

厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）
分担研究報告書

表1 平成16年度の対象者属性とSHS分類 (n = 868)

	n	%
Sex		
Male	416	47.9
Female	452	52.1
Age		
< 20	288	33.2
20 – 39	228	26.3
40 – 59	246	28.3
≥ 60	106	12.2
Current smoker	94	10.8
Environmental tobacco smoking	240	27.6
Alcohol habit (once per week and more)	280	32.3
Time spent at home (20 h per day and more)	147	16.9
Mental stress level (high)	230	26.5
Allergic disease	118	13.6
Pets in the house	239	27.5
Dew condensation	583	67.2
Mold growth	639	73.6
Use of moth repellent	542	62.4
Use of air freshener	432	49.8
SHS categories		
Newly diseased	57	6.6
Ongoing	43	5.0
Recovered	75	8.6
Symptom-free	693	79.8

SHS = sick house syndrome.

表2 居間の気中化学物質濃度 (n= 260)

Compounds	2004			2005			<i>p</i> ^a
	25%	Median	75%	25%	Median	75%	
Formaldehyde	27.4	39.2	56.5	21.3	31.5	50.3	<0.001
Acetaldehyde	13.6	20.8	33.4	7.6	15.7	24.2	<0.001
Acetone	21.6	32.1	52.0	13.0	22.9	34.2	<0.001
Acrolein	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.176
Propionaldehyde	4.2	7.7	13.8	0.5	0.5	0.5	<0.001
Crotonaldehyde	0.5	3.5	9.2	0.5	1.6	3.1	<0.001
n-Butyraldehyde	0.5	2.2	5.9	0.5	0.5	0.5	<0.001
Benzaldehyde	0.5	3.7	10.4	0.5	0.5	0.5	<0.001
iso-Valeraldehyde	0.5	2.8	8.7	0.5	0.5	0.5	<0.001
Valeraldehyde	0.6	3.7	8.9	0.5	0.5	0.5	<0.001
Tolualdehyde	1.0	1.0	3.4	1.0	1.0	1.0	0.005
Hexaldehyde	4.8	9.5	19.6	0.5	0.5	3.3	<0.001
2,5-Dimethylaldehyde	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	<0.001
n-Hexane	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	2.1	<0.001
2,4-Dimethylpentane	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.001
n-Heptane	0.5	0.5	2.5	0.5	1.2	2.3	0.493
n-Octane	0.5	0.5	2.9	0.5	1.3	3.1	0.078
n-Nonane	0.5	0.5	5.1	0.5	1.5	5.4	0.003
n-Decane	0.5	0.5	3.6	1.4	5.1	15.6	<0.001
n-Undecane	0.5	0.5	2.1	1.9	4.3	12.4	<0.001
Benzene	0.5	1.1	2.3	1.1	1.6	2.3	0.020
Toluene	8.0	11.8	20.8	7.6	10.9	18.0	0.003
Ethylbenzene	1.5	2.7	4.6	1.9	3.3	5.7	0.003
Xylene	2.9	5.8	11.7	2.8	5.7	10.9	0.623
Styrene	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	2.0	<0.001
Trimethylbenzene	1.5	2.6	6.0	2.3	3.6	8.4	<0.001
α-Pinene	2.5	7.4	27.3	2.6	8.2	19.9	0.039
Limonene	3.8	8.7	18.6	3.7	9.3	19.5	0.490
Chloroform	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.5	<0.001
1,2-Dichloroethane	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.013
1,1,1-Trichloroethane	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.286
Carbontetrachloride	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.345
1,2-Dichloropropane	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.317
Chlorodibromomethane	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.2	<0.001
Trichloroethylene	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.123
Tetrachloroethylene	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.147
p-Dichlorobenzene	0.5	1.7	14.9	1.0	3.2	13.8	0.071
Ethyl acetate	0.5	0.5	5.3	3.1	5.7	13.9	<0.001
Butyl acetate	1.1	2.6	5.3	1.5	2.9	5.3	0.208
2-Butanone	0.5	0.5	1.3	1.2	2.1	3.8	<0.001
2-Pentanone	0.5	0.5	1.3	0.5	0.5	1.6	0.026
n-Butanol	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.042
TVOC	66.8	103.0	197.0	72.7	132.8	219.8	0.001

Units: $\mu\text{g}/\text{m}^3$; TVOC = total volatile organic compounds. ^aWilcoxon test

厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）
分担研究報告書

表3 「新規・持続群」と「改善・無症状群」における居間の気中化学物質濃度の変化量^a (n = 868)

	Newly diseased or Ongoing			Recovered or Symptom-free			<i>p</i> ^b
	25%	Median	75%	25%	Median	75%	
Formaldehyde	-22.5	-5.6	9.7	-18.0	-6.5	7.3	0.938
Acetaldehyde	-17.7	-4.9	7.5	-15.0	-6.5	2.8	0.786
Acetone	-36.1	-5.5	5.6	-26.2	-11.5	2.2	0.694
Acrolein	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.847
Propionaldehyde	-12.7	-6.4	-3.1	-13.4	-6.8	-3.7	0.401
Crotonaldehyde	-7.7	-2.0	1.9	-7.1	0.0	1.4	0.559
n-Butyraldehyde	-6.3	-2.8	-0.6	-5.4	-1.6	0.0	0.057
Benzaldehyde	-11.6	-4.6	-0.6	-10.0	-3.1	0.0	0.364
iso-Valeraldehyde	-9.3	-2.4	0.0	-8.1	-0.9	0.0	0.272
Valeraldehyde	-8.3	-4.3	-0.9	-8.9	-2.9	0.0	0.504
Tolualdehyde	-2.3	0.0	0.0	-1.9	0.0	0.0	0.085
Hexaldehyde	-22.3	-8.7	-3.0	-17.5	-7.7	-3.3	0.142
2,5-Dimethylaldehyde	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.965
n-Hexane	0.0	0.0	1.5	0.0	0.0	1.2	0.930
2,4-Dimethylpentane	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.712
n-Heptane	-0.6	0.0	1.2	-0.7	0.0	0.9	0.350
n-Octane	-1.4	0.0	1.2	0.0	0.0	1.0	0.321
n-Nonane	0.0	0.0	2.3	0.0	0.0	1.5	0.276
n-Decane	0.1	3.9	14.4	0.0	2.9	10.0	0.041
n-Undecane	1.0	7.9	12.7	0.0	2.2	10.0	0.003
Benzene	-1.6	0.2	1.3	-0.8	0.4	1.2	0.295
Toluene	-9.3	-2.2	3.1	-7.6	-1.5	3.5	0.373
Ethylbenzene	-2.1	-0.2	1.9	-1.0	0.6	2.0	0.036
Xylene	-4.3	-1.4	2.1	-2.8	-0.2	2.8	0.048
Styrene	0.0	0.0	3.6	0.0	0.0	1.1	0.000
Trimethylbenzene	0.0	1.6	5.4	-0.1	0.8	2.8	0.043
α-Pinene	-8.9	-0.5	4.2	-7.5	-0.2	2.3	0.924
Limonene	-9.8	-0.4	5.0	-6.1	0.4	8.3	0.032
Chloroform	0.0	0.6	1.2	0.0	0.0	0.9	0.037
1,2-Dichloroethane	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.192
1,1,1-Trichloroethane	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.362
Carbontetrachloride	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.411
1,2-Dichloropropane	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.236
Chlorodibromomethane	0.0	0.0	1.0	0.0	0.0	0.0	0.000
Trichloroethylene	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.711
Tetrachloroethylene	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.383
p-Dichlorobenzene	-1.4	0.1	1.6	-1.2	0.0	2.7	0.690
Ethyl acetate	0.0	4.2	10.3	0.0	3.9	9.5	0.078
Butyl acetate	-2.8	-0.1	1.9	-1.4	0.3	1.6	0.031
2-Butanone	0.0	1.2	2.8	0.0	1.1	2.6	0.121
2-Pentanone	-0.5	0.0	0.1	0.0	0.0	0.4	0.122
n-Butanol	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.925
TVOC	-38.0	6.0	104.3	-26.5	20.1	78.5	0.519

