

表3 *Rhodotorula*, *Cladosporium Sp.*及び加湿器から発生した VOCs 発生量[$\mu\text{g}/\text{h}\cdot\text{unit}$]

	<i>Rhodotorula</i> (1 week)	<i>Cladosporium</i> (3 days)	Humidifier
Acetaldehyde	21.79	0.03	1.89
Acetone	84.08	0.26	99.88
Disulfide, dimethyl	n.d.	0.01	0.17
1-Propanol, 2-methyl-	0.03	n.d.	n.d.
3-Buten-1-ol, 3-methyl-	n.d.	0.01	n.d.
1-Butanol, 3-methyl-	1.93	0.04	n.d.

は、Acetaldehyde 及び Acetone が大量に発生し、その他にも 3-methyl-1-butanol が発生していた。加湿器エレメントからも Acetone が多量に発生し、その他にも dimethyl disulfide (二硫化ジメチル) の発生が確認された。しかし、*Rhodotorula* 及び *Cladosporium Sp.* で発生が確認できた 2-methyl 1-propanol, 3-methyl-3-buten-1-ol などの発生は確認することができなかった。

D. 考察

実建材上における MVOC の発生量の定量化を試みたが、本研究で対象とした壁紙においては、塗布したカビ胞子が成長せずに、壁紙からの MVOC を検出することができなかった。この理由として、壁紙に塗布した栄養源の条件、養生中の空気の温湿度条件等に課題があるものと考えられる。特にカビの生育条件の一つとして、壁紙自体が結露するほどの湿気を含んでいることが成長を促進することに重要であるが、今回は相対湿度 98% 程度に維持したものの、結露するまでには至っていない。今後は、表面の水分条件なども制御しつつ、検討することが必要であると考えられる。

また、MVOC の問題として加湿器からの MVOC の検出を試みたが、加湿器エレメント自体の VOCs 発生が多く、MVOC として確認できるものは、dimethyl disulfide であった。加湿器に使用されていた状態で速やかに発生試験を行うこと、加湿器に使用されている条件を正確に再現するような養生条件を組み合わせることにより、付着菌、カビ単体の MVOC、加湿器からの発生物質を比較検討することにより、加湿器由来の臭気、MVOC について因果関係が証明できるものと考えられる。

E. 結論

真菌からの MVOC 発生量について、カビ胞子を塗布した壁紙及び使用されていた加湿器エレメントから発生する MVOC の測定を行った。

1) カビ胞子を塗布した壁紙については、本実験条件においては、目視及び顕微鏡による真菌の成長が 4 週間程度では認められず、MVOC の発生も確認することができなかった。

2) 加湿器エレメントからの VOCs 発生量について測定を行い、トルエンなど芳香族炭化水素の他に、シール材などで使用されている低分子シロキサン類が検出された。主にフィルタを構成する材料が検出されたことによるものと考えられる。

3) 加湿器由来の *Rhodotorula*, *Cladosporium Sp.*からの MVOC の測定を行い、*Rhodotorula* からは、Acetaldehyde 及び Acetone が大量に発生し、その他にも 3-methyl-1-butanol が発生していた。加湿器エレメントからも Acetone が多量に発生し、その他にも dimethyl disulfide (二硫化ジメチル) の発生が確認された。

4) *Rhodotorula* 及び *Cladosporium Sp.* で発生していた 2-methyl 1-propanol, 3-methyl-3-buten-1-ol などの発生は確認することができなかった。加湿器においては実環境を正確に再現することにより、その他の MVOC の発生についても確認できるものと考えられる。

F. 研究発表

鍵直樹, 池田耕一, 柳宇, 長谷川あゆみ: DNPH カートリッジによる室内アルデヒドの分析精度の実態調査, 日本建築学会技術報告集, 第 15 巻第 29 号, 163-166, 2009. 2

Naoki Kagi, U Yanagi and Koichi Ikeda:

Relationship between growth process of fungus and MVOC emission, Pro. the 9th International Symposium on Building and Urban Environmental Engineering, pp. 189-193, 2008. 7, Hong Kong.

鍵直樹, 柳宇, 池田耕一: 真菌の培養環境と MVOC の発生特性, 日本建築学会学術講演梗概集, pp. 879-880, 2008. 9

参考文献

- 1) E. Kaminski et al.: Volatile flavor compounds produced by molds of *Aspergillus*, *Penicillium* and *Fungi imperfecti*, *Appl. Environ. Microbiol.*, 24, 1974
- 2) T. Borjesson et al.: Volatile metabolites and other indicators of *Penicillium aurantiogriseum* growth on different substrates, *Appl. Environ. Microbiol.*, 56, 1990
- 3) 朴俊錫ほか: 真菌由来揮発性有機化合物による空気調和機汚染に関する研究, 日本建築学会計画系論文集, pp.43-48, 2002
- 4) 朴俊錫, 池田耕一: 居住空間における真菌由来揮発性有機化合物による室内空気汚染に関する研究, 日本建築学会計画系論文集, pp.61-66, 2004
- 5) K. Fieldler et al.: Detection of microbial volatile organic compounds (MVOCs) produced by moulds on various materials, *Int. J. Hyg. Environ. Health* 204, 111-121, 2001
- 6) 鍵直樹ほか: 真菌の成長過程と MVOC 発生量の関係, 日本建築学会学術講演梗概集, pp. 897-898, 2006. 9
- 7) 中村美咲ほか: 室内環境中の微生物発育速度・MVOC 放散のモデリングと数値予測手法の開発 (第 5 報) 3 種類の真菌を対象とした MVOC 放散フラックスの測定, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集, pp.2033-2036, 2006
- 8) 小峯裕己ほか: 住宅室内のカビ汚染と防止に関する研究 その 1 人工的な汚れのある建材上へ湿性カビ 4 種類が発生しにくい温湿度範囲の特定, 日本建築学会計画系論文集, 484, 33-41, 1996
- 9) T. Murtoniemi et al., : The relationship between growth of four microbes on six different plasterboards and biological activity of spores, *Indoor Air*, 13, 65-73, 2003
- 10) 齋藤宏昭ほか: 構造用合板表面における真菌の成長速度に関する基礎実験, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集, 2045-2048, 2006
- 11) 弘瀬将光ほか: 各種建材における真菌起源揮発性有機化合物の放散量の測定に関する研究 (その 2) 建材及び真菌の種類が MVOC 放散量に及ぼす影響の検討, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集, 2041-2044, 2006
- 12) Naoki Kagi, U Yanagi and Koichi Ikeda: Relationship between growth process of fungus and MVOC emission, Pro. the 9th International Symposium on Building and Urban Environmental Engineering, pp. 189-193, 2008.7, Hong Kong.

「シックハウス症候群の診断・治療法及び具体的対応方策に関する研究」
『慢性有機リン中毒の瞳孔組織所見』

研究分担者 石川 均 北里大学医療衛生学部視覚機能療法学教授
研究協力者 石川 哲 北里研究所・顧問
後関 利明 北里大学眼科
真下紀美代 北里大学眼科
根本 典子 北里大学バイオイメージングセンター
浅川 賢 北里大学大学院医療系研究科感覚・運動統御医科学群
視覚情報科学

研究要旨

有機リン剤は殺虫剤、農薬など我々の身近で使用されておりシックハウス症候群の主な原因物質と考えられている。有機リンの急性中毒ではサリン同様 pin-hole pupil と称される極端な縮瞳を呈する。ところが長期にわたる微量の暴露、すなわちシックハウス症候群では瞳孔径、瞳孔反応異常が出現するもののその発生メカニズムは明らかではない。今回我々は慢性的な有機リン暴露による瞳孔異常を検討するため長期にわたり有色家兎に有機リンを投与し、慢性中毒モデルを作成し瞳孔径、反応異常出現のメカニズムを検討した。

有色家兎中毒モデルは以下のように作成した。

- ① dichlorvos = DDVP : (水溶性有機リン) : 臀部に筋注 0.2 mg/kg × 44 回 Total 26.4 mg
- ② fenitrothion (脂溶性有機リン) : 10^{-4} M (100・M) を 12 回右眼結膜下注射

瞳孔径は注射前・終了時、さらに径時的に同一時間に計測し、注射終了後、眼球、肝臓を摘出し電子顕微鏡にて組織を観察した

その結果、瞳孔径に臨床的に問題となる径時的な変動はなく、両眼とも 5.2 ± 0.6 mm であった。電子顕微鏡による観察では有機リンの長期間投与にて肝臓内の滑面小胞体が増加した。瞳孔括約筋には特記すべき所見はなく虹彩の色素上皮細胞の核は変性、色素顆粒は大小不同となった。またそれに伴い瞳孔散大筋の空胞変性、萎縮が明らかとなった。

