

図23-1 標準溶液および空気中試料溶液クロマトグラム(エンペントリン)

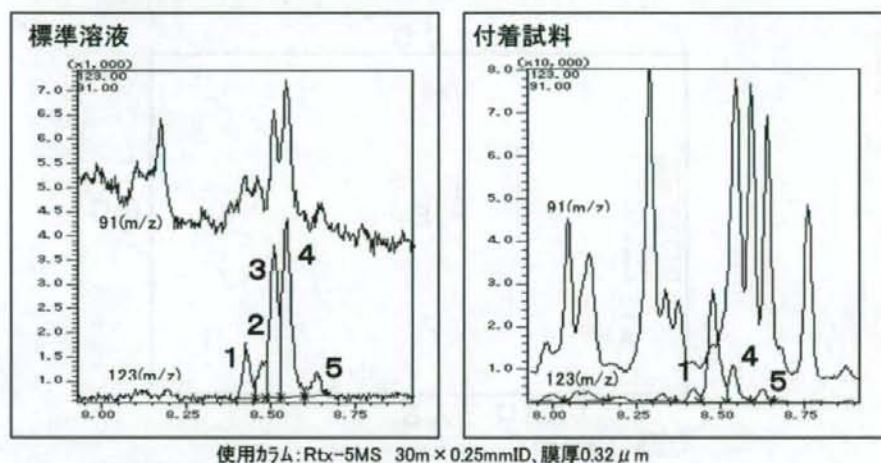


図23-2 標準溶液および付着試料溶液クロマトグラム(エンペントリン)

表20 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)	タンズ設置		
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)	タンズ開扉	直前(定常状態)	空気試料採取
			1分間	(付着試料採取開始)
8月8日	(金)	タンズ開扉	直後	空気試料採取
			24時間後	付着試料回収
			1分間	
8月11日	(月)	タンズ開扉	1分間	
8月12日	(火)	タンズ開扉	1分間	
8月13日	(水)	タンズ開扉	直前(定常状態)	空気試料採取
			1分間	(付着試料採取開始)
8月14日	(木)	タンズ開扉	直後	空気試料採取
			24時間後	付着試料回収
			1分間	
8月15日	(金)	タンズ開扉	1分間	
8月18日	(月)	タンズ開扉	1分間	
8月19日	(火)	タンズ開扉	1分間	
8月20日	(水)	タンズ開扉	直前(定常状態)	空気試料採取
			1分間	(付着試料採取開始)
8月21日	(木)	タンズ開扉	直後	空気試料採取
			24時間後	付着試料回収
			1分間	
8月22日	(金)	タンズ開扉	1分間	
8月25日	(月)	タンズ開扉	1分間	
8月26日	(火)	タンズ開扉	1分間	
8月27日	(水)	タンズ開扉	直前(定常状態)	空気試料採取
			1分間	(付着試料採取開始)
8月28日	(木)	タンズ開扉	直後	空気試料採取
			24時間後	付着試料回収
			1分間	
8月29日	(金)	タンズ開扉	1分間	
9月1日(月)		タンズ開扉	1分間	
~9月5日(金)				
9月8日	(月)	タンズ開扉	1分間	
9月9日	(火)	タンズ開扉	1分間	
			(定常状態)	空気試料採取
9月10日	(水)	タンズ開扉	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	"
			5時間30分後	"
9月11日	(木)	タンズ開扉	24時間後	付着試料回収

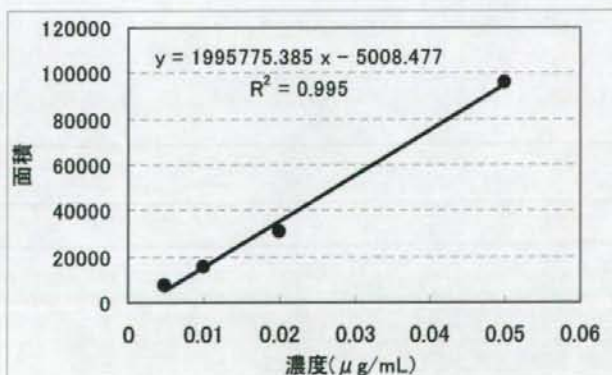


図24 エンペントリン検量線(空气中試料用)