Units: $\mu\text{g}/\text{m}^3$; TVOC = total volatile organic compounds. ^aChanges were determined by subtracting the concentrations in 2004 from those in 2005. ^bMann-Whitney test.

表4 単変量解析による「新規・持続群」における化学物質によるリスク

	OR (95%CI)	<i>p</i>
Formaldehyde	1.17 (0.76-1.80)	0.482
Acetaldehyde	1.55 (1.02-2.37)	0.040
Acetone	1.19 (0.77-1.85)	0.439
Acrolein	1.10 (0.32-3.76)	0.879
Propionaldehyde	3.87 (0.35-43.06)	0.236
Crotonaldehyde	0.85 (0.54-1.33)	0.471
n-Butyraldehyde	0.96 (0.28-3.24)	0.946
Benzaldehyde	0.54 (0.07-4.18)	0.553
iso-Valeraldehyde	1.22 (0.35-4.20)	0.753
Valeraldehyde	0.96 (0.12-7.75)	0.969
Tolualdehyde	0.85 (0.45-1.61)	0.621
Hexaldehyde	0.71 (0.28-1.82)	0.474
2,5-Dimethylaldehyde	constant	
n-Hexane	0.73 (0.48-1.13)	0.161
2,4-Dimethylpentane	1.28 (0.15-10.77)	0.818
n-Heptane	1.18 (0.77-1.81)	0.442
n-Octane	1.08 (0.70-1.66)	0.725
n-Nonane	1.50 (0.99-2.29)	0.054
n-Decane	1.50 (0.93-2.42)	0.094
n-Undecane	1.49 (0.88-2.52)	0.134
Benzene	0.97 (0.64-1.47)	0.877
Toluene	0.86 (0.56-1.32)	0.490
Ethylbenzene	0.59 (0.39-0.89)	0.012
Xylene	0.68 (0.44-1.04)	0.077
Styrene	2.41 (1.58-3.67)	<0.001
Trimethylbenzene	1.13 (0.72-1.77)	0.608
α-Pinene	1.07 (0.70-1.62)	0.762
Limonene	0.72 (0.47-1.09)	0.120
Chloroform	1.69 (1.11-2.57)	0.013
1,2-Dichloroethane	not calculated for small number	
1,1,1-Trichloroethane	1.45 (0.42-5.08)	0.556
Carbon tetrachloride	1.28 (0.15-10.77)	0.818
1,2-Dichloropropane	constant	
Chlorodibromomethane	2.39 (1.55-3.69)	<0.001
Trichloroethylene	0.70 (0.09-5.44)	0.728
Tetrachloroethylene	1.60 (0.78-3.26)	0.196
<i>p</i> -Dichlorobenzene	1.02 (0.67-1.55)	0.922
Ethylacetate	1.43 (0.90-2.26)	0.129
Buthylacetate	0.60 (0.39-0.91)	0.017
2-Butanone	1.15 (0.73-1.80)	0.555
2-Pentanone	0.88 (0.55-1.41)	0.581
n-Butanol	0.68 (0.39-1.18)	0.168
TVOC	0.71 (0.47-1.08)	0.106

OR = odds ratio; CI = confidence interval; TVOC = total volatile organic compounds.

表 5 多変量解析による「新規・持続群」における化学物質による調整リスク

	OR (95%CI)	<i>p</i>
Acetaldehyde	2.64 (1.47-4.76)	0.001
Acetone	1.65 (0.92-2.96)	0.095
Propionaldehyde	19.98 (1.39-286.16)	0.027
Ethylbenzene	0.41 (0.24-0.70)	0.001
Styrene	2.60 (1.08-6.26)	0.032
<i>p</i> -Dichlorobenzene	1.60 (0.97-2.63)	0.066
Buthylacetate	0.52 (0.31-0.89)	0.017
<i>n</i> -Butanol	0.35 (0.17-0.71)	0.004

OR = odds ratio; CI = confidence interval.

Adjusted for area code, sex, age, tobacco smoking, time spent at home, alcohol drinking, mental stress, condensation, fungi reported, pet, and passive smoking, allergic diseases, use of moth repellent and use of air freshener.

ハウスダスト中の有機リン酸トリエステル類濃度はシックハウス症候群の原因になるか — 全国調査研究から —

研究代表者 岸 玲子 北海道大学大学院医学研究科予防医学講座公衆衛生学分野 教授

研究要旨

難燃剤として用いられる有機リン酸トリエステル類と健康影響との関連についての調査研究は、ほとんど報告がなされておらず、本研究班の金澤らによる報告以外ではわずかにしか見受けられない。今回は全国調査における有機リン酸トリエステル類濃度とシックハウス症候群の関連について研究を行った。

全国6地区で、182軒の一般戸建住宅および、その全居住者624人を対象とし、平成18年10月から平成19年1月の間に質問紙調査および住宅環境測定を実施した。有機リン酸トリエステル類で濃度が特に高いものは、リン酸トリスブトキシエチル(床ダスト中濃度、検出率:496 μ g/g、100%、棚ダスト中:119 μ g/g、100%)、リン酸トリス(2-クロロイソプロピル)(床ダスト中:8.30 μ g/g、97.6%、棚ダスト中:24.1 μ g/g、100%)であった。

