g/hr}$  となった。

#### (3) 定量

標準溶液および空气中試料溶液のクロマトグラムを図 3-1、付着試料溶液のクロマトグラムを図 3-2 に示す。

標準溶液では、エンペントリンは、5 つのピーク（保持時間の速いピーク順にエンペントリン 1、2、3、4 および 5）が検出されるが、空气中試料では、エンペントリン 1 および 2 では確認イオンが検出されない、また、

エンペントリン 5 は定量イオンピークが検出されないため、定量イオンおよび確認イオンのピークがともに検出されるエンペントリン 3 および 4 の合計面積で定量した。付着試料では、最もピークの高いエンペントリン 4 の面積で定量した。

#### (4) 検量線

検量線は、0.005~0.05 $\mu\text{g/mL}$  の範囲とし、濃度と検出されたピーク的面積または内部標準物質（クリセン-d12）との面積比の関係により作成した。空气中試料用の検量線は、図 4 に示す。

定量下限値は、検量線最小濃度の約 1/2 の 0.002 $\mu\text{g/mL}$  とし、空气中試料では 0.17 $\mu\text{g/m}^3$ 、付着試料では 15 $\mu\text{g/m}^2$  とした。

#### (5) 空气中濃度

測定結果は、開扉前後の比較を図 5-1 および図 5-2、経時変化を図 6 に示す。

床上 0.2m では、洋服ダンスの開扉直前が <0.17~0.58 $\mu\text{g/m}^3$ 、開扉直後では 0.45~0.87 $\mu\text{g/m}^3$ であった。床上 1.2m では、開扉直前が <0.17~0.65 $\mu\text{g/m}^3$ 、開扉直後では 0.56~1.0 $\mu\text{g/m}^3$ であった。床上 0.2m および 1.2m では、大差なく、ほぼ同じ濃度であった。

開扉直後は、開扉直前に比べて、濃度が高く、約 1.5~4.7 倍であった。

経時的な濃度変化は、床上 0.2m では、開扉前が 0.65 $\mu\text{g/m}^3$ 、開扉直後 2.21 $\mu\text{g/m}^3$ 、2 時間 30 分後 0.57 $\mu\text{g/m}^3$ 、5 時間 30 分後 0.64 $\mu\text{g/m}^3$ 、床上 1.2m では、開扉前が 0.43 $\mu\text{g/m}^3$ 、開扉直後 2.12 $\mu\text{g/m}^3$ 、2 時間 30 分後 0.56 $\mu\text{g/m}^3$ 、5 時間 30 分後 0.56 $\mu\text{g/m}^3$  であった。床上 0.2m および 1.2m では、大差なく、ほぼ同じ濃度で推移した。開扉直後は、開扉前に比べて、濃度が高く、床上 0.2m では約 3.5 倍、床上 1.2m では約 5 倍となったが、開扉 2 時間 30 分後には開扉前とほぼ同じ濃度になり、5 時間 30 分後も開扉前および開扉 2 時間 20 分後の濃度とほぼ同じであった。

防虫剤のエンペントリン放散速度 114  $\mu\text{g/hr}$  および洋服ダンスの換気回数を 0.5 回/hr として、開扉直前の空气中濃度を推定す

ると、 $9.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。また、参考のため測定した開扉前後の洋服ダンス内の濃度差から開扉直後の空気中濃度を推定すると、 $9.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。参考のため測定した洋服ダンス内濃度は  $68.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、放散速度から推定される濃度は  $460\mu\text{g}/\text{m}^3$ であったと思われる。いずれも、推定値より測定値が低濃度で、大きな誤差が生じた。これについては、防虫剤の洋服ダンス内への吸着が示唆されるとともに、推定のために設定した洋服ダンスの換気回数が実際と差がみられ、大きく影響したと考えられる。

防虫剤は、防虫剤を入れた収納空間の密閉状態が保たれていれば、飽和状態を保持する程度の放散速度で放散され続けるとされる。しかし、密閉状態が保たれていなければ、換気回数に依存した放散速度で放散され続け、ダンス内の空気は室内へと流出され続け、室内では防虫剤成分が定常的に存在することになる。室内の定常的な濃度は、収納空間の換気回数に依存すると思われるが、定常的な低濃度で、有害性のない濃度であっても、長期間にわたり、暴露され続けることは、ダンスの開扉のみによって一時的に高濃度（定常濃度の数倍程度）で暴露されることよりも、問題視すべきことである。