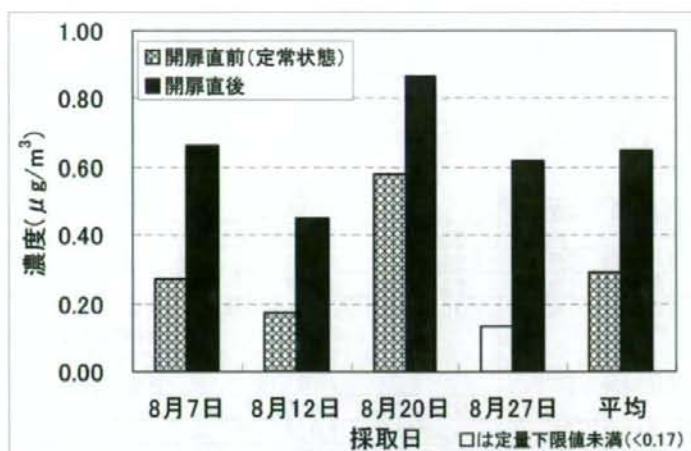


図25-1 エンペントリン空气中濃度 床上0.2m

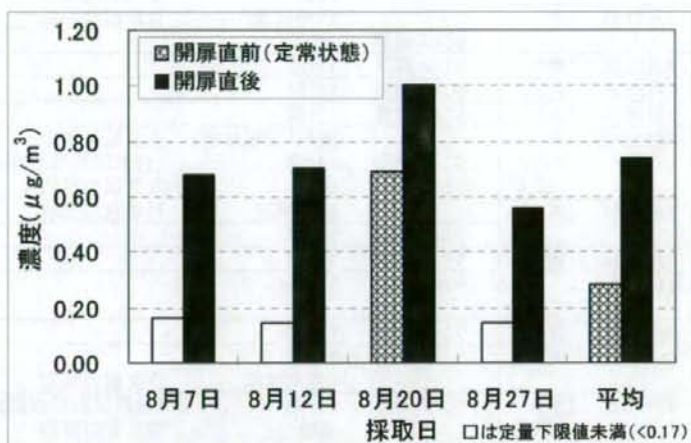


図25-2 エンペントリン空气中濃度 床上1.2m

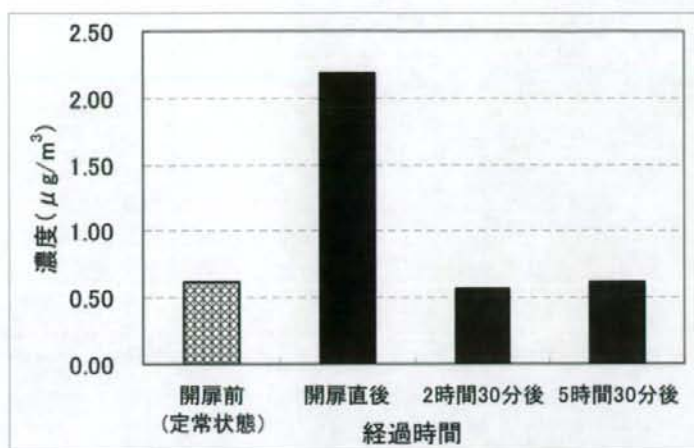


図26 エンペントリン空气中濃度経時変化



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

I. 空気質中ピレスロイド系殺虫剤の分析法の構築とモデルルーム内放散試験

II. 室内空気中熱蒸散性ピレスロイド；プラレトリンの実態調査

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：

I. 空気質中ピレスロイド系殺虫剤の分析法の構築とモデルルーム内放散試験

空気質中のイミプロトリン及びフェノトリンのサンプリング法を含めた分析法を検討し、以下に示す方法を構築した。すなわち捕集剤として予め 1 ppm ブチルヒドロキシトルエン-メタノール溶液で処理を行った石英フィルターとエムポアディスク C18 を積層して使い、空気の吸引量は、流速 1L/分で 20 分間とした。捕集剤からの両物質の抽出にはアセトンを用い、分析装置は EI-GC-MS、測定は選択イオン検出法により、定量は安定同位体内部標準法による方法を確立した。