測定した各有機リン酸トリエステル類濃度を人数が均等になるよう4段階(最低濃度、低濃度、中濃度、高濃度)に区切り、最低濃度をリファレンスとした。床上ダストでは、リン酸トリス(2-エチルヘキシル)の最低濃度群である「<LOD」群に対し、中濃度群である「2.15-4.38」群(OR=3.35、95%CI:1.14-9.83)、棚上ダストでは、リン酸トリス(2-クロロイソプロピル)の最低濃度群である「<9.76」群に対し、低濃度群である「9.77-22.1」群(OR=4.36、95%CI:1.17-16.2)、中濃度群である「22.2-55.0」群(OR=4.23、95%CI:1.14-15.7)、リン酸トリス(2-クロロエチル)の最低濃度群である「<4.11」群に対し、中濃度群である「8.01-17.2」群(OR=18.2、95%CI:2.37-131)、高濃度群である「17.3<」群(OR=9.52、95%CI:1.18-77.0)において有意なリスクの上昇が示された。

本研究の結果から有機リン酸トリエステル類は長期的低濃度曝露が生じている可能性があり、一部の化合物で健康への影響が考えられることから、更なる研究の必要性が示された。

【研究分担者】

斎藤 育江 東京都健康安全研究センター
田中 正敏 福島学院大学福祉学部
吉村 健清 福岡県保健環境研究所
森本 兼曩 大阪大学大学院医学系研究科
社会環境医学講座 環境医学
柴田 英治 愛知医科大学医学部衛生学講座
瀧川 智子 岡山大学大学院医歯薬学総合
研究科
河合 俊夫 中央労働災害防止協会
大阪労働衛生総合センター
西條 泰明 旭川医科大学

【研究協力者】

瀬戸 博 東京都健康安全研究センター
荒木 敦子 北海道大学大学院医学研究科

金澤 文子 北海道大学大学院医学研究科
アトバマイゆふ 北海道大学大学院医学研究科
竹田 智哉 北海道大学大学院医学研究科
早川 敦司 北海道大学大学院医学研究科
工藤 恵子 北海道大学大学院医学研究科
田中かづ子 福島県立医科大学衛生学講座
福島 哲仁 福島県立医科大学衛生学講座
力 寿雄 福岡県保健環境研究所
岩本 眞二 福岡県保健環境研究所
中山 邦夫 大阪大学大学院医学研究科
社会環境医学講座 環境医学
上島 通浩 名古屋大学大学院医学系研究科
酒井 潔 名古屋市衛生研究所
岡村 愛 名古屋大学大学院医学系研究科
荻野 景規 岡山大学大学院医歯薬学総合

厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）
分担研究報告書

	研究科
片岡 洋行	就実大学薬学部
三谷公理栄	就実大学薬学部
高橋 清	独立行政法人国立病院機構 南岡山医療センター
岡田 千春	独立行政法人国立病院機構 南岡山医療センター アレルギー科
堀家 徳士	ピーエッチェル
竹内 靖人	岡山大学大学院医歯薬学総合 研究科
王 炳玲	岡山大学大学院医歯薬学総合 研究科
永滝 陽子	中央労働災害防止協会 大阪労働衛生総合センター
山内 恒幸	中央労働災害防止協会 労働衛生調査分析センター

あった[3-4]。

有機リン酸トリエステル類の一般家屋での室内空气中濃度が、本邦では斎藤らによってTCEP 1.3 ng/m³、リン酸トリブチル(TBP) 4.0 ng/m³と報告されている[4]。また、ドイツではTCEP濃度は10 ng/m³と報告されており[5]、スウェーデンではTCEP、TBP濃度はそれぞれ4 ng/m³、20 ng/m³と報告されている[6]。さらにアメリカの報告で一般家屋における室内ハウスダスト中リン酸トリス(1,3-ジクロロ-2-プロピル)(TDCPP)、及びTPhP濃度は1.88 μg/g dust、7.4 μg/g dustと報告されており[7]、ドイツの報告ではTCEP、TCIPP濃度はどちらも0.60 μg/g dustと報告されている[5]。

本研究班が実施したハウスダスト中の有機リン酸トリエステル類測定のうち札幌の結果を既に金澤ら[8]が報告したが、本研究は全国の結果を用いてシックハウス症候群(SHS)症状との関連を検討することを目的とする。

A. 研究目的

我が国における1990年代後半からのシックハウス症候群の多発に伴い、本研究班では平成15年度から一般戸建て住宅を対象として、全国規模の疫学研究を継続してきた。この間、対象住宅の築年数が経過し、室内環境中のアルデヒド類やVOC類の濃度は減少傾向を示している。一方、個人レベルではシックハウス症状の持続、改善、新たな発症といった変動は見られるものの、有訴率そのものには明らかな減少は見られない。この理由としては、築年数の経過によってむしろ湿度環境が悪化し、その結果ダニアレルゲンや真菌量が増加してシックハウス症候群発現のリスクとなっていることが懸念される。さらに近年、クロス等に含まれる、有機リン酸トリエステル類による室内汚染が懸念されている。

有機リン酸トリエステル類は、繊維製品の難燃剤、プラスチックの難燃剤および可塑剤、ラッカー溶剤、金属塗料等に使用され、そのうち難燃剤、可塑剤としては1999年において年間約20,000t生産されている[1]。主な物質であるリン酸トリス(2-クロロエチル)(TCEP)は国内生産量と輸入量の和が10,000t以上であり、2001年においてリン酸トリフェニル(TPhP)では約1,000～10,000tで

B. 研究方法

1. 研究デザイン

本研究は、2003年から継続している厚生労働科学研究「全国規模の疫学研究によるシックハウスの実態と原因の解明（主任研究者 岸玲子）」の一部であるが、2006年度の調査結果をまとめた横断研究である。

2. 研究対象

平成17年の調査対象住宅のうち、同意を得られた住宅の全国6地区182軒、その全居住者624人を対象とした。

3. 調査実施時期

平成18年10月から平成19年1月の間に質問紙調査および住宅環境測定を実施した。

4. 住宅環境測定

4-1) 室内ハウスダスト中有機リン酸トリエステル類の測定

ダスト試料は専用紙パックをハンドクリーナーに装着し、床上35cm以上の棚、家具、カーテンレール、壁などから集塵（以下、棚ダスト）。また居間の床全面および床から35cm未満の棚から

も集塵した（以下、床ダスト）。ダストはアセトンで超音波抽出し、遠心分離後の上清を得た。対象とした11物質の有機リン酸トリエステル類はGC/FPDで分析を行った。分析は東京都健康安全研究センターで実施した。

4-2) アルデヒド・VOC類

SUPELCO DSD-DNPHサンプラー（アルデヒド類）、SUPELCO VOC-SDサンプラー（VOC類）（いずれもSigma-Aldrich Corporation）を壁から100cm以上離れていて、床から100-150cmの位置に設置し、24時間かけて室内空気を捕集した。アルデヒド類はHPLCを用いて中央労働災害防止協会大阪労働衛生総合センターで分析した。VOC類はGC/MSを用いて中央労働災害防止協会労働衛生調査分析センターで分析した。