#### (6) 付着量

測定結果は、付着量については、いずれも定量下限値未満であった。

### D. 結論

#### D-1. 試験法の構築

エンペントリンの分析法を構築するため、昨年度の構築一斉法での抽出・精製および測定方法に引き続き、構築一斉法の空気中試料採取方法を検証し、それによる分析が可能であることがわかった。

試料の保存は、抽出・精製前の捕集剤に吸

着した状態では、密閉・遮光・冷蔵で7日間、抽出・精製後のアセトン試料溶液では密閉・遮光・冷蔵で4日間、安定していることがわかった。

#### D-2. モデルルームでの放散試験

換気回数を約 0.5 回/hr に設定したモデルルームに、防虫剤「ムシューダ洋服ダンス用6ヵ月間有効」を入れた洋服ダンスを配置し、放散試験を行った。

床上 0.2m では、洋服ダンスの開扉直前が  $<0.17\sim 0.58\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、開扉直後では  $0.45\sim 0.87\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。床上 1.2m では、開扉直前が  $<0.17\sim 0.65\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、開扉直後では  $0.56\sim 1.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。床上 0.2m および 1.2m では、大差なく、ほぼ同じ濃度であったが、開扉直後は、開扉直前に比べて、濃度が高く、約 1.5~4.7 倍であった。しかしながら、2時間 30 分後には、開扉直前とほぼ同じ濃度となり、5時間 30 分後も開扉直前および 2時間 30 分後とほぼ同じ濃度であった。

床、天井および壁への付着量は、いずれも定量下限値未満であった。

### E. 研究発表

#### E-1. 論文発表

なし

#### E-2. 学会発表

(1)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 67 回日本公衆衛生学会総会、平成 20 年 11 月

### 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

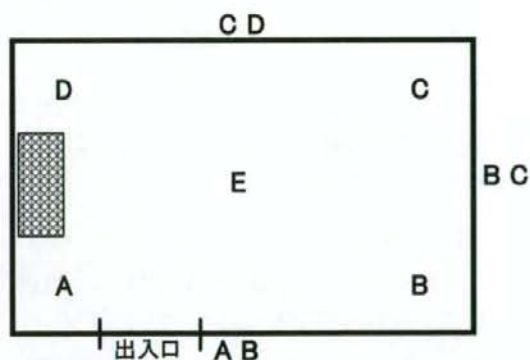


表1 使用した測定機器および測定条件について

使用機器	島津製作所製 GCMS QP-2010	
GC条件	カラム	HP-5MS 30m×0.25mmID、膜厚0.25 μm HP-5MS SV 30m×0.25mmID、膜厚0.25 μm Rtx-5MS 30m×0.25mmID、膜厚0.32 μm
	試料導入法	スプリットレス法
	試料注入量	2 μL
	サンプリング時間	1.0min
	注入口温度	250°C
	オープン温度	50°C(2min)→(40°C/min)→170°C→(6°C/min) →300°C(3min)
	キャリアガス	ヘリウム
	キャリアガス制御	線速度(43cm/sec)
MS条件	インターフェース温度	280°C
	イオン源温度	230°C
イオン化法	EI(70eV)	
検出法	選択イオン検出(SIM)	

表2 測定物質のモニターイオン

測定物質 \ イオン	定量イオン (m/z)	確認イオン (m/z)
エンペントリン	123	91
クリセンド-12 (内部標準物質)	240	236



☐ : 洋服タンス

A~E : 床上0.2m(Eは床上0.2mおよび1.2m)での空气中試料採取地点および床、天井での付着試料採取地点(各2箇所)