次に、有効成分としてイミプロトリン及びフェノトリンを含有するゴキブリ用エアゾール剤「ゴキブリマキラー」を、モデルルーム内 4 辺に縦 10cm×横 100cm の帯状に 5 秒間噴射し、室内中央及び四隅の床上 0.2、1.2 m の空気を経時的にサンプリングした。また、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ー 2 枚ずつを室内空気のサンプリング終了まで設置した。その結果、床上 0.2、1.2 m の 5 測定地点におけるイミプロトリン、フェノトリンの各気中濃度平均値は、噴射直後が最も高く（イミプロトリン 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。一方、床面等への付着量は、床面が最も多く（イミプロトリン 316~1274 $\mu\text{g}/\text{m}^2$ 、フェノトリン 422~1252 $\mu\text{g}/\text{m}^2$ ）、壁、天井への付着はほとんどなかった。両物質の再放出量は定量下限値（0.007 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）未満であった。

II. 室内空気中熱蒸散性ピレスロイド；プラレトリンの実態調査

夏季に用いる蚊取り剤として使用が増加しているピレスロイド系殺虫成分；プラレトリンを含有する加熱式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、プラレトリン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）を用いて空気中のプラレトリン浮遊粒子を PM2.5 画分と PM2.5~SPM10 の範囲の粒子（以下 SPM10 画分）に分粒し、各画分のプラレトリン濃度を測定してその粒子径を調査した。その結果、26 部屋のプラレトリン平均濃度は 5.5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均は 2.7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、室内空気中に熱蒸散したプラレトリンは大部分が

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プラレトリン濃度は低くなる傾向がみられた。粒子径調査では、5部屋の気中プラレトリン平均濃度は $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、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プラレトリン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。

## I. 空気質中ピレスロイド系殺虫剤の分析法の構築とモデルルーム内放散試験

### 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、家庭内で使用頻度の高いバイオサイドを選択し、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、天井への吸着量の測定を行う。また、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。

本研究では、家庭内で使用頻度の高いゴキブリ用エアゾール剤中の有効成分であるイミプロトリン及びフェノトリンについて、空気質中の分析法の構築とモデルルーム内での放散試験を行った。

### 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)、メタノールは和光純薬製の特級、アセトンは関東化学製のフタル酸エステル試験用、ジクロロメタンは和光純薬製の環境分析用を用いた。クリセン- $d_{12}$ は、C/D/N ISOTOPES 製 (純度99%) を用いた。イミプロトリン及びフェノトリンは、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) は住友3M製、石英フィルター2500 QAT-UP (直径47 mm) は東京ダイレック製、アエロカートリッジ SDB400HF はジーエルサイエンス製を用いた。なお、石英フィルターは $300^\circ\text{C}$ 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、30分程度風乾後使用した。アエロカートリッジは、1 ppm BHT-メタノール溶液0.1 mLを添加し、15分程風乾後使用した。BHT処理は使用時に行った。



## B-2. モデルルーム内での放散試験・再放出試験

日本環境衛生センターに設置されているモデルルーム(簡易型チャンバー室、24.3 m<sup>3</sup>)を用いて、1回目は2008年1月25日、2回目は同月31日に行った(図1、表1)。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秒間噴射する。この時のエアゾールの噴射量は、4辺の合計20秒で1回目53.49g、2回目47.59gであった。