4-3) ダニアレルゲン量

居間中央部の床を、専用紙パックを装着したハンドクリーナーで吸引・集塵した。ELISA法で塵1gあたりのダニアレルゲン量を測定した。測定は、ニチニチ製薬株式会社で実施した。

4-4) 温度、湿度

おんどとりTR-72U（T&D社製）を用いて、48時間に渡って居間の温度と湿度を測定し、平均温度、湿度を求めた。

5. 質問紙調査票

5-1) 住居に関する調査

各住居につき1部を配付し、世帯主もしくはそれに準ずる成人に記入を依頼した。住宅の湿度に関しては結露、目に見えるカビの発生、濡れタオルの乾きにくさ、カビの臭い、過去5年間の水漏れの有無の5項目について調査を行った。また、難燃素材の家財の使用も同時に調査した。

5-2) 健康に関する調査

各住居の住人全員に1部ずつ配付した。住宅由来の症状と考えられる自覚症状は、Andersson [9]によるシックビル質問票MM40EA日本語版[10]12項目を利用した。なお、6歳以下の未就学児には「とても疲れる」「頭が重い」といった精神・神

経項目を除いた未就学用調査票を用い、7項目とした。シックハウス症候群の自覚症状に加えて、喫煙状況、在宅・睡眠時間、運動・栄養・ストレス状況、家・家具のにおいや室内の空気が気になるか、危険物や化学物質の取り扱い、アレルギー疾患による治療の有無などについて質問した。

6. 解析

6-1) シックハウス症候群の定義

本研究では、健康項目調査票にAndersson [9]によるシックビル質問票日本語版[10]に合わせた自覚症状12項目（未就学児は精神神経症状をのぞく7項目）とした。それぞれの項目のうち1つでも「はい、よくあった（毎週のように）」で、「その症状が自宅の環境によるものと思う」と回答した場合をSick House Syndrome症状（以下SHS）ありとした。

6-2) SHSとの関連の検討時における、定量下限値（Limit of detection, LOD）未満の取り扱い

今回測定を行った11物質の有機リン酸トリエステル類は物質によってLODが異なる。そのため、表3で示した各化合物のLODの半値を用いた。

6-3) 解析方法

住宅調査票および健康調査票から、有訴数および有訴率を計算した。室内環境測定項目は、検出率、中央値、及び最小値-最大値を求めた。

有機リン酸トリエステル類とSHS症状の関連については、床ダスト中および棚ダスト中双方において検出率が20%未満であった4化合物（リン酸トリメチル、リン酸トリエチル、リン酸トリプロピル、リン酸トリクレシル）は解析の対象外とした。検出率20%以上の7化合物は測定した各有機リン酸トリエステル類濃度を人数が均等になるよう4段階（最低濃度、低濃度、中濃度、高濃度）に区切り、最低濃度をリファレンスとした。各群についてロジスティック回帰分析によってオッズ比および95%信頼区間を求めた。いずれも性・年齢で調整した。

解析には全てSPSS ver.16.0J for Windows (SPSS Inc., Chicago, IL, USA)を用いた。（倫理面への配慮）

本研究は、北海道大学医学研究科・医学部医の倫理委員会において審査・承認を得て実施した。

C. 研究結果

1. 対象者の特徴

対象者の特徴を表1に示す。対象者は、若干女性が多かった。年齢は15歳ごとにグループ化し、0～15歳のグループと31～45歳のグループが25%以上、その他の年代は10～20%だった。現在の喫煙は9%、自己申告で高いストレスレベルは16.5%、現在アレルギー治療の者は16.5%だった。自宅で過ごす時間は、17時間以上が35.4%であった。

2. 対象住宅の特徴

全国6地区182軒の対象住宅特徴を表2に示す。構造は木造住宅が全体の79.1%を占めた。築年数は2003年の調査時点での数値に経過した3年を加算して実際の築年数とした。築3～5年は72.6%、6～8年は26.3%だった。一部屋あたりの居住者数は、平均0.65人（SD=0.24人）だった。喫煙者のいる住宅は19.8%、室内でペットを飼っている住宅は33%だった。

対象住宅の湿度環境のうち、最も有訴が多かったのは目に見えるカビの生育で76.9%の住宅でみられた。結露は66.5%の住宅で見られた。カビ臭さと風呂場の濡れタオルの乾きにくさは約20%の住宅、水漏れは約10%の住宅でみられた。

また、どのような難燃素材の家財を用いているかをみると最も多く使用している難燃素材の家財は壁紙であり、その軒数は75軒であった。

3. 室内環境調査

3-1) 有機リン酸トリエステル類

室内ハウスダスト中有機リン酸トリエステル類濃度の測定値を表3に示す。有効n数は各物質に設定されたLODを超える、もしくはダスト採取量が25mg以上であった軒数である。最も高濃度を示した物質はリン酸トリスブトキシエチル(TBEP)で、中央値は床ダスト中で496 $\mu\text{g/g}$ 、棚ダスト中で119 $\mu\text{g/g}$ であり、検出率は100%であった。以下、床ダスト中での中央値が高い順に、リン酸トリス(2-クロロイソプロピル)(TCIPP)(床ダスト中:8.30 $\mu\text{g/g}$ 、97.6%、棚ダスト中:24.1 $\mu\text{g/g}$ 、

100%)、リン酸トリス(2-クロロエチル)(TCEP)(床ダスト中:5.55 $\mu\text{g/g}$ 、94.5%、棚ダスト中:8.00 $\mu\text{g/g}$ 、92.0%)、リン酸トリフェニル(TPhP)(床ダスト中:4.57 $\mu\text{g/g}$ 、89.5%、棚ダスト中:11.3 $\mu\text{g/g}$ 、95.0%)、リン酸トリス(1,3-ジクロロ-2-プロピル)(TDCPP)(床ダスト中:2.97 $\mu\text{g/g}$ 、70.2%、棚ダスト中:12.3 $\mu\text{g/g}$ 、95.7%)、リン酸トリス(2-エチルヘキシル)(TEHP)(床ダスト中:2.23 $\mu\text{g/g}$ 、66.0%、棚ダスト中:1.56 $\mu\text{g/g}$ 、58.7%)、リン酸トリブチル(TBP)(床ダスト中:1.06 $\mu\text{g/g}$ 、74.4%、棚ダスト中:1.23 $\mu\text{g/g}$ 、74.4%)だった。リン酸トリメチル(TMP)、リン酸トリエチル、リン酸トリプロピル、リン酸トリクレシルの4化合物は検出率が20%未満以下であり、TMPと棚ダスト中TPPは全ての家屋で検出限界以下であった。