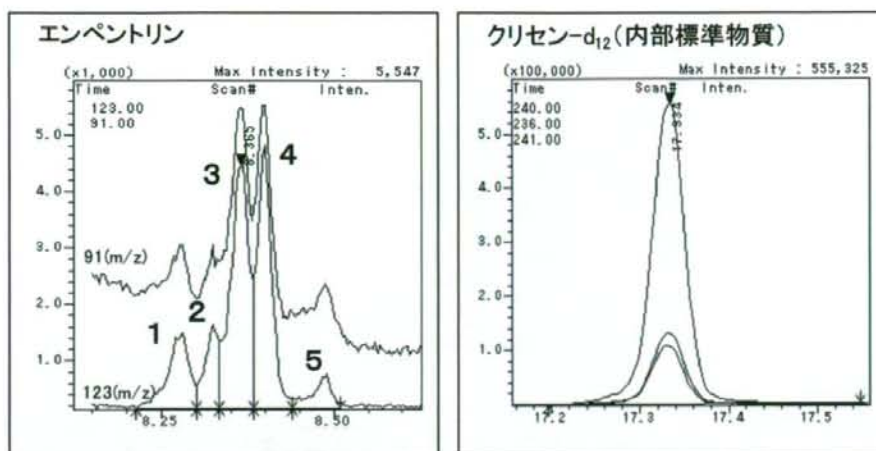
AB~CD : 壁での付着試料採取地点(2箇所)

図1 モデルルーム平面図および試料採取地点等

表3 試験日程および作業内容

月日	曜日	作業内容等
8月4日	(月)	タンス設置
8月5日	(月)	(ブランク状態) 空気試料採取
8月6日	(火)	防虫剤セット
8月7日	(木)	タンス開扉 直前(定常状態) 空気試料採取 1分間 (付着試料採取開始) 直後 空気試料採取 24時間後 付着試料回収
8月8日	(金)	タンス開扉 1分間
8月11日	(月)	タンス開扉 1分間
8月12日	(火)	タンス開扉 1分間
8月13日	(水)	タンス開扉 直前(定常状態) 空気試料採取 1分間 (付着試料採取開始) 直後 空気試料採取 24時間後 付着試料回収
8月14日	(木)	タンス開扉 1分間
8月15日	(金)	タンス開扉 1分間
8月18日	(月)	タンス開扉 1分間
8月19日	(火)	タンス開扉 1分間
8月20日	(水)	タンス開扉 直前(定常状態) 空気試料採取 1分間 (付着試料採取開始) 直後 空気試料採取 24時間後 付着試料回収
8月21日	(木)	タンス開扉 1分間
8月22日	(金)	タンス開扉 1分間
8月25日	(月)	タンス開扉 1分間
8月26日	(火)	タンス開扉 1分間
8月27日	(水)	タンス開扉 直前(定常状態) 空気試料採取 1分間 (付着試料採取開始) 直後 空気試料採取 24時間後 付着試料回収
8月28日	(木)	タンス開扉 1分間
8月29日	(金)	タンス開扉 1分間
9月1日	(月)	タンス開扉 1分間
~9月5日(金)		
9月8日	(月)	タンス開扉 1分間
9月9日	(火)	タンス開扉 1分間 (定常状態) 空気試料採取
9月10日	(水)	タンス開扉 1分間 (付着試料採取開始) 直後 空気試料採取 2時間30分後 空気試料採取 5時間30分後 空気試料採取 24時間後 付着試料回収
9月11日	(木)	24時間後 付着試料回収





使用カラム: HP-5MS 30m × 0.25mmID, 膜厚0.25 μm  
 図2 標準溶液および内標準溶液クロマトグラム

表4 標準物質の回収率

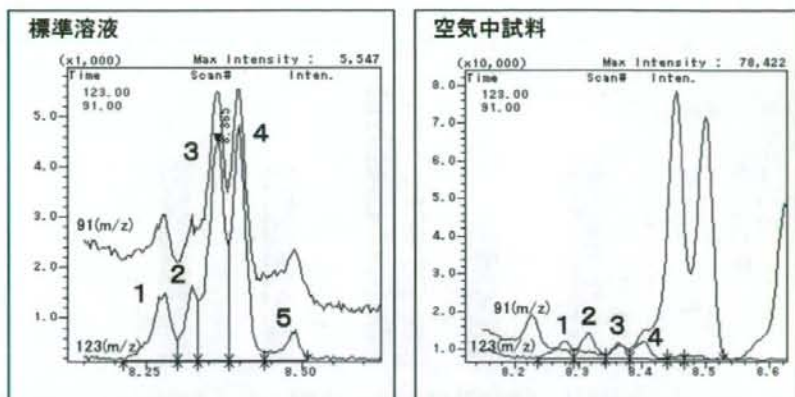
ピーク	回収率
エンペントリン 1	103 %
エンペントリン 2	101 %
エンペントリン 3	103 %
エンペントリン 4	88 %
エンペントリン 5	101 %
エンペントリン	98 %