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。

捕集剤は前段にBHT処理した石英フィルターを、後段にBHT処理したエムポアディスクをろ紙ホルダーに積層し、流速1L/分で20分間空気を吸引捕集した。採取後の捕集剤は、アルミホイルに包み、冷蔵保存した。

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。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。

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、4機関(神奈川県衛生研究所、滋賀県衛生科学セン

ター、国立医薬品食品衛生研究所、愛知県衛生研究所)で分析を行った。

## B-3. 測定用試料の調製

日本環境衛生センターより送られてきた石英フィルターとエムポアディスクを共栓試験管に入れ、アセトン5mLとクリセン-d<sub>12</sub>(10 µg/mLアセトン溶液)50 µLを加え、10分間超音波抽出を行った。その後、3000rpm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。

アエロカートリッジは中から捕集剤及びガラス繊維ろ紙を取り出し、共栓試験管に入れ、ジクロロメタン5mLを加え、10分間超音波抽出を2回行った。この抽出液にクリセン-d<sub>12</sub>(10 µg/mLアセトン溶液)を50 µL添加後、窒素気流下で1~2mLまで濃縮した。遠心分離後、上清をGC/MS測定用試料とした。

## B-4. 分析方法

測定用試料2 µL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各成分の濃度を算出した。

## 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0.25 µm)  
入方式 : パルスドスプリットレス、2 µL  
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) : クリセン-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）：イミプロトリン  
（123,151）、フェノトリン（123,183）、  
クリセン-d<sub>12</sub>（240,223）

## C. 結果及び考察

### C-1. 検量線及び定量方法

イミプロトリン及びフェノトリンの濃度が 0.005、0.02、0.05、0.2、0.5、1 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ン-d<sub>12</sub> 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、イミプロトリン、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（図 2）、それぞれの大きい方のピークのみを用いて定量を行った。また、検量線は 0.005～1 ppm の濃度範囲において二次曲線となるため、0.005～0.2 ppm と 0.2～1 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た（図 3）。

当所における定量下限値は、イミプロトリン、フェノトリンともに、検量線の最小濃度 0.005 mg/L とした。サンプル濃度（捕集量 20L）では 1.25 µg/m<sup>3</sup> となった。

### C-2. サンプル法の検討

空気中のイミプロトリン及びフェノトリンのサンプリング法を、従前のピレスロイド系殺虫剤の捕集法に準じて検討した。

すなわち、前段の BHT 処理（1ppm BHT-メタノール溶液に浸漬）した石英フィルターに混合標準試料（10ppm）を 100µL 添加し、後段に BHT 処理したエムポアディスクをろ

紙ホルダーに積層し、流速 1 L/分で 20 分間空気を吸引（捕集量 20L）してイミプロトリン及びフェノトリンの回収率を検討した。その結果、イミプロトリンは 84.7%、フェノトリンは 78.4% とほぼ良好な回収率であった。

また、BHT 処理（1ppm BHT-メタノール溶液 0.1mL を添加）したアエロカートリッジに混合標準試料（10ppm）を 100µL 添加し、流速 2 L/分で 12 時間空気を吸引（捕集量 1440 L）した結果、イミプロトリンは 77.1%、フェノトリンは 81.4% とほぼ良好な回収率であった。

これらの結果から、酸化防止剤としては 1 ppm BHT-メタノール溶液を使用し、捕集量が 20L の放散試験では、石英フィルターとエムポアディスクを使用し、捕集量が多い（1440 L）再放出試験では、アエロカートリッジを使用して空気中のイミプロトリン、フェノトリンを捕集することとした。

### C-3. 保存試験

放散試験は、日本環境衛生センター（川崎市）内に設置されているモデルルームで実施し、サンプリング後の捕集剤を分析担当の 4 機関へ送付する。従ってサンプリング後すぐには分析できないため、捕集剤に吸着されたイミプロトリン及びフェノトリンの保存試験を行い、安定性を確認した。