3-2) その他の住宅環境調査

測定中の室内平均温度は22°C、平均湿度は54%であった(表なし)。ホルムアルデヒドは幾何平均値32.2 $\mu\text{g/m}^3$ 、検出率は99.5%であった(表なし)。

ダニアレルゲンDer1(Der f1 とDer p1の和)の幾何平均値は2.39 g/g fine dust、91%の住宅で検出された(表なし)。

4. SHSの有訴

SHSの有訴を表4に示す。有訴は全体で35人(5.6%)であった。詳しく項目別に見ると、最も有訴が多かったのは「鼻水・鼻づまり・鼻がムズムズする」で、3.8%、ついで「声がかすれる・のどの乾燥」が1.6%、「咳がでる」が1.3%だった。その他の項目の有訴は全て1%未満であった。

5. 有機リン酸トリエステル類の健康影響

測定した有機リン酸トリエステルのうち、検出率が20%以上であった7化合物において、測定した各有機リン酸トリエステル類濃度を人数が均等になるよう4段階(最低濃度、低濃度、中濃度、高濃度)に区切り、最低濃度をリファレンスとした。床上ダストでは、リン酸トリス(2-エチルヘキシル)の最低濃度群である「<LOD」群に対し、中濃度群である「2.15-4.38」群(OR=3.35、95%CI:1.14-9.83)、棚上ダストでは、リン酸トリ

ス(2-クロロイソプロピル)の最低濃度群である「<9.76」群に対し、低濃度群である「9.77-22.1」群(OR=4.36、95%CI:1.17-16.2)、中濃度群である「22.2-55.0」群(OR=4.23、95%CI:1.14-15.7)、リン酸トリス(2-クロロエチル)の最低濃度群である「<4.11」群に対し、中濃度群である「8.01-17.2」群(OR=18.2、95%CI:2.37-131)、高濃度群である「17.3<」群(OR=9.52、95%CI:1.18-77.0)において有意なリスクの上昇が示された。P for trendでは棚上ダスト中TBP、TCEPで有意なリスクの上昇が高濃度でみられた。また、床上ダスト重量、棚上ダスト重量とSHS症状において有意なリスクの上昇がみられた。

6. 有機リン酸トリエステル類と住宅特徴

表7-1~4では各化合物濃度と難燃素材の家財の使用について関連を調べた。難燃カーテン、難燃壁紙、難燃天井の使用があることで、床ダスト中TCEP濃度が有意に高値であった。

D. 考察

過去の疫学研究では、金澤らによる札幌地区の結果から空气中、及びダスト中のTBP濃度が高いことがSHS有訴のリスクを増加させる事を示した。[8]。本報告では、札幌地区を含めて全国6地区の総合的評価を初めて行った。本研究では、札幌地区のみの結果と同様に全国を対象とした結果からも床上TBP、棚上TBPやTCEPが濃度の高い群で症状の有訴が増加する傾向がみられた。その他統計学的に有意差が生じなかった化合物であっても、高濃度においてSHS症状の有訴率が増加する傾向が得られた。より大きなサンプルサイズでの研究を行うことで、この関連をよりはっきりさせることができる可能性がある。

本研究ではダスト中の有機リン酸トリエステル類濃度を測定したが、空气中における有機リン酸トリエステル類濃度とは異なる傾向を示した。例えば、TCEPは空气中では他の物質に比べて低濃度を示している[4]が、本研究では他の物質に比べて高濃度であった。さらに検出率も空气中に比べてダスト中で高い値を示している[8]。そのため、TCEPは空气中だけではなく、ダスト中の存在についても調査研究する必要があるといえる。本

研究のダスト中TCEP、TCIPP濃度はドイツでの研究[5]より高い値であった。TBEPはハウスダスト中で非常に高い濃度を示し、特に小さな赤ちゃんではハイハイで動き回ることによってハウスダストを経口的に摂取する可能性が高く、このような化合物の長期的な曝露に対しても調査が必要であると考えられる。

また、ダスト中TDCPP濃度と甲状腺ホルモン分泌量の間には負の相関が報告された[7]、本研究のダスト中TDCPP濃度とほぼ同じ範囲であった。今回の研究ではTDCPP以外にもいくつかの化合物がダスト中である程度の濃度で検出され、またSHSへの影響の可能性が示唆されたため、今後は居住者の長期的曝露に関して何らかの知見を形成することが必要であると思われる。

今回の調査では難燃素材の家財から有機リン酸トリエステル類が生じるという可能性が示唆された。そのため、これら化合物の家庭における主要な発生源などを更なる解析によって明らかにする必要がある。

本研究の限界として、サンプルサイズが小さい事と有機リン酸トリエステル類の環境中濃度のみを測定している事が挙げられる。今後は個人曝露を反映することのできる生体内曝露量なども考慮に入れた上で総合的な評価を行う必要があるであろう。

E. 結論

SHS症状は有機リン酸トリエステル類濃度と関連がみられ、床上ダスト中TEHP、棚上ダスト中TBPやTCEPにおいては高濃度において有訴のリスクを上昇させる関連が見られた。

F. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

- 1) 斎藤育江、金澤文子、荒木敦子、森本兼曩、中山邦夫、柴田英治、田中正敏、瀧川智子、吉村健清、力寿雄、栗田雅行、小縣昭夫、岸玲子「住宅室内ハウスダスト中の可塑剤、難燃剤濃度」、2009年度室内環境学会総会、

厚生労働科学研究費補助金（健康安全・危機管理対策総合研究事業）
分担研究報告書

大阪（2009.12.13-15）

- 2) 竹田智哉、荒木敦子、金澤文子、斎藤育江、栗田雅行、小縣昭夫、森本兼曩、中山邦夫、柴田英治、田中正敏、瀧川智子、吉村健清、力寿雄、岸玲子「ハウスダスト中有機リン酸トリエステルとシックハウス症候群との関連に関する調査」、2009年度室内環境学会総会、大阪（2009.12.13-15）

Phosphoric Acid Triesters in the Indoor Environment - An Inter-Laboratory Exposure Study, Indoor Air 2001;11(3):145-149

[6] T. Staaf, C. Östman; Organophosphate triesters in indoor environments, J Environ Monit 2005;7(9):883-887

[7] John D. Meeker, Heather M. Stapleton; House Dust Concentrations of Organophosphate Flame Retardants in Relation to Hormone Levels and Semen Quality Parameters, Environ. Health Perspect. in press (doi:10.1289/ehp.0901332)

[8] Kanazawa A, Saito I, Araki A, Takeda M, Ma M, Saijo Y, Kishi R; Association between indoor exposure to semi-volatile organic compounds and building-related symptoms among the occupants of residential dwellings, Indoor Air 2010;20(1):72-84

[9] K. Andersson; Epidemiological approach to indoor air problems, Indoor Air 1998;s4:32-39