表5 抽出・精製前試料の  
保存期間ごとの回収率

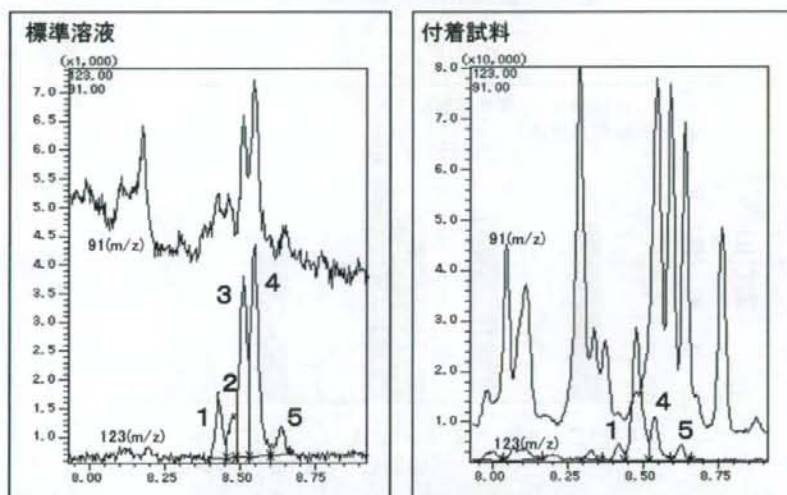
保存期間	回収率
0日	100.0 %
1日	112.6 %
2日	111.8 %
3日	117.1 %
4日	96.3 %
5日	116.3 %
6日	118.5 %
7日	117.8 %