以上の結果より有機リンの慢性中毒時の瞳孔異常はアセチルコリンエステラーゼ活性の低下や神経原性反応というよりむしろ解剖学的特長から散大筋の萎縮が瞳孔径、瞳孔反応に影響を及ぼしている可能性が高かった。

A. 研究目的

シックハウス症候群では瞳孔・調節異常、脳血流異常が出現することが知られている^{1, 2)}。シックハウス症候群を引き起こす代表的なもののひとつである有機リンは殺虫剤、農薬など我々の身近で使用されている。急性有機リン中毒では多くの場合、瞳孔は縮瞳することが知られているが、慢性中毒では瞳孔径はさまざまに一定せず、その詳細なメカニズムも解明されていない。有機リン中毒での瞳孔反応異常メカニ

ズムを解明しシックハウス症候群の診断に役立てるため平成 18 年度、我々は摘出家兎瞳孔括約筋、毛様動脈を用い抗アセチルコリンエステラーゼ薬の作用を検討した。その結果、可逆性抗アセチルコリンエステラーゼ薬であるエゼリンはフィールド刺激による瞳孔括約筋の収縮を増強させた。すなわち神経末端から放出されるアセチルコリンエステラーゼの活性を抑制し収縮を増強させたものと考えられる。一方、摘出毛様動脈標本はフィールド刺激による弛緩が一

部は増強、一部は減弱した。平成 19 年度水溶性有機リン系薬物である dichlorvos (DDVP) を用い同様の実験を行った。すなわち白色、有色家兎摘出瞳孔括約筋および摘出瞳孔散大筋を用い *in vitro* にてその作用を検討した。さらに DDVP を直接家兎結膜下に注射し瞳孔径の変化を計測し、前房内のアセチルコリンエステラーゼ活性を測定した。DDVP は瞳孔括約筋のみフィールド刺激による収縮を増強させた。しかし *in vivo* すなわち結膜下に DDVP 注射を行っても瞳孔径に有意な変化は生じず、さらにアセチルコリンエステラーゼ活性もコントロールと同値であった。また平成 18 年度より有色家兎の腎部に DDVP さらに結膜下へ fenitrothin の投与を続け慢性中毒モデルを作成した。今回は本モデルの虹彩組織所見を中心に述べ、シツクハウス症候群の瞳孔異常メカニズムを考察した。

B. 研究方法

実験は北里大学動物実験計画書 (No. 122) に沿って行った。白色雄性家兎 (体重 2 ~ 3Kg)、有色雄性家兎 (体重 2 ~ 2.5Kg) を用いた。

中毒モデル作成法

① DDVP : (水溶性有機リン) : 腎部に筋注 0.2 mg/kg × 44 回 Total 26.4 mg を行い、投与間隔は家兎の状態により最短 3 日、最長 3 週間とした。

② fenitrothin (脂溶性有機リン) : 10^{-4} M (100・M) を 12 回右眼結膜下注射をほぼ月に 1 回行った。

注射前には同条件、同一時間にて瞳孔を撮影し caliper の長さより瞳孔径を比例計算し計測した。上記注射終了後、過剰量のペントバルビタールナトリウム (ネンプタル®) を耳静脈から注射し屠殺後、組織を傷めないよう房水をグルタールで置換しながら眼球摘出。電子顕微鏡にて組織を観察した。

C. 研究結果

DDVP : 10mg/kg 投与で 2 回筋注後死亡。2mg/kg 4 回筋注後死亡。以上より急性毒性 (致死量) はおよそ 10mg/kg 程度と考えられる。そのため 26.4mg では慢性中毒モデルとな

りうると考えられた。

(1) 瞳孔径

有色家兎の注射前平均瞳孔径は左右同大 $5.2 \pm 0.6\text{mm}$ で各回の注射時もほぼ同様の値であった。

(2) 組織

写真 1. 正常家兎虹彩中央部

= 虹彩色素上皮中の大小不同のない色素顆粒。散大筋が色素上皮の突起であることが良く理解できる

写真 2. DDVP 投与家兎虹彩先端部

= 瞳孔括約筋はほぼ正常。瞳孔散大筋に軽度の空胞変性、萎縮を認める

写真 3. DDVP 投与家兎虹彩中央部

= 虹彩色素上皮内の空胞化 (矢印) と瞳孔散大筋の萎縮

写真 4. fenitrothin 投与家兎虹彩中央部

= 虹彩色素上皮中色素顆粒の大小不同が明らか。さらに瞳孔散大筋の空胞変性、萎縮が著明

写真 5. fenitrothin 投与家兎肝臓

= 滑面小胞体の増加が著明 (白点線囲み)

D. 考察

これまでの我々の研究から慢性有機リン中毒の瞳孔異常は急性中毒と異なり有機リンの持つ薬理作用である不可逆性アセチルコリンエステラーゼ作用によるものとは異なることが判明した。平成 18 年度よりごく微量の有機リンを投与し飼育を続けた有色家兎の虹彩、肝臓組織を本年度観察した。肝臓組織内では薬物代謝のため滑面小胞体の増加が明らかで慢性中毒を示唆するものとなった。虹彩においては瞳孔括約筋は組織学的変化はほとんどなく、変化の中心は虹彩色素上皮、瞳孔散大筋であった。虹彩色素上皮の色素顆粒は大小不同となり核の変性も明らかで瞳孔散大筋の筋細胞も空胞変性が生じ、筋萎縮が進行していた。ここで特記すべきことは虹彩色素上皮と散大筋は核が共有であり瞳孔散大筋は虹彩色素上皮の突起であると考えられている。すなわち虹彩色素上皮の障害は 2 次的に瞳孔散大筋の萎縮を生ずる可能性があることである。

眼内作用薬は虹彩色素に薬物が沈着もしくは結合しその作用が見かけ上減弱して見えること

がある。特にアトロピンで有名であるが有機リンも色素親和性が高い。そのため有機リンは以前弱視、内斜視治療に用いられていたが虹彩囊腫等を生じ易くその使用が中止された。今回の組織結果から色素顆粒に長期間沈着した有機リンにより色素顆粒が障害され、さらに核に変性が及び最終的にその突起である瞳孔散大筋に変性、萎縮が及んだものと考えられる。瞳孔散大筋は薬物以外、虹彩毛様体炎、梅毒、糖尿病などで萎縮することが知られておりいずれの疾患でも初期瞳孔径の変化やダイナミックスの変化を生じうる。

以前、宮田らは多種類化学物質過敏症患者にホルムアルデヒドの負荷試験を行うと初期瞳孔径、縮瞳率、縮瞳速度、散瞳速度にコントロールと変化が生じることを報告している¹⁾。このような急性負荷による瞳孔異常は自律神経異常が原因と考えられる。それに加え今回の実験より虹彩、さらに瞳孔散大筋の解剖学的特徴から生じる変性、萎縮もシックハウスによる瞳孔異常を生ずる可能性があることを特記したい。

E. 結論

シックハウス症候群患者の瞳孔径、瞳孔反応異常は動物実験の結果より神経原性変化、原因薬物の薬理作用以外に瞳孔散大筋の解剖学的特徴から生じている可能性が高い。

F. 研究発表

1. 論文発表
なし
2. 学会発表
なし

参考文献

- 1) 宮田幹夫, 坂部貢, 松井貴子, 遠乗秀樹, 石川哲. 多種類化学物質過敏症患者の二重盲検ホルムアルデヒド負荷試験と瞳孔. 神眼 19: 155-161, 2002
- 2) 坂部貢, 宮田幹夫, 石川哲, 角田和彦. シックハウス症候群と脳循環. 神眼 19: 162-168, 2002