[10] Mizoue T, Reijula K, K. Andersson; Environmental Tobacco Smoke Exposure and Overtime Work as Risk Factors for Sick Building Syndrome in Japan, Am. J. Epidemiol. 2001;154(9):803-808

G. 知的財産権の出願・登録状況（予定を含む。）

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

なし

引用文献

[1] 斎藤育江、大貫文、瀬戸博；有機リン酸トリエステル類の室内及び外気濃度測定、エアロゾル研究 2001;16(3):209-216

[2] 環境省、化学物質のリスク評価第1巻

[3] 環境省、化学物質のリスク評価第4巻

[4] Saito I, Onuki A, Seto H; Indoor organophosphate and polybrominated flame retardants in Tokyo, Indoor Air 2007;17(1):28-36

[5] G. Ingerowski, A. Friedle, J. Thumulla; Chlorinated Ethyl and Isopropyl

表1: 対象者の属性 n=620

属性	n	%
性別		
男性	299	42.8
女性	321	51.2
年齢		
0-15	170	27.4
16-30	67	10.8
31-45	178	28.7
46-60	228	19.0
61-	87	14.0
喫煙歴		
喫煙者	56	9.0
過去に喫煙者	51	8.2
現在のアレルギー		
あり	102	16.5
ストレス		
高い	154	24.8
普通	279	45.0
在宅時間		
17時間以上	219	35.4

表2: 住宅の属性とダンプネス n=182

属性	n	%
家の構造(2003年時)		
木造	144	79.1
その他	35	19.2
築年(2003年時の値に3年を加算)		
3-5年	132	72.6
6-8年	48	26.3
密度(居住人/部屋数)(平均±標準偏差)	0.65±0.24	
家庭内喫煙者	36	19.8
ペット飼育	60	33.0
ダンプネス		
かびの発生	140	76.9
結露	121	66.5
かび臭	37	20.3
風呂場の湿気が取れない	35	19.2
5年以内の水漏れ	20	11.0
難燃製品の使用		
カーテン	73	40.1
じゅうたん等	49	26.9
壁紙	76	41.8
天井	68	37.4

表3: リン酸トリエステル類濃度

	LOD	有効n	Med.	Min	25%	75%	Max	検出率(%)
床								
ダスト重量(g)		182	0.16	0.00	0.43	0.33	1.82	-
TMP	1.03	148	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	0.0
TEP	0.52	148	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	2.8	8.8
TPP	0.49	148	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	1.13	0.7
TBP	0.73	156	1.06	<LOD	<LOD	1.89	132.	74.4
TCIPP	1.11	164	8.3	<LOD	3.69	18.9	429.	97.6
TCEP	1.29	163	5.55	<LOD	3.1	12.07	338.	94.5
TEHP	1.33	156	2.23	<LOD	<LOD	4.49	51.	66.0
TBEP	1.21	168	496.	6.24	144.	1417.	5890.	100.0
TDCPP	1.18	161	2.97	<LOD	<LOD	11.07	864.	70.2
TPhP	1.6	162	4.57	<LOD	3.06	8.07	522.	89.5
TCP	8.	148	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	59.8	6.1
棚								
ダスト重量(g)		182	0.06	0.	0.01	0.18	1.56	-
TMP	1.03	120	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	0.0
TEP	0.52	122	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	3.31	9.0
TPP	0.49	120	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	0.0
TBP	0.73	125	1.23	<LOD	<LOD	1.82	103.	74.4
TCIPP	1.11	144	24.1	1.3	9.81	56.9	430.	100.0
TCEP	1.29	163	8.	<LOD	4.11	17.4	2320.	92.0
TEHP	1.33	156	1.56	<LOD	<LOD	2.61	73.1	58.7
TBEP	1.21	168	119.	5.29	59.2	300.	14100.	100.0
TDCPP	1.18	161	12.3	<LOD	5.11	23.3	593.	95.7
TPhP	1.6	162	11.3	<LOD	6.49	26.7	889.	95.0
TCP	8.	148	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	741.	11.6

濃度は全て($\mu\text{g/g}$)

TMP	リン酸トリメチル
TEP	リン酸トリエチル
TPP	リン酸トリプロピル
TBP	リン酸トリブチル
TCIPP	リン酸トリス(2-クロロイソプロピル)
TCEP	リン酸トリス(2-クロロエチル)
TEHP	リン酸トリス(2-エチルヘキシル)
TBEP	リン酸トリスブトキシエチル
TDCPP	リン酸トリス(1,3-ジクロロ-2-プロピル)
TPhP	リン酸トリフェニル
TCP	リン酸トリクレシル

表4: SHS症状の有訴率 n=620(一般症状はn=558)

症状	n	%
有訴者数	35	5.6
粘膜症状		
目がかゆい、あつい、ちくちくする	5	0.8
鼻水、鼻づまり、鼻がむずむずする	24	3.8
声がかすれる、喉が乾燥する	10	1.6
せきがでる	8	1.3
皮膚症状		
顔が乾燥したり、赤くなる	3	0.5
頭や耳がかさつく、かゆい	4	0.6
手が乾燥する、かゆい、赤くなる	5	0.8
一般症状		
とても疲れる	5	0.9
頭が重い	2	0.4
頭が痛い	1	0.2
吐き気やめまいがする	0	0.0
物事に集中できない	1	0.2

表5: 床上リン酸トリエステル類の濃度とSHS症状の有訴との関連

	濃度	n	SHS+(%)	オッズ比(95%CI) ^a	P-trend ^a
床ダスト重量(g)	<=0.04	157	1.9	Ref.	**
	0.05-0.154	154	2.6	1.55(0.34-7.09)	
	0.15-0.31	154	5.8	3.50(0.92-13.3)†	
	0.32<=	155	12.3	8.14(2.33-28.4)**	
TBP(μg/g)	<=LOD	148	3.4	Ref.	†
	LOD-1.03	120	5.0	1.71(0.50-5.82)	
	1.04-1.79	129	7.8	2.36(0.78-7.14)	
	1.80<=	133	9.0	2.75(0.94-8.09)†	
TCIPP(μg/g)	<=3.39	137	5.8	Ref.	
	3.40-7.74	140	7.1	1.34(0.51-3.56)	
	7.75-17.5	143	6.3	1.20(0.44-3.22)	
	17.6<=	136	5.9	1.08(0.39-2.99)	
TCEP(μg/g)	<=3.10	136	3.7	Ref.	
	3.11-5.75	139	5.8	1.60(0.51-5.07)	
	5.76-11.5	141	8.5	2.17(0.74-6.39)	
	11.6<=	136	7.4	2.06(0.68-6.29)	
TEHP(μg/g)	<=LOD	176	2.8	Ref.	
	LOD-2.14	92	7.6	3.10(0.93-10.3)†	
	2.15-4.38	128	9.4	3.35(1.14-9.83)*	
	4.39<=	133	6.8	2.38(0.77-7.31)	
TBEP(μg/g)	<=150	147	4.1	Ref.	
	151-488	141	5.0	1.13(0.37-3.47)	
	489-1390	144	7.6	1.85(0.66-5.19)	
	1391<=	143	6.8	1.87(0.66-5.24)	
TDOPP(μg/g)	<=LOD	159	4.4	Ref.	
	LOD-3.04	117	6.0	1.51(0.51-4.48)	
	3.05-11.5	135	8.9	2.00(0.76-5.27)	
	11.6<=	136	6.6	1.48(0.53-4.11)	
TPhP(μg/g)	<=3.06	139	6.5	Ref.	
	3.07-459	137	7.3	1.28(0.50-3.28)	
	4.60-7.76	139	3.6	0.49(0.16-1.53)	
	7.77<=	138	7.2	1.03(0.40-2.65)	