1 ppm BHT-メタノール溶液で処理した石英フィルター及びアエロカートリッジに混合標準試料（10ppm）を 100µL 添加し、アルミホイルに包んで 2 週間冷蔵保存した。その結果、イミプロトリン、フェノトリンともに冷蔵保存で 2 週間安定（図 4）であった。この結果から、サンプリング後 2 週間以内に試料の分析を行うこととした。



#### C-4. モデルルーム内での放散試験・再放出試験試料の分析

##### (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「ゴキブリフマキラー」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(表2、図5)。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、さらに換気等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 $423\sim 1252\mu\text{g}/\text{m}^2$ )、壁面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(図6)。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。

##### (3) 再放出量

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。

#### D. 結論

1. モデルルーム内放散試験のための、室内空気中のイミプロトリン及びフェノトリンのサンプリング法を含めた分析法を構築した。捕集剤として予め1ppm BHT-メタノール溶液で処理を行った石英フィルターとエムポアディスク C18 を積層して用い、空気の吸引量は、流速 1L/分で20分間とした。捕集剤からのイミプロトリン及びフェノトリンの抽出は、アセトンを用いた。分析装置はEI-GC-MS、測定は選択イオン検出法、定量は安定同位体内部標準法を用いた。
2. 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。
3. 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 422~1252 $\mu\text{g}/\text{m}^2$ )、壁、天井への付着はほとんどみられなかった。

4. 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、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。

## II. 室内空气中熱蒸散性ピレスロイド；プラレトリンの実態調査

### A. 研究目的

家庭用に用いられる化学物質の曝露は、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、使用頻度の高いバイオサイドを選択し、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、壁への吸着量を測定する。また、放散試験において得られた結果と化学物質の揮散性から気道曝露モデルを作成する。さらに、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を測定し、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應する。

本研究では、夏季に用いる蚊取り製剤として使用が増加している熱蒸散性ピレスロイド；プラレトリンを含有する製品を使用する家庭の室内空气中プラレトリン濃度を測定した。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. プラレトリンの室内濃度実態調査

平成20年8月から9月に、プラレトリンを含有する液体蚊取り製品を使用する26家庭(表4)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取り器から半径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1L/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47mm、東京ダイレック)、2段目；エムポアディスク(Empore Disk C18、直径47mm、住友3M)を使用した。両フィルターは、1ppm BHT-メタノール溶液に短時間浸漬後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5)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. 室内空气中プラレトリン粒子径調査

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、空気中のプラレトリン浮遊粒子を 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 とクリセセン  $d_{12}$  (10  $\mu\text{g/mL}$  アセトン溶液) 30  $\mu\text{L}$  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 2 $\mu\text{L}$  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プラレトリン濃度を算出した。

### B-5. 装置及び測定条件

装置 : Agilent6890N、5973N

カラム : HP-5MS (30m $\times$ 0.25mm ID、膜厚 0.25 $\mu\text{m}$ )

注入方式 : パルスドスプリットレス、2 $\mu\text{L}$

注入口温度 : 250 $^{\circ}\text{C}$ 、イオン源温度 : 230 $^{\circ}\text{C}$

四重極温度 : 150 $^{\circ}\text{C}$

カラム温度 : 50 $^{\circ}\text{C}$  (2 分)、40 $^{\circ}\text{C}/\text{分}$   $\rightarrow$  170 $^{\circ}\text{C}$ 、

6 $^{\circ}\text{C}/\text{分}$   $\rightarrow$  300 $^{\circ}\text{C}$  (2 分)

内部標準物質 (IS) : クリセセン  $d_{12}$

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) : プラレトリン  
(123, 105)、クリセセン  $d_{12}$  (240, 223)

## C. 結果及び考察

### C-1. プラレトリンの室内濃度実態調査

プラレトリンを活性成分とする蚊取り製品を使用した 26 部屋の気中プラレトリン平均濃度は 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プラレトリンは検出されなかった (表 6)。この結果から、室内空气中に熱蒸散したプラレトリン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プラレトリン濃度は低くなる傾向がみられた (図 7、8)。