写真 1

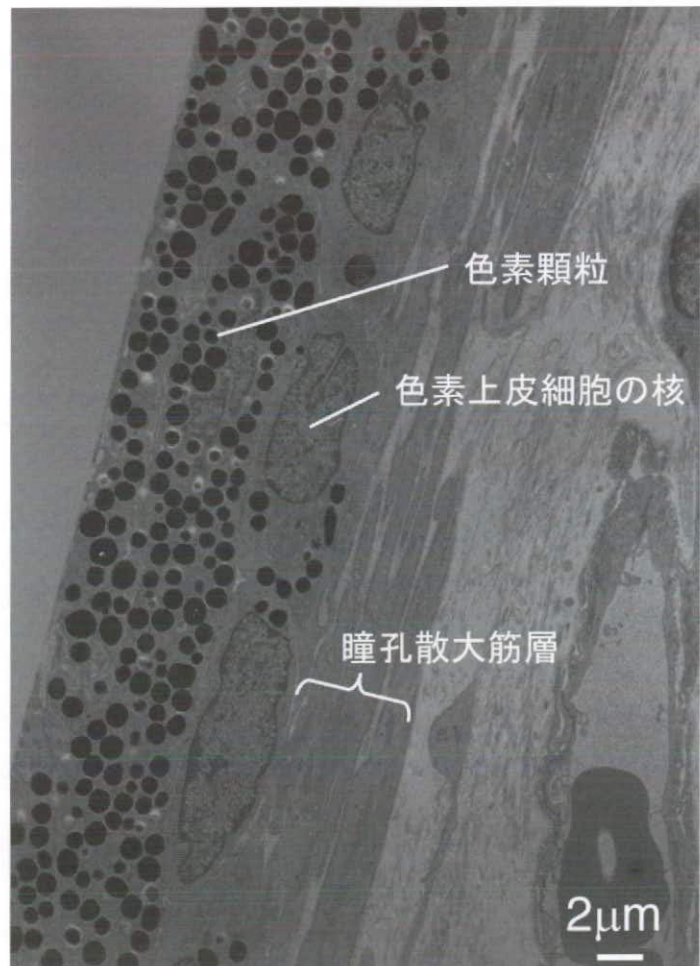
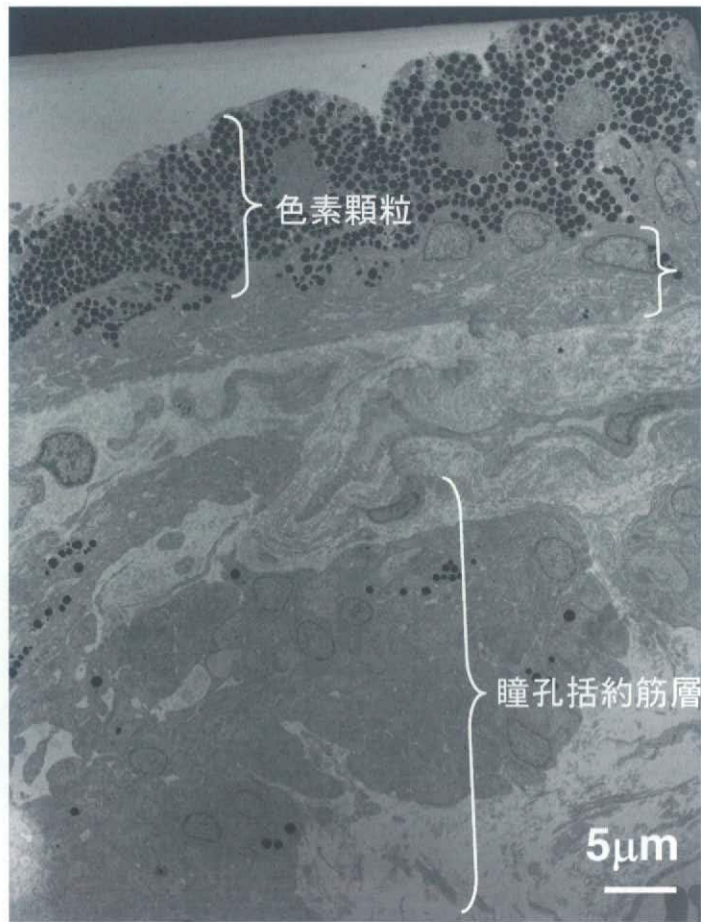


写真2



色素顆粒

瞳孔散大筋層

瞳孔括約筋層

5 μ m

写真3

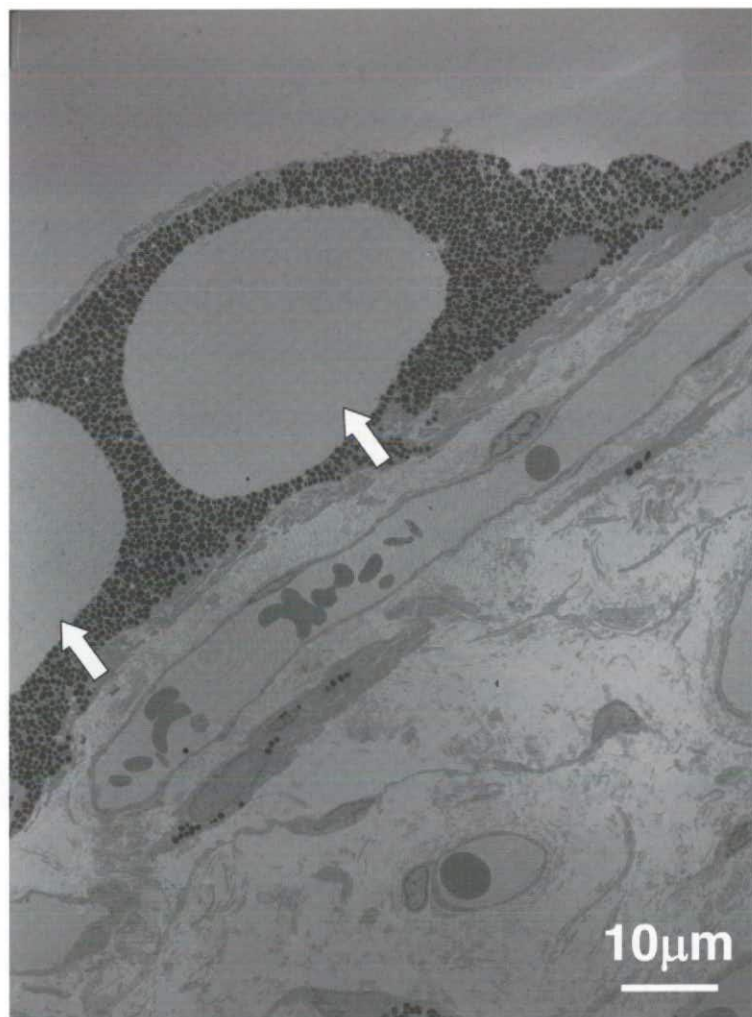


写真 4

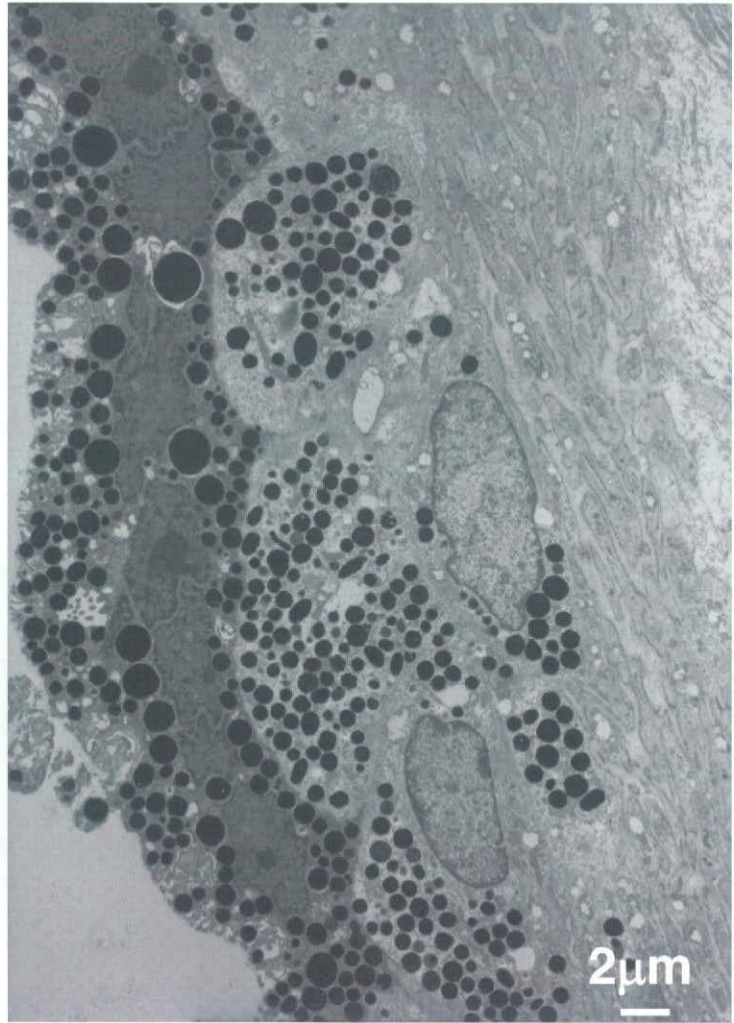
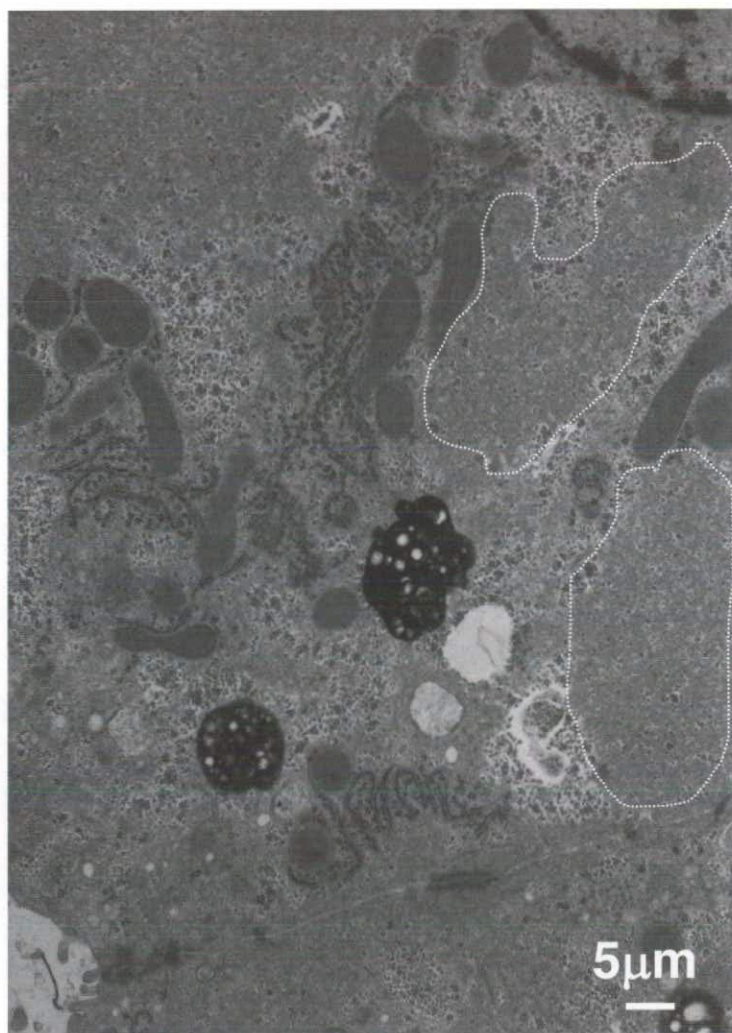