^aロジスティック回帰分析による(性、年齢で調整) (†:p<0.1,*:p<0.05,**:p<0.01)

表6: 棚上リン酸トリエステル類の濃度とSHS症状の有訴との関連

	濃度	n	SHS+(%)	オッズ比(95%CI) ^a	P-trend ^a
棚ダスト重量(g)	≤0.01	154	1.3	Ref.	**
	0.02-0.04	157	4.5	3.61(0.73-17.7)	
	0.05-0.15	157	7.0	6.14(1.33-28.4)*	
	0.16<=	152	9.9	9.16(2.05-41.0)**	
TBP(μg/g)	≤LOD	107	5.6	Ref.	*
	0.37-1.15	100	6.0	1.01(0.31-3.28)	
	1.16-1.76	106	9.4	1.79(0.62-5.18)	
	1.77<=	101	10.9	2.65(0.92-7.66)†	
TCIPP(μg/g)	≤9.76	126	2.4	Ref.	
	9.77-22.1	121	9.1	4.36(1.17-16.2)*	
	22.2-55.0	125	8.8	4.23(1.14-15.7)*	
	55.1<=	119	6.7	2.91(0.75-11.3)	
TCEP(μg/g)	≤4.11	116	0.9	Ref.	**
	4.12-8.00	117	5.1	5.89(0.69-50.1)	
	8.01-17.32	115	14.8	18.2(2.37-131)**	
	17.3<=	116	7.8	9.52(1.18-77.0)*	
TEHP(μg/g)	≤0.67	170	7.1	Ref.	
	0.68-1.55	39	2.6	0.31(0.04-2.47)	
	1.56-2.50	105	6.7	0.84(0.32-2.23)	
	2.51<=	105	12.4	1.74(0.75-4.03)	
TBEP(μg/g)	≤61.5	130	5.4	Ref.	
	61.6-129	124	5.6	0.95(0.32-2.86)	
	130-298	127	10.2	1.83(0.69-4.86)	
	299<=	125	4.8	0.84(0.27-2.60)	
TDCPP(μg/g)	≤5.11	117	6.0	Ref.	
	5.12-12.4	121	5.0	0.74(0.24-2.30)	
	12.5-21.7	117	8.5	1.22(0.44-3.39)	
	≤21.8	114	8.8	1.40(0.51-3.87)	
TPhP(μg/g)	≤6.54	120	6.7	Ref.	
	6.55-11.1	115	6.1	0.91(0.32-2.63)	
	11.2-24.5	119	8.4	1.35(0.51-3.61)	
	24.6<=	118	6.8	1.07(0.38-2.97)	

^aロジスティック回帰分析による(性、年齢で調整) (†:p<0.1,*:p<0.05,**:p<0.01)

表7-1: 難燃カーテンの使用と化合物濃度の関連

	カーテンあり				カーテンなし				p値
	有効n	25%	Median	75%	有効n	25%	Median	75%	
床ダスト									
TBP	64	0.81	1.27	2.48	44	<LOD	1.02	1.76	†
TCIPP	67	4.	8.17	20.	48	3.43	7.6	17.6	
TCEP	66	3.34	6.5	16.3	48	1.94	3.87	7.69	**
TEHP	63	<LOD	2.28	4.27	46	<LOD	1.91	4.44	
TBEP	67	167.	533.	1200.	49	108.	455.	1420.	
TDCPP	67	<LOD	2.85	10.3	46	<LOD	2.81	11.	
TPhP	65	3.4	5.24	7.38	49	2.41	4.23	7.34	
棚ダスト									
TBP	50	0.88	1.31	2.62	38	<LOD	1.03	1.66	†
TCIPP	61	10.4	22.6	57.7	42	11.	26.9	46.6	
TCEP	59	4.32	9.67	22.5	39	3.5	6.4	11.5	*
TEHP	51	<LOD	1.82	3.1	36	<LOD	1.5	2.44	
TBEP	63	60.4	118.	301.	43	42.8	110.	302.	
TDCPP	58	5.72	10.3	18.9	40	3.7	13.1	24.2	
TPhP	58	6.59	11.2	22.5	41	8.04	13.3	29.4	

Kruskal Wallis 検定による

(†:p<0.1,*:p<0.05,**:p<0.01)

(濃度は全て $\mu\text{g/g}$)

(有効nは対象物質の濃度が測定できた軒数)

表7-2: 難燃じゅうたん等の使用と化合物濃度の関連

	じゅうたんあり				じゅうたんなし				p値
	有効n	25%	Median	75%	有効n	25%	Median	75%	
床ダスト									
TBP	45	0.77	1.26	2.61	69	<LOD	1.05	1.74	
TCIPP	47	4.	9.33	14.6	74	3.21	7.15	22.7	
TCEP	46	2.93	4.64	11.5	74	2.63	5.17	13.2	
TEHP	44	<LOD	1.83	3.83	72	<LOD	2.51	4.81	
TBEP	48	114.	384.	893.	76	151.	620.	1555.	†
TDCPP	48	<LOD	3.96	12.9	71	<LOD	2.59	11.6	
TPhP	46	3.19	4.64	8.71	75	2.79	4.64	7.1	
棚ダスト									
TBP	38	0.66	1.31	3.3	54	<LOD	1.12	1.66	
TCIPP	44	7.56	23.4	57.8	61	11.9	29.6	58.6	
TCEP	43	2.62	9.63	18.	59	4.5	7.68	15.9	
TEHP	37	<LOD	<LOD	2.36	53	<LOD	1.63	2.5	
TBEP	44	32.4	85.7	226.	65	71.4	167.	334.	*
TDCPP	40	4.31	10.	18.4	60	3.99	13.9	29.9	
TPhP	42	6.53	11.5	33.7	61	7.25	11.7	25.4	

Kruskal Wallis 検定による

(†:p<0.1,*:p<0.05,**:p<0.01)

(濃度は全て $\mu\text{g/g}$)

(有効nは対象物質の濃度が測定できた軒数)