濃度測定を行った部屋で 8 時間過ごす と仮定し、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 で設定されているプラレトリンの 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. 室内空气中プラレトリン粒子径調査

協力が得られた 5 部屋の気中プラレトリン平均濃度は 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 7)。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プラレトリン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、プラレトリンの曝露に関しては、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、プラレトリン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. プラレトリンを活性成分とする蚊取り製品を使用中の一般住宅 26 部屋の気中プラレトリン平均濃度は  $5.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、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プラレトリン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プラレトリンは大部分が粒子状で存在することが明らかとなった。
2. プラレトリンの濃度測定を行った部屋で 8 時間過ごすとして、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。これはオーストラリアでのプラレトリンの 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. プラレトリンの粒子径調査では、5

部屋の気中プラレトリン平均濃度は  $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$  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プラレトリン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; プラレトリンの曝露に関しては、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。

#### E. 研究

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 月

- G. 知的財産権の出願・登録状況  
(予定を含む。)

なし

表1 モデルルーム内でのゴキブリ用エアゾール剤放散試験の実施状況

測定日		第1回目 1月25日	第2回目 1月31日
換気回数(回/hr)	0hr	0.88	0.93
	8h20min	0.81	0.94
温度	°C	25.5-25.7	25.7-26.1
湿度	%	13-14	12-20
エアゾール噴射量(g/5sec.×4回)		53.49	47.59
再放出試験 噴射後約9時間後～		2L/minで12時間	

表2 ゴキブリ用エアゾール剤放散試験における気中濃度の経時変化（5測定地点の平均値\*）

【イミプロトリン】					
	( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )				
噴射後経過 時間（時間）	0	1	2	4	8
0.2m-1回目	53	16	4.3	0.64	0.43
0.2m-2回目	74	15	4.7	0.49	0.49
1.2m-1回目	45	15	5.0	0.53	0.51
1.2m-2回目	33	12	4.3	0.55	0.51

【フェントリン】					
	( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )				
噴射後経過 時間（時間）	0	1	2	4	8
0.2m-1回目	73	23	5.3	2.1	1.3
0.2m-2回目	77	15	5.1	0.79	0.74
1.2m-1回目	52	19	6.2	1.5	1.1
1.2m-2回目	34	13	4.0	0.85	0.57

\* 定量下限値未満は、定量下限値の1/2として算出



表3 各測定地点におけるイミプロトリン、フェノトリン付着量  
(2回の放散試験、各2枚の平均値\*)

【イミプロトリン】			
( $\mu\text{g}/\text{m}^2$ )			
測定地点	床	壁	天井
A	1011	8.1	16
B	450	3.5	3.5
C	974	7.0	7.0
D	1274	7.5	15
E(中央)	316	-	13

【フェノトリン】			
( $\mu\text{g}/\text{m}^2$ )			
測定地点	床	壁	天井
A	1058	17	31
B	604	5.3	7.0
C	959	7.0	7.0
D	1252	7.5	16
E(中央)	423	-	20

\* 定量下限値未満は、定量下限値の1/2として算出

表4 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

表5 プラレトリン実態調査アンケート

液体蚊取り中のピレスロイド系殺虫剤に関する実態調査【調査票】				
検体番号(住宅構造)	(木造戸建、集合住宅〔 階建の 階〕、その他 )			
液体蚊取り製品名				
設置場所(居間等)	面積	m <sup>2</sup>		
放散開始日時	月 日 時 分から			
サンプリング日時	月 日 時 分から	月 日 時 分まで		
捕集量	リットル			
サンプリング時の温度	℃	湿度	%	
放散開始からサンプリング 終了までの換気等状況	窓の開放:	月 日 時 分から	月 日 時 分まで	
	エアコンの使用:	月 日 時 分から	月 日 時 分まで	