写真5



大型店舗内の空気汚染及び個人曝露調査

研究分担者	加藤貴彦	熊本大学大学院医学薬学研究部	公衆衛生・医療科学分野	教授
研究協力者	櫻田尚樹	産業医科大学保健学部		准教授
	嵐谷奎一	産業医科大学保健学部		教授
	大森久光	熊本大学大学院医学薬学研究部	公衆衛生・医療科学分野	准教授
	辻 真弓	熊本大学大学院医学薬学研究部	公衆衛生・医療科学分野	助教
	真鍋龍治	宮崎大学医学部社会医学講座	公衆衛生学分野	

研究要旨

生活環境内における建築物の建材や内装材などの材料から発生した多数の化学物質は、健康に大きな影響を与える。現在までに、大型建築物の調査報告は少ない。本年度は、大型店舗内の化学物質による室内空気汚染の実態を把握し、従業員の個人曝露レベルと健康障害との関係を明らかにした。

南九州に位置し、用途が店舗である築 2 年の大型ショッピングセンター（以下 S. C）を対象とし、平成 18 年 6 月 9 日から平成 18 年 6 月 10 日に調査を実施した。S. C は隔壁が無く、オープンなスペースに様々な売場がブロックごとに分布していた。また、VOCs 等 34 物質を測定対象とし、室内濃度を厚生労働省が標準的方法として示したパッシブサンプラー法を用いて 24 時間の平均濃度を測定した。TVOCs はアルデヒド及びアセトアルデヒドを除く VOCs 等 32 物質について検出された濃度を合計した。個人曝露濃度は室内濃度に用いたものと同種のサンプラーを従業員の襟元などに装着し、S. C 内での勤務時間中（工作中）、自宅生活中（仕事外）について化学物質を捕集した。

室内空気中から VOCs 等 31 物質が検出された。各物質は幅広い濃度を示し、最大値と最小値の濃度差が 100 倍以上のものも見られた。また測定箇所により室内空気中の汚染状況は様々であった。しかし、検出された室内の総揮発性有機化合物は、厚生労働省が定めたガイドライン値（暫定目標値（ $400\mu\text{g}/\text{m}^3$ ））よりも低かった。化学物質の濃度は売場ごとに異なり、室内は室外に比べ明らかに高値であった。

今回の調査では、大型ショッピングセンター店舗内で測定対象とした VOCs 等 34 物質に問題となる値は認められなかった。これは調査対象としたような特定建築物では、「建築物における衛生的環境確保に関する法律」により、以前から強制換気や定期環境測定が導入されており、また、化学物質の含有が少ない建材の使用等の結果として良好な環境が維持されているためと考えられた。また、QEESI の調査結果と個人曝露濃度とのあいだに明確な関連性は認められなかった。

A. 研究目的

近年、省エネに伴う建築物の高気密・高断熱化が進み、化学物質による室内空気汚染が生じている。室内空気中には、揮発性有機化合物（Volatile Organic Compounds, 以下 VOCs）、アルデヒド類、フタル酸エステル類など多数の化学物質が存在し、これらは、建材や内装材な

どの建築材料の他、家具や日用品からも発生しており、免疫力の低下、アレルギー症状など、健康に大きな影響を与えることが知られている（1, 2）。

このため、室内空気中の化学物質の存在実態や挙動について、各地で種々の調査が行われており（3-11）、厚生労働省も平成 9 年度から本

格的に全国調査を実施し、順次、室内空気中化学物質の室内濃度指針値を設定している。現在、ホルムアルデヒド等 13 物質の指針値と総揮発性有機化合物 (Total Volatile Organic Compounds, 以下 TVOCs) の暫定目標値 ($400\mu\text{g}/\text{m}^3$) が設定されている (12-15)。

このような状況のなかで我が国においても一般家庭環境の室内汚染、健康影響の調査・研究が意欲的になされてきているが (3-11)、特定建築物の報告についてはほとんどないのが実情である。なお、特定建築物とは、「建築物における衛生的環境確保に関する法律」によって、興行場、百貨店、店舗、事務所、共同住宅等の用に供される床面積が 3000m^2 以上の建築物と定義されている。これらの施設・店舗は不特定多数の人に利用され、また従業員も多いため、特定建築物の室内汚染調査は極めて重要かつ急務である。

本研究では、用途が店舗である特定建築物について化学物質濃度及び物理的因子を測定し、同時にそこで働く従業員の個人曝露濃度を調査した。調査対象項目は VOCs 32 物質、TVOCs、ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドとした。アセトアルデヒドは広義での VOCs で高揮発性有機化合物 (Very Volatile Organic Compounds, 以下 VVOCs) に分類されるが (16)、沸点、毒性、分析法の違いから区別して取り扱った。また健康影響調査として従業員に対し、QEESI (Quick Environmental Exposure AND Sensitivity Inventory) による質問票調査を行った。

B. 研究方法

1. 調査対象者および調査期間

南九州に位置し、用途が店舗である築 2 年の大型ショッピングセンター (以下 S. C) を対象とし、平成 18 年 6 月 9 日から平成 18 年 6 月 10 日に調査を実施した。S. C は隔壁が無く、オープンなスペースに様々な売場がブロックごとに分布していた。また、開店時は空調が常時稼働していたが、閉店時には空調は稼働しておらず、締め切った状態であった。S. C の概要については Table 1 に示す。

2. 研究方法

VOCs 等 34 物質を対象とし、室内濃度を厚

生労働省が標準的方法として示したパッシブサンプラー法を用いて 24 時間の平均濃度を測定した。TVOCs はアルデヒド及びアセトアルデヒドを除く、VOCs 等 32 物質について検出された濃度を合計した。個人曝露濃度は室内濃度測定に用いたものと同種のサンプラーを従業員の襟元などに装着し、S. C 内での勤務時間中 6~9 時間 (工作中)、化学物質を捕集した。勤務時間終了後は新しいサンプラーに取り換え、主として自宅生活中の 16~24 時間 (仕事外) についても同様に捕集した。