表6 抽出・精製後試料の  
保存期間ごとの回収率

保存期間	回収率
0日	100.0 %
1日	82.4 %
2日	88.7 %
3日	87.7 %
4日	78.2 %
5日	67.6 %



使用カラム: HP-5MS 30m × 0.25mmID, 膜厚0.25 μm  
 図3-1 標準溶液および空气中試料溶液クロマトグラム



使用カラム: RtX-5MS 30m × 0.25mmID, 膜厚0.32 μm  
 図3-2 標準溶液および付着試料溶液クロマトグラム

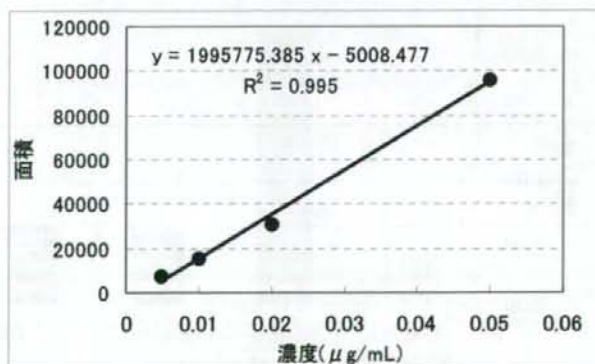


図4 空气中試料用検量線

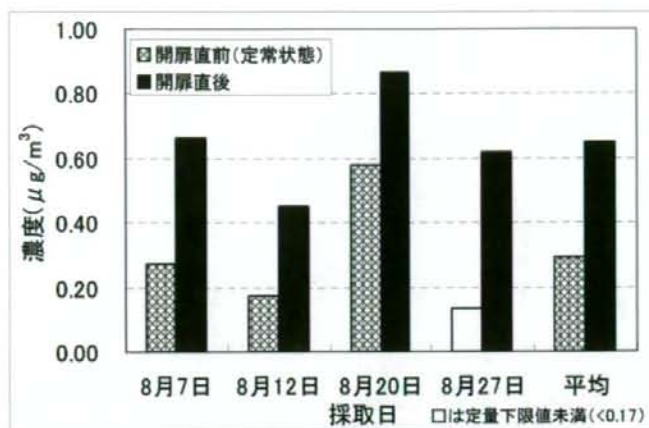


図5-1 空气中濃度 床上0.2m

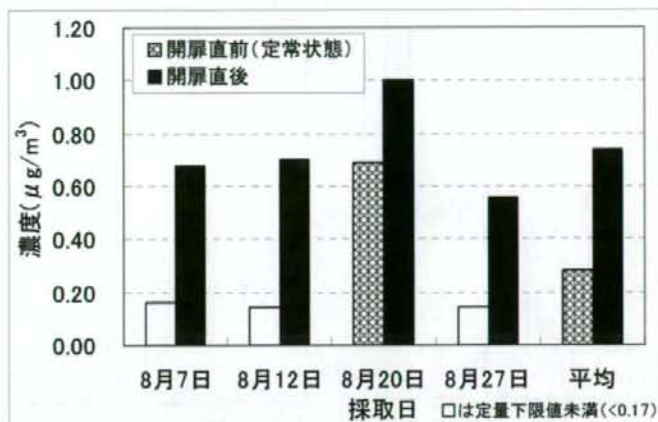


図5-2 空气中濃度 床上1.2m

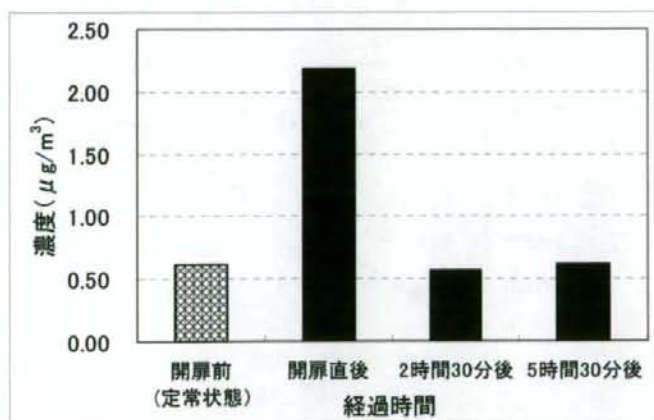


図6 空气中濃度経時変化

化学物質、特に家庭内の化学物質の曝露評価手法の開発に関する研究

室内空气中熱蒸散性ピレスロイド Prallethrin の実態調査

研究分担者 林 留美子 愛知県衛生研究所 衛生化学部 生活科学研究室長補佐

研究要旨：加熱蒸散性ピレスロイド系殺虫成分；Prallethrin を含有する液体蚊取り製品を使用する一般住宅 26 軒について、薬剤使用中の蚊取り器から半径 1m 以内、高さ 1.2m の室内空気 60L を採取し、Prallethrin の室内濃度およびその性状（粒子状、ガス状）を調査した。また、5 家庭については、SPM10-PM2.5 サンプラー（柴田科学 NWPS-35HS 型）を用いて空气中的 Prallethrin 浮遊粒子を PM2.5 画分と PM2.5～SPM10 の範囲の粒子（以下 SPM10 画分）に分粒し、各画分の Prallethrin 濃度を測定してその粒子径を調査した。

その結果、26 部屋の Prallethrin 平均濃度は  $5.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均は  $2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、室内空气中に熱蒸散した Prallethrin は大部分が粒子状で存在することが明らかとなった。また、面積が広く、窓を開放した部屋のほうが室内の Prallethrin 濃度は低くなる傾向がみられた。粒子径調査では、5 部屋の気中 Prallethrin 平均濃度は  $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均は  $2.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、SPM10 画分には平均濃度として  $0.37 \mu\text{g}/\text{m}^3$ （気中濃度平均の 14 %）が、PM2.5 画分には  $1.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ （気中濃度平均の 73 %）が捕集されていた。これらの結果は、少なくとも蚊取り器の近傍では揮散した Prallethrin のかなりの部分が肺深部まで到達し得る微小粒子として存在することを示している。従って、このような熱蒸散性製剤についての調査では、曝露経路を特定する上でも粒子径を考慮した実態の把握が重要であると考えられた。

#### A. 研究目的

家庭用に用いられる化学物質の曝露は、事故による誤飲が原因である経口曝露を除き、化学物質の揮散による気道曝露あるいは製品との接触による経皮曝露が主要な経路である。気道曝露あるいは経皮曝露は室外での曝露よりもむしろ室内での曝露量が多いと考えられる。そこで、化学物質の室内曝露評価のスキームを構築するために、使用頻度の高いバイオサイド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。得られた化学物質の空気質への揮散量と揮散性から気道曝露モデルを作成する。また、実際の住環境における実態調査を実施し、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曝露の評価に適応する。