表6 プラレトリン室内濃度、床面積、窓の開放

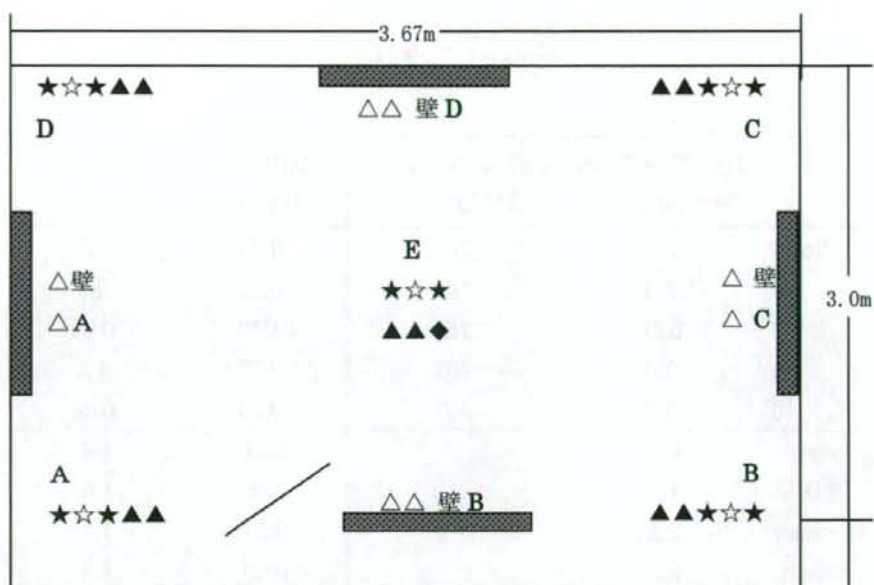
No	1段:石英フィル ター ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	2段:エムポアディ スク ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	床面積 ( $\text{m}^2$ )	窓の開放 +:あり
1	0.50	ND	10	+
2	11	ND	9.9	-
3	1.0	ND	25	-
4	0.24	ND	13.2	+
5	12	ND	13.2	-
6	2.7	ND	22.7	-
7	0.70	ND	25.9	+
8	0.96	ND	10.8	+
9	0.22	ND	10.5	-
10	2.9	ND	16.2	+
11	1.3	ND	16	-
12	1.7	ND	9.7	-
13	5.3	ND	18	-
14	0.15	ND	8.1	-
15	1.6	ND	16.5	-
16	14	ND	19.4	-
17	5.9	ND	9.7	-
18	4.6	ND	9.9	-
19	3.5	ND	13.2	?
20	10	ND	10	-
21	2.6	ND	18	-
22	4.9	ND	9.7	-
23	5.8	ND	7.3	-
24	26	ND	9.7	-
25	8.0	ND	9.7	-
26	15	ND	8.1	-
mean	5.5		13	
S.D.	6.1		5.3	
G-mean	2.7		13	
median	3.2		11	

ND<0.1  $\mu\text{g}/\text{m}^3$

表7 粒子径によるプラレトリン室内濃度

	1段:石英フィル ター ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	2段:エムポアディ スク ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	SPM 10 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	PM 2.5 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
No 6	2.9	ND	0.49	2.2
7	5.3	ND	0.83	3.9
8	0.85	ND	0.070	0.39
9	2.5	ND	0.29	1.9
10	1.5	ND	0.16	0.86
mean	2.6		0.37	1.9
S.D.	1.7		0.30	1.4
G-mean	2.2		0.27	1.4
median	2.5		0.29	1.9

ND<0.1  $\mu\text{g}/\text{m}^3$



□ : 空気サンプル採取位置 (0.2 及び 1.2m)

→エアゾール噴射 0,1,2,4,8 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

■ : ベニヤ板 (縦 10cm×横 100cm)

図 1 モデルルーム平面図