1) VOCs の捕集・分析

捕集には、高性能パッシブサンプラー VOC-SD (Supelco 社製) を用いた。捕集後、活性炭だけを小型試験管に取り出し、1 ml の二硫化炭素を加え振とうし、約 1 時間放置・抽出した。抽出液中の VOCs はガスクロマトグラフィー質量分析計 (GC-MS) で分析した (17)。なお、濃度はメーカー参考値のサンプリングプレートを用いて算出した。

2) ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドの捕集・分析

捕集には、パッシブサンプラー DSD-DNPH (Supelco 社製) を用いた。捕集後、アセトアニリル 5 ml で抽出し、高速液体クロマトグラフィーで分析した。なお、濃度はメーカー参考値のサンプリングプレートを用いて算出した。

3) 物理的因子の測定

測定項目は、温湿度 (Thermo Recorder TR-72U: T&D CORP 製)、照度 (デジタル照度計 ANA-F11: 東京光電機)、騒音 (普通騒音計 NL-04: LION)、風速 (風速計 ISA-78: 柴田科学製)、粉じん濃度 (デジタル粉じん計 LD-3 K 型: 柴田科学館製)、一酸化炭素含有率、二酸化炭素含有率 (CO_2 METER: 柴田科学製) である。室内、室外合計 13 箇所において、測定を行った。

4) QEESI 調査結果と個人曝露濃度との関連性

QEESI は、Miller らがカレンらによって提唱された Multiple Chemical Sensitivity (MCS) のスクリーニングのための調査票として開発したものである (31)。CHP の特徴に関する調査項目は、石川らが日本人向けに翻訳し

(32), さらに内山らが改良を加えたものを参考に作成した (33)。

Miller らが開発したオリジナルの QEESI は, “Chemical Exposure (化学物質曝露による反応)”, “Other exposure (その他の化学物質曝露による反応)”, “Symptoms (症状)”, “Masking Index (症状のマスキング)”, “Impact of Sensitivities (日常生活の障害の程度)” の 5 項目, 各 10 問から成っている。今回の研究では, これらの全 5 項目のうち, ① “Chemical Exposure (化学物質曝露による反応)”, ② “Other exposure (その他の化学物質曝露による反応)”, ③ “Symptoms (症状)”, ④ “Masking Index (症状のマスキング)” の 4 項目について調査を行った。調査結果は項目 ①から③について 10 問それぞれについて 0 から 10 段階で回答を依頼し, 各項目の合計を 0 から 100 のスコアとし, マスキングのみ, 「有」が 1 点, 「無」が 0 点で合計 0 から 10 のスコアとして算出した。

5) 統計解析

データの統計解析にはノンパラメトリック法 (室内外の化学物質濃度比較は Mann-Whitney の U 検定, 工作中と仕事外の個人曝露濃度比較は Wilcoxon の符号付順位検定, 化学物質濃度間の相関性は Spearman の順位相関) を用いた。なお, 各物質の定量下限値は標準試料を作製し, GC-MS で 5 回測定を行って標準偏差を求め, その 10 倍を定量下限値とした。定量下限値未満の濃度データについては, 定量下限値の 1/2 の値を代入して行った。全てが定量下限値以下の物質については集計値を N. D とした。化学物質濃度の比較には幾何平均値を用いた。また, 室内と室外濃度, 工作中と仕事外濃度の比についても幾何平均値を用いて算出した。

箱ひげ図の箱の長さは 4 分位 (最大値から最小値を引いたレンジの 1/4) で表した。

統計解析ソフトは SPSSII for windows software version 11.0 J を使用した。

C. 研究結果

1. 室内濃度と室外濃度

各物質の室内濃度ヒストグラムは, 高濃度側に長く裾を引く分布を示し, 対数正規分布とな

るため, 全てが幾何平均値を用いて比較した。化学物質濃度の最大値が定量下限値を超過する点が存在した場合でも, 超過した測定点が少ない場合は定量下限値以下の測定点に定量下限値の 1/2 の値を代入したため, 幾何平均値が定量下限値となる化学物質があった。

室内空気中から 1, 2-ジクロロプロパン, 1, 1, 1-トリクロロエタン, ジブプロクロロメタンを除く 31 物質が検出された。各物質は幅広い濃度範囲を示し, なかでもトルエン, エチルベンゼンは, 最大値から最小値まで 100 倍以上の濃度差があった。TVOCs は最大値から最小値まで約 33 倍の濃度差があり, 測定箇所により室内空気中の汚染状況は様々であった。一方, 室外空気中の各物質の濃度は低く, 検出された物質はわずか 9 物質であった。TVOCs は最大値から最小値までほぼ差はなかった。

室内外の平均濃度比 (室内濃度/室外濃度) は 1.1 ~ 9.3 の範囲であった。定量下限値未満の物質 (N. D) については, 定量下限値の 1/2 の値を用いて解析を行った。エチルベンゼン, キシレン混合物を除く芳香族炭化水素類, 含ハロゲン類は室内外の比にあまり差がみられなかったが, 脂肪族炭化水素類, テルペン類, アルコール類は室外の濃度比が高い値を示した。個別の化学物質について, アセトアルデヒド, デカン, 1-ブタノール及び 2-エチル-1-ヘキサノールは, 室内外の濃度比が 5.0 以上を示した。TVOCs の比は 2.0 であり, 室内の方が室外より VOCs 濃度が高い値を示す物質が多かった。また, 測定した 34 物質のうち, 室内濃度指針値の設定されている物質中, ホルムアルデヒド, アセトアルデヒド, エチルベンゼン, キシレン混合物の 4 化学物質を含む 13 物質及び TVOCs で, 室内が有意に高かった。

2. 工作中と仕事外の個人曝露濃度の比較

工作中ではトルエン, 酢酸エチル, 仕事外ではトルエン, デカン及びパラジクロロベンゼンが 100 倍以上の濃度差があった。TVOCs については最大値から最小値まで工作中が約 20 倍, 仕事外が約 26 倍の濃度差があった。

工作中と仕事外の平均濃度比 (工作中/仕事外) は 0.2 ~ 8.1 の範囲であった。含ハロゲン類は工作中と仕事外, いずれにおいても検出濃

度は非常に低い値であり、平均濃度比にほとんど差が見られなかった。個別の化学物質では、2-エチル-1-ヘキサノール、酢酸ブチルが、仕事中／仕事外の平均濃度比が5.0以上を示した。一方、ホルムアルデヒド、ベンゼン、オクタン、ノナンは、仕事中／仕事外の比が1.0以下であった。特に、ベンゼン、ノナンは仕事中／仕事外の比が0.5以下であり、仕事外の曝露濃度、すなわち自宅生活中での曝露の方が高かった。TVOCsの比は1.7で、仕事中の方が仕事外よりVOCs曝露濃度がやや高い傾向を示し、測定した34物質のうち23物質及びTVOCsで有意な差が認められた。なお、仕事中の個人曝露濃度の差と室内のTVOCsは幾何平均値で大きな差は認められなかった。

3. 各売場、個人及び室外における化学物質組成

化学物質組成の相違を比較検討するため、物質ごとに幾何平均値を算出し合計した値について、各売場、個人および室外における比較をFig. 1に示す。TVOCsは、食料品売場が $200\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上で他の箇所と比べ、約2倍高い値であった。店舗全体では暫定目標値($400\mu\text{g}/\text{m}^3$)を超える箇所はなかったが、室外と比較し、いずれの箇所も約2～4倍高い傾向を示した。また、同じフロア内であっても、売場(地点)により化学物質組成が異なっていた。個別の化学物質について見ると、キシレン混合物、エチルベンゼン、その他合計(特にウンデカン、リモネン)で、食料品売場が衣料品売場と比べて高い濃度傾向にあった。室内濃度指針値が設定されている化学物質のうち、今回測定対象としたホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、トルエン、キシレン混合物、パラジクロロベンゼン、エチルベンゼン、スチレンは、いずれの箇所も平均値は室内環境指針値を大きく下回っていた。

個人曝露濃度についても個人によって化学物質組成に違いがあり、仕事中、仕事外、ともに室外と比べTVOCsで約3倍高い値であった。個別の化学物質では、ホルムアルデヒド濃度が仕事中、仕事外ともに高い傾向で、トルエン、2-エチル-1-ヘキサノールは仕事中が仕事外に比べ明らかに高い値を示した。なお、室内濃度指針値が設定されている物質については、平

均値は全て室内環境指針値を下回っていた。

4. 物理的因子

店舗内の温湿度、照度、騒音、風速は、それぞれ $23.0 \sim 26.3\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $43 \sim 63\%$ 、 $207 \sim 1890\text{lux}$ 、 $61.2 \sim 76.4\text{dB}$ 、 $0.1 \sim 0.3\text{m/s}$ で建築物環境衛生管理基準を超える値はなく、物理的環境は良好に維持されていた。また、粉じん濃度、一酸化炭素含有率、二酸化炭素含有率もそれぞれ、 $0.002 \sim 0.062\text{mg}/\text{m}^3$ 、 $0.03 \sim 0.4\text{ppm}$ 、 $400 \sim 550\text{ppm}$ で建築物環境衛生管理基準を超える値はなかった。