本年度は、夏季に用いる蚊取り製剤として



使用が増加している Prallethrin などの加熱蒸散性薬剤を用いた製品を使用する家庭の室内空气中 Prallethrin 濃度を測定した。また、家庭内で使用される熱蒸散性薬剤の曝露は、揮散した室内空气中からの経気道曝露が主要経路であり、その曝露評価においては物質の室内濃度と肺まで到達可能な粒子径か否かが重要となることから、一部家庭においては併せて粒子径に関する調査を実施した。

## B. 研究方法

### B-1. Prallethrin の室内濃度実態調査

平成 20 年 8 月から 9 月に、Prallethrin を含有する液体蚊取り製品を使用する 26 家庭（表 1）において薬剤使用中の室内空気をサンプリングした。サンプリングは液体蚊とり器から半径 1m 以内の高さ 1.2m の位置で実施し、放散開始から 5 時間以上経過後に吸引ポンプ（柴田科学 Σ300）により 1 L/min で 60 分間採取した。サンプリングには 2 段アダプタを装着し、1 段目；石英フィルター（2500QAT-UP、直径 47 mm、東京ダイレック）、2 段目；エムポアディスク（Empore Disk C18、直径 47 mm、住友 3M）を使用した。両フィルターは、1 mg/L BHT/Methanol に短時間浸漬後 30 分間風乾したものを使用した。また、アンケート調査票（表 2）によって、液体蚊取り製品名、放散開始日時、サンプリング日時、換気等の状況等について調査を実施した。

### B-2. 室内空气中 Prallethrin の粒子径調査

5 家庭について再度の実態調査に加えて粒子径調査を実施した。SPM10-PM2.5 サンプラー（柴田科学 NWPS-35HS 型）を用いて 2.5 L/min の流速で 60 分間のサンプリングを行い、空气中的 Prallethrin 浮遊粒子を PM2.5 画分と PM2.5～SPM10 の範囲の粒子（以下

SPM10 画分と表記）に分粒し、石英フィルターに捕集した。

### B-3. 測定用試料の調製

26 家庭においてサンプリングした石英フィルターとエムポアディスクは、各々共栓試験管に入れ、アセトン 3 mL と Chrysene d<sub>12</sub> (10µg/mL アセトン溶液)30µL を加え、10 分間超音波抽出を行った。その後、3000 rpm で 5 分間遠心分離し、得られた上清を GC/MS 測定用試料とした。

### B-4. 分析方法

測定用試料 2µL をスプリットレス方式で GC/MS 装置に注入し、SIM 法を用いて定量を行った。内部標準法によりあらかじめ作成した検量線から試料中の Prallethrin 濃度を算出した。

### B-5. 装置及び測定条件

装置：Agilent6890N、5973N  
カラ ム：HP-5MS (30m×0.25mm ID、膜厚 0.25µm)  
注入方式：パルスドスプリットレス、2µL  
注入口温度：250°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 (IS)：Chrysene d<sub>12</sub>  
キャリアガス：He (カラ ム流量 1mL/分)  
検出法：選択イオン検出 (SIM)  
モニターイオン (m/Z)：Prallethrin (123, 105)、Chrysene d<sub>12</sub> (240, 223)

## C. 結果及び考察

### C-1. Prallethrin の室内濃度実態調査

Prallethrin を活性成分とする蚊取り製品を

使用した 26 部屋の気中 Prallethrin 平均濃度は  $5.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均は  $2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、中央値は  $3.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、何れの試料の場合も 2 段目のエムポアディスクからは Prallethrin は検出されなかった (表 3)。この結果から、室内空气中に熱蒸散した Prallethrin は大部分が粒子状で存在することが明らかとなった。また、面積が広く、窓を開放した部屋のほうが室内の Prallethrin 濃度は低くなる傾向がみられた (図 1、2)。

濃度測定を行った部屋で 8 時間過ごすとして仮定し、成人 (体重 50 kg) の 1 日あたりの呼吸量を  $15 \text{ m}^3$  とすると、幾何平均濃度から求めた推定経気道曝露量は、 $2.7 \times 15 / 50 \times 8 / 24 = 0.27 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$  となる。Australia で設定されている Prallethrin の ADI 値 ( $0.02 \text{ mg}/\text{kg}/\text{day}$ ) と比較すると、本研究で得られた推定曝露量はその 1.4 % であり、直ちに健康影響が懸念されるような経気道曝露レベルではないと考えられる。