5. 各特定建築物の室内化学物質濃度との比較

本調査対象建物以外の特定建築物に関して、業種が明らかに異なる書店(築年数; 40年, 建物構造; 鉄筋コンクリート造), 大学(築年数; 40年, 建物構造; 鉄筋コンクリート造), 博物館(築年数; 3年, 建物構造; 鉄筋造)について、平成17年度に同種のパッシブサンプラーを用いて同様の調査を行っており、建築物の特徴を検討するために今回得られた結果と比較検討した。

TVOCsの結果についてFig. 2に示す。S. CのTVOCs濃度は書店と比べ有意($p < 0.01$)に低く、博物館とはほぼ同じレベルであった。なお、大学と比べると有意($p < 0.05$)に高かった。

また、S. Cのホルムアルデヒド濃度は他の3箇所と比べ、いずれも有意に高かった(Fig. 3)。

6. 個人曝露濃度と健康障害の関連性

従業員116名に対し、QEESIによる質問票調査を行った。Millerらの設定した3項目のうち、症状 ≥ 40 、化学物質による反応 ≥ 40 、マスク ≥ 4 への「Very suggestive 該当者」は4名(3.5%)であった。これら4名と症状 < 40 、化学物質による反応 < 40 の「Not suggestive 該当者」82名について個人曝露濃度を比較検討した(Table 2)。その結果、全化学物質濃度に大きな差は認められなかった。ただ、個人生活中で高濃度の化学物質に曝露されている者がいた。

D. 考察

室内化学物質汚染は人の健康影響の観点から重要な問題である。特定建築物の中でもS. Cは室内人員が多く、多様な商品からの化学物質

発散も考えられるため、その現状把握が急務である。今回、S. C の化学物質汚染状態を把握するため室内の化学物質濃度を調査した。

測定対象とした VOCs 等 34 物質で室内濃度指針値との比較などから、問題となる値は認められなかった。しかし、室内の化学物質濃度の多くは室外と比べ高く、13 物質で有意な差が認められ、発生源が店舗内にあることが示唆された。居住空間内には多種多様な化学物質が存在し、その室内外比は室内濃度が高いことが報告されており (17, 18)、本調査でも同様の結果が得られた。測定した化学物質の中でも最も特徴的なのは 2-エチル-1-ヘキサノールで室内外比 9.3 と室内が特に高濃度であった。2-エチル-1-ヘキサノールは室内空気質の悪化に関与する VOCs と示唆されており (19)、カーペット、コンピューター、塩化ビニル製品を放散源とする室内空気汚染物質として認識され (20-22)、喘息症状や鼻・眼の症状との関連が指摘されている (23, 24)。上島らの報告によれば、床からの放散量が多かった部屋では、床材がコンクリート下地に接していたが、放散量が少なかった部屋では接していなかった (25)。S. C は壁、床材としてビニルタイルやタイルカーペットがコンクリートに直押しであり、これにより 2-エチル-1-ヘキサノールが高濃度を示したと考えられる。

また、同じフロア内であっても、売場 (地点) により化学物質組成が異なっていた (Fig. 1)。S. C 内には隔壁が無いため、商品などの内容物が無ければ、換気状況により多少の濃度差があっても、各地点の化学物質組成割合はほぼ同じになると推定されるが、店舗の場合は、売場により異なる多様な商品から化学物質が発散されるために、組成割合が異なっているものと考えられる (26)。食料品売場でキシレン混合物、エチルベンゼン、その他合計が高い濃度傾向を示したのは、食料品売場が日用品売場に隣接しており、芳香剤等から芳香族炭化水素系やテルペン系の化学物質が発生したと考えられる。一方、電化製品・衣料品売場・ゲームコーナー等でホルムアルデヒド、トルエンが高い濃度傾向を示したのは、電化製品やゲーム機器、衣類に使用される繊維加工剤等が原因である可能性がある (8)。化学物質濃度間の相関は芳香族炭化

水素類や脂肪族炭化水素類などグループ間で相関が見られる物質が多く、同系統の発生源の存在が示唆された。建材や多様な商品に使用された接着剤や塗装の主成分が芳香族炭化水素類や脂肪族炭化水素類であり、これが主な同系統の発生源となっているものと思われる (27)。

また、ホルムアルデヒドについては他の指針値の設定された物質と相関が見られなかった。ホルムアルデヒドは他の VOCs に比べ濃度測定が多い物質であるが、今回の結果によれば、ホルムアルデヒドの濃度測定値から他の指針値の設定された VOCs の存在を推測することは難しく、他の VOCs についても、必要に応じて測定することが望ましいと考えられる (26)。

これまでにデータが得られた書店、大学、博物館と S. C 内の TVOCs、ホルムアルデヒド濃度を比較すると、TVOCs は大学に比べ低かったが、ホルムアルデヒド濃度は他の 3 箇所と比べ有意に高かった (Fig. 2, 3)。これは S. C の築年数が 2 年と他の建築物に比べ新しく、建材からの発散が原因である可能性が考えられる。

本調査では 24 時間の平均濃度を測定したため、空調が稼働しておらず、締め切った状態である夜間閉店時は化学物質濃度が平均濃度よりも高いと考えられ、逆に開店時の化学物質濃度は平均よりも低い可能性がある。また、一般家屋等では化学物質発生量の季節変動も考慮すべきであるが (7)、店舗の場合は空調設備により、ほぼ一定の室内環境が維持されていると考えられる。また、陳列する商品の種類や場所に配慮した換気設計を行うことが望ましい (26)。

個人曝露濃度については店舗と同じく、測定対象とした VOCs 等 34 物質で問題となる値は認められなかった。仕事中和仕事外の化学物質組成で違いが見られたのは、店舗内と一般住宅の内容物の違いにより、異なる発生源から曝露されたためと示唆された。また、仕事中の個人曝露濃度は店舗内濃度と比べ、若干高い値を示した物質としては、マニキュアなどの溶剤に幅広く含まれる酢酸エチル、酢酸ブチル (28)、あるいは防虫剤として利用されるパラジクロロベンゼン (29) などがあり、化粧品や着ていた衣類等が原因であると思われる。

TVOCs は仕事中和仕事外の比が 1.7 であり、

仕事の方が仕事外より VOCs 曝露濃度がやや高い傾向を示した。物質別に見ると、2-エチル-1-ヘキサノール濃度の比が7.1と室内外比と同じく高く、店舗内の壁、床材からの曝露濃度が高い傾向にあり、店舗内業務以外の個人生活において曝露されていることが示唆された (Fig. 1)。一般住宅では化学物質を発生する家具や芳香剤等が多数存在し、また、法律で建材が規制される以前に建てられた住宅において、積極的低減対策が行われていないことが多いと考えられ、換気を定期的に行うことが必要であると思われる (3, 30)。

E. 結論

今回の調査では、大型ショッピングセンター店舗内で測定対象とした VOCs 等 34 物質、物理的因子ともに問題となる値は認められなかった。これは特定建築物においては、「建築物における衛生的環境確保に関する法律」により、以前から強制換気や定期環境測定が導入されており、また、化学物質の含有が少ない建材の使用等の結果として良好な環境が維持されているためと考えられた。

F. 研究発表

1. 論文発表

真鍋龍治, 櫻田尚樹, 加藤貴彦 et al.
大型店舗内の空気汚染及び個人曝露調査.
日本衛生学雑誌 63, 20-28 (2008)

2. 学会発表

- 1) 熊本, 第 78 回日本衛生学会, 加藤貴彦, 辻真弓: 環境中微量化学物質の健康影響に関する分子疫学研究
- 2) 北海道, 第 81 回日本産業衛生学会, 加藤貴彦, 辻真弓, 大森久光: 環境中微量化学物質の健康影響に関する分子疫学研究