#### C-2. 室内空气中 Prallethrin の粒子径調査

協力が得られた 5 部屋の気中 Prallethrin 平均濃度は  $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均は  $2.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、SPM10 画分には平均濃度として  $0.37 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (気中濃度平均の 14 %) が、PM2.5 画分には  $1.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (気中濃度平均の 73 %) が捕集されていた (表 4)。これらの結果は、少なくとも熱蒸散器の近傍では揮散した Prallethrin のかなりの部分が肺深部まで到達し得る微小粒子として存在することを示している。したがって、Prallethrin の曝露に関しては、経皮及び経口曝露よりむしろ肺からの取り込みあるいは肺での解毒代謝を十分に考慮することが必要であろう。また、Prallethrin のような熱蒸散性製剤についての調査では、曝露経路を特定する上でも、粒子径を考慮した

存在形態の把握が重要であると考えられた。

#### D. 結論

1. Prallethrin を活性成分とする蚊取り製品を使用中の一般住宅 26 部屋の気中 Prallethrin 平均濃度は  $5.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均は  $2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、何れの試料の場合も 2 段目のエムポアディスクからは Prallethrin は検出されなかった。この結果から、室内空气中に熱蒸散した Prallethrin は大部分が粒子状で存在することが明らかとなった。
2. Prallethrin の濃度測定を行った部屋で 8 時間過ごすとして仮定し、成人 (体重 50 kg) の 1 日あたりの呼吸量を  $15 \text{ m}^3$  とすると、幾何平均濃度  $2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  から求めた推定経気道曝露量は、 $0.27 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$  となる。これは Australia での Prallethrin の ADI 値 ( $0.02 \text{ mg}/\text{kg}/\text{day}$ ) の 1.4 % にあたり、直ちに健康影響が懸念されるような曝露レベルではないと考えられた。
3. Prallethrin の粒子径調査では、5 部屋の気中 Prallethrin 平均濃度は  $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、SPM10 画分には平均濃度として  $0.37 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (気中濃度平均の 14 %) が、PM2.5 画分には  $1.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (気中濃度平均の 73 %) が捕集されていた。これらの結果から、少なくとも熱蒸散器の近傍では揮散した Prallethrin のかなりの部分が肺深部まで到達し得る微小粒子として存在することが考えられた。
4. 家庭用に用いられる熱蒸散性ピレスロイド Prallethrin の曝露に関しては、経皮及び経口曝露よりむしろ肺からの取り込みあるいは肺での解毒代謝を十分に考慮することが必要であろう。また、このよう

な熱蒸散性製剤についての実態調査では、曝露経路を特定する上でも、粒子径を考慮した存在形態の把握が重要であると考えられる。

#### E. 研究発表

##### 1. 論文発表

なし

##### 2. 学会発表

1) 林 留美子、神野透人、香川（田中）聡子、古川容子、辻 清美、田中博子、数間 亨、武藤敦彦、西村哲治、大野 勉、室内空气中熱蒸散性ピレスロイド Prallethrin の実態調査、平成 20 年度室内環境学会、平成 20 年 12

#### F. 知的財産権の出願・登録状況

（予定を含む。）

なし



表1 住宅の構造およびサンプリング場所

No	1:木造戸建 2:集合住宅	階建て (集合住宅のみ)	階 (集合住宅のみ)	サンプリング 場所
1	2	7	5	寝室
2	1			寝室
3	1 (鉄筋)			寝室
4	1			寝室
5	1			居間
6	1			リビングダイニング
7	2	5	3	居間+和室
8	2	4	2	寝室
9	2	13	8	居間
10	1			寝室
11	2	5	4	寝室+居間
12	2	5	1	寝室
13	2	3	2	居間
14	1			寝室+居間
15	1			寝室
16	1			居間
17	1			寝室
18	2	6	2	寝室
19	1			寝室
20	2	5	2	寝室
21	1			居間
22	2 (木造)	2	2	寝室
23	2	14	9	寝室
24	2 (木造)	2	2	居間
25	2	6	5	居間
26	2	6	5	居間