参考文献

- 1) Tanigawa T, Araki S, Nakata A, Yokoyama K, Sasaki T, Sakurai S. Decreases of natural killer cell and T-lymphocyte subpopulations and increases of B-lymphocytes following a 5-day occupational exposure to mixed organic solvents. Arch Environ Health. 2001; 56: 443-448.
- 2) Handzel Z. Effects of environmental pollutants on airways, allergic inflammation, and the immune response. Rev Environ Health. 2000; 15: 325-326.
- 3) 北村裕一, 大谷雅弘, 岡田真人, 大村正美, 門名嘉則. 空調設備を利用した室内空气中化学物質の低減に関する実態調査. 室内環境学会誌 2005; 8: 41-46.
- 4) 山崎雪恵, 王 炳玲, 汪 達紘, 瀧川智子. 室内環境汚染物質及び生活背景と自覚症状との関連. 室内環境学会誌 2006; 9: 25-36.
- 5) 大塚健次, 松村年郎, 濱田実香. 居住環境内における化学物質汚染の実態調査. 室内環境学会誌 2002; 5: 23-35.
- 6) 吉田俊明, 松永一朗, 織田 肇, 三宅吉博, 佐々木敏, 大矢幸弘, 宮本正一, 廣田良夫. 大阪府内の住宅における実生活環境下での化学物質 (HCHO, NO₂, VOC, SVOC) による室内空気汚染. 室内環境学会誌 2007; 9: 83-95.
- 7) 吉田俊明, 安藤 剛, 松永一朗. 住居内空气中ホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物濃度の季節変化. 大阪府立公衛研所報 2001; 39: 31-48.
- 8) 瀬戸 博, 齋藤育江. 化学物質による室内空気汚染の実態とその健康影響. 東京衛研年報 2002; 53: 179-190.
- 9) 大貫 文, 齋藤育江, 瀬戸 博, 上原真一, 鈴木孝人. 室内空气中化学物質の実態調査 (ホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物) —平成 12 年度—. 東京衛研年報 2002; 53: 199-205.
- 10) 大貫 文, 齋藤育江, 瀬戸 博, 上原真一, 加納いつ. 室内空气中化学物質の実態調査 (ホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物) —平成 13 年度—. 東京健安研年報 2003; 54: 262-268.
- 11) 南 珠恵, 松本 浩, 近藤文雄, 山田靖治, 松村年郎, 安藤正典, 宮崎 豊. 新築住宅における室内空気汚染物質の濃度の経時的変化について. 日本公衛誌 2002; 49: 211-221.
- 12) 厚生省生活衛生局長. 室内空气中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法について (通知), 生衛発 1093 号 2000.
- 13) 厚生省生活衛生局長. 室内空气中化学物質

- の室内濃度指針値及び揮発性有機化合物の室内濃度暫定目標値等について (通知), 生衛発 1825 号 2000.
- 14) 厚生労働省医薬局長. 室内空气中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法について (通知), 医薬発 828 号 2001.
 - 15) 厚生労働省医薬局長. 室内空气中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法について (通知), 生衛発 1093 号 2000.
 - 16) World Health Organization (WHO). Indoor air quality, organic pollutants. Report on a WHO meeting, August 23-27, 1987, Berlin. EURO reports and studies, vol.111, WHO regional office for Europe, Copenhagen, Denmark, 1989.
 - 17) Yamaguchi T, Nakajima D, Ezoe Y, Fujimaki H, Shimada Y, Kozawa K, Arashidani K, Goto S. Measurement of volatile organic compounds (VOCs) in new residential buildings and VOCs behavior over time. *J UOEH*. 2006; 28: 13-27.
 - 18) Philips M, Esmen N, Hall T, Lynch R. Determinants of exposure to volatile organic compounds in four Oklahoma cities. *J Expo Anal Environ Epidemiol*. 2005; 15: 35-46.
 - 19) Nalli S, Horn O, Grochowalski A, Cooper D, Nicell J. Origin of 2-ethylhexanol as a VOC. *Environ Pollut*. 2006; 140: 181-185.
 - 20) Hodgson A, Wooley J, Daisey J. Emission of volatile organic compounds from new carpets measured in a large-scale environmental chamber. *J Air Waste Manage*. 1993; 43: 316-324.
 - 21) Bako-Biro Z, Wargochi P, Weschler C, Fanger P. Effects of pollution from personal computers on perceived air quality, SBS symptoms and productivity in office. *Indoor Air*. 2004; 14: 178-187.
 - 22) Reiser R, Meile A, Hofer C, Knutti R. Indoor air pollution by volatile organic compounds (VOC) emitted from flooring material in a technical university in Switzerland. In: *Indoor Air*. 2002, Proceedings of The Ninth International Conference on Indoor Air Quality and Climate. Monterey CA, 2002: 1004-1009.
 - 23) Norback D, Wieslander G, Nordstrom K, Walinder R. Asthma symptoms in relation to measured building dampness in upper concrete floor construction, and 2-ethyl-1-hexanol in indoor air. *Int J Tuberc Lung Dis*. 2000; 4: 1016-1025.
 - 24) Wieslander G, Norback D, Nordstrom K, Walinder R, Venge P. Nasal and ocular symptoms, tear film stability and biomarkers in nasal lavage, in relation to building-dampness and building design in hospitals. *Int Arch Occup Environ Health*. 1999; 72: 451-461.
 - 25) 上島道浩, 柴田英治, 酒井 潔, 大野浩之, 石原伸哉, 山田哲也, 竹内康浩, 奈須民江. 2-エチル-1-ヘキサノールによる室内空気汚染. *日本公衛誌* 2005; 52: 1021-1031.
 - 26) 田中聡子, 堀江善一, 岡本法義, 森 弥生, 長谷川里史, 木下和俊, 酒井 潔. 特定建築物におけるホルムアルデヒド・VOC 気中濃度の実態調査—店舗の場合—. *生活と環境* 2005; 50: 111-114.
 - 27) Fortmann R, Roache N, Chang JC, Guo Z. Characterization of emissions of Volatile organic compounds from interior alkyd paint. *J Air Waste Manag Assoc*. 1998; 48: 931-940.
 - 28) Labreche F, Forest J, Trottier M, Lalonde M, Simard R. Characterization of chemical exposure in hairdressing salons. *Appl Occup Environ Hyg*. 2003; 18: 1014-1021.
 - 29) Tanaka-Kagawa T, Uchiyama S, Matsushima E, Sasaki A, Kobayashi H, Kobayashi H, Yagi M, Tsuno M, Arao M, Ikemoto K, Yamasaki M, Nakashima A, Shimizu Y, Otsubo Y, Ando M, Jinno H, Tokunaga H. Survey of volatile organic compounds found in indoor and outdoor air samples from Japan. *Bull Natl Inst Health Sci*. 2005; 123: 27-31.
 - 30) 竹熊美貴子, 大村厚子, 齊藤貢一. 学校施設における室内空气中化学物質濃度の低減化対策—換気の効果—. *室内環境学会誌* 2005; 8: 35-39.

Table1

築年数	2年	
建物構造	鉄骨造地上2階建て一部塔屋	
従業員	約600人	
客数	約14000人(週末ピーク時)	
換気	実測0.6回/h	
	1F	2F
床面積	15551 m ²	13080 m ²
壁の材質	Ep-G, VE, ビニルクロス, 磁気質タイル, 吹付塗装	ビニルクロス, GBR 素地
床の材質	ビニルタイル, タイルカーペット, 塗床	ビニルタイル, タイルカーペット, コンクリート直押

Fig.1 各売場, 個人及び室内における化学物質組成

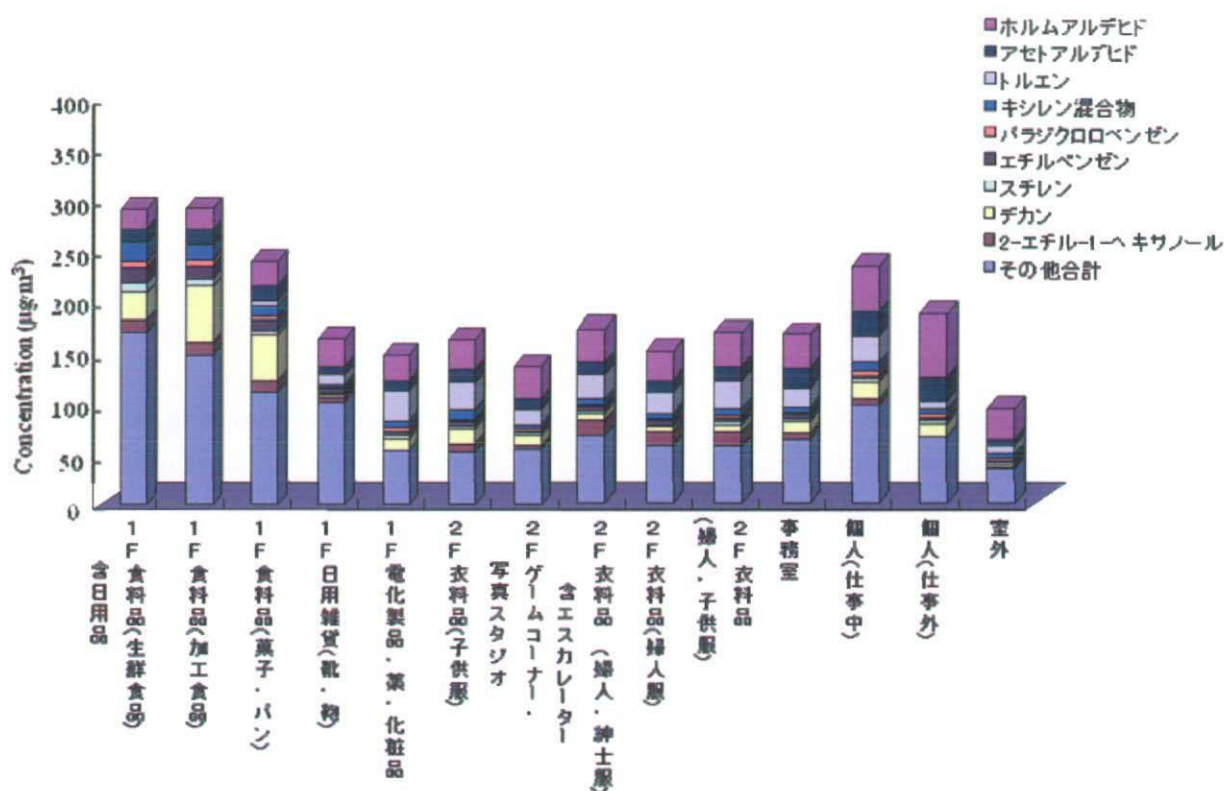


Fig.2 各特定建築物とのTVOCs濃度比較

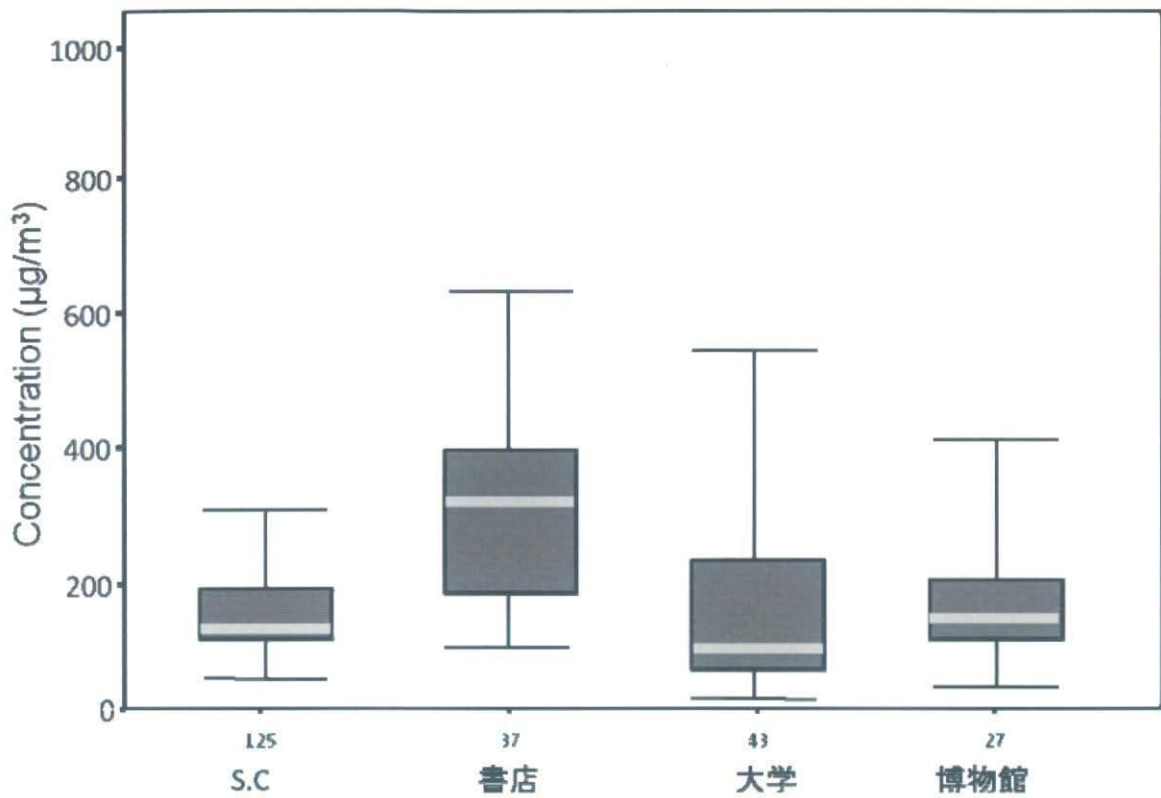


Fig.3 各特定建築物とのホルムアルデヒド濃度比較

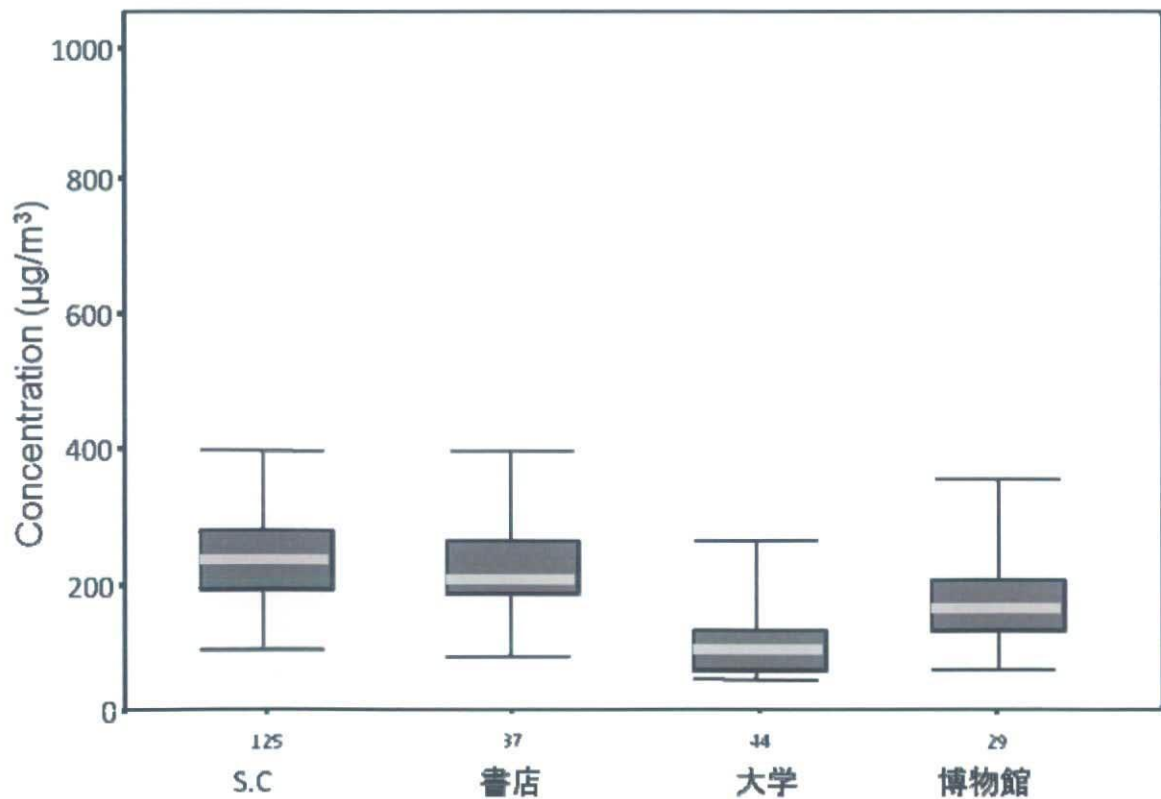


Table2 Miller と Pihoda の基準による分類結果

分類	分類基準点数			人数	割合
	症状	化学物質による反応	マスクング		
Very suggestive	≥ 40	≥ 40	≥ 4	4	3.5%
Very suggestive	≥ 40	≥ 40	< 4	0	0.0%
Somewhat suggestive	≥ 40	< 40	≥ 4	5	4.3%
Not suggestive	≥ 40	< 40	< 4	0	0.0%
problematic	< 40	≥ 40	≥ 4	9	7.8%
problematic	< 40	≥ 40	< 4	4	3.5%
Not suggestive	< 40	< 40	≥ 4	73	62.9%
Not suggestive	< 40	< 40	< 4	21	18.1%
				116	100.0%