表7-3: 難燃壁紙の使用と化合物濃度の関連

	壁紙あり				壁紙なし				p値
	有効n	25%	Median	75%	有効n	25%	Median	75%	
床ダスト									
TBP	68	0.78	1.24	2.39	28	<LOD	0.83	1.41	*
TCIPP	72	3.83	8.91	15.5	30	3.1	7.51	27.1	
TCEP	70	3.18	6.16	12.4	30	2.02	3.87	6.31	*
TEHP	67	<LOD	2.3	4.51	30	<LOD	1.21	3.3	†
TBEP	73	145.	421.	1380.	31	113.	300.	1210.	
TDCPP	71	<LOD	3.04	12.4	30	<LOD	3.18	11.	
TPhP	69	3.18	5.24	8.57	31	2.79	4.71	8.25	
棚ダスト									
TBP	52	0.78	1.24	1.82	25	<LOD	0.88	1.53	†
TCIPP	62	7.64	23.4	58.6	28	12.3	28.3	56.3	
TCEP	61	4.14	9.27	17.7	27	3.5	6.68	8.92	
TEHP	54	<LOD	1.65	3.29	26	<LOD	1.45	1.88	
TBEP	64	41.3	111.	261.	28	44.1	84.7	266.	
TDCPP	59	4.04	10.2	18.9	28	4.15	13.6	24.1	
TPhP	60	6.63	11.5	32.4	28	7.08	13.9	21.3	

Kruskal Wallis 検定による

(†:p<0.1,*:p<0.05,**:p<0.01)

(濃度は全て $\mu\text{g/g}$)

(有効nは対象物質の濃度が測定できた軒数)

表7-4: 難燃天井の使用と化合物濃度の関連

	天井あり				天井なし				p値
	有効n	25%	Median	75%	有効n	25%	Median	75%	
床ダスト									
TBP	60	0.76	1.07	2.08	35	<LOD	0.95	1.77	
TCIPP	64	4.01	9.24	15.5	37	3.62	7.45	24.6	
TCEP	62	3.49	6.37	13.1	37	2.13	3.66	6.37	**
TEHP	59	<LOD	2.66	4.55	37	<LOD	0.67	2.9	*
TBEP	65	215.	518.	1445.	38	56.7	242.	853.	*
TDCPP	63	1.33	3.66	13.5	37	<LOD	2.54	8.13	
TPhP	61	3.82	5.41	8.78	38	2.55	4.51	8.26	
棚ダスト									
TBP	46	0.76	1.18	1.81	30	<LOD	1.03	1.66	
TCIPP	55	7.65	29.6	60.9	34	11.1	26.6	54.9	
TCEP	54	3.94	9.52	21.3	33	4.31	6.99	9.45	
TEHP	46	<LOD	1.46	2.88	32	<LOD	1.5	2.47	
TBEP	57	54.9	115.	288.	34	21.3	82.1	177.	†
TDCPP	52	6.13	11.3	19.6	34	3.87	9.76	21.	
TPhP	53	6.66	11.2	30.6	34	6.77	13.3	20.7	

Kruskal Wallis 検定による

(†:p<0.1,*:p<0.05,**:p<0.01)

(濃度は全て $\mu\text{g/g}$)

(有効nは対象物質の濃度が測定できた軒数)

名古屋市における大規模ビルの室内 2-エチル-1-ヘキサノール汚染の経年、 及び季節性変化

研究分担者 柴田 英治 愛知医科大学教授

研究要旨

名古屋市内の大規模ビル室内空気汚染物質、2-エチル-1-ヘキサノール（2E1H）による汚染状況を明らかにするため、56 ビルの 67 室について室内空気中の揮発性有機化合物を測定した。2E1H は大規模ビルにおける室内空気中の主要な化合物といえる結果であった。濃度の幾何平均値は夏季（ $55.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）には冬季よりも（ $13.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）有意に高く、室内の温度が 2E1H の放散に影響を及ぼしていることが示唆された。室内 2E1H 濃度は夏季に上昇し、冬季に低下したが、経年推移は緩やかな低下傾向を認めた。これらの結果は部屋に使用されている床材に含まれるフタル酸 2-ジエチルヘキシルのアルカリ加水分解に影響を及ぼすいくつかの要因によって 2E1H の放散が季節的な変動を持ちながら継続することを示していると考えられた。

研究協力者

酒井潔、大野浩之

名古屋市衛生研究所 主任研究員

上島通浩

名古屋市立大学大学院医学研究科環境保健学
教授

A. 研究目的

2-エチル-1-ヘキサノール(2E1H)は炭素数 8 の広く用いられているアルコールであり、可塑剤フタル酸ジ 2-エチルヘキシル、アジピン酸ジ 2-エチルヘキシル、トリメリット酸ジ 2-エチルヘキシルの原料となっている。最近の調査でも、2E1H は建材、家具などに含まれていないにもかかわらず、室内汚染の主要な原因の一つとなっている。高濃度の 2E1H への曝露は鼻粘膜のライソザイムの分泌を活発にすることにより、眼、喉、気管粘膜などの刺激症状の原因になっている。また、気管支喘息の原因となるとの報告もある。すでに多くの報告があるホルムアルデヒドなどのアルデヒド類、トルエンなどのいわゆる揮発性有機化合物(VOC)とともにシックビル症候群の原因と考えられている。欧米では 2E1H によるシックビル症候群の報告はいくつか行われているが、我が国では我々が潜在的なシックビル症候群の原因物質であることを報告してからもあまり注目されてこなかった。このため、我が国における建物内の 2E1H 濃度に関する報告は極めて少ないのが現状である。

我々はすでに名古屋市内の居住以外に使用さ

れるビルの室内 2E1H 濃度の測定結果を報告した。この報告では 2E1H が建材に含まれていないものの、主要な室内汚染物質であることを述べた。一部の室内では新築住宅の総 VOC の指針値、 $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を 2E1H のみで超えてしまっているケースもみられている。一方、極端な高濃度が観察されない建物でも比較的低濃度の 2E1H が存在する建物は多数あることがわかっている。世界で報告されているシックビル症候群を生じた室内環境は上記のわが国の指針値よりも低い濃度である場合が少なくない。2E1H の発生源については、この物質が建材そのものに含まれていないものの、室内に存在することは明らかであったことから、我々はこれが床材などに含まれている塩化ビニルの可塑剤として使用されるフタル酸ジ 2-エチルヘキシル、あるいは 2-エチルヘキシル基を有する化合物を含む接着剤が水分を含んだコンクリートとの接触によって高 pH 環境の中での加水分解の結果、発生すると考えた。多くの化学反応速度が温度に依存して増加することから、床材からの 2E1H の発生は室内の温度に関連していると考えられる。これまで我々が経験した例では、他の多くの室内 VOC 濃度が、建物完成直後から急激に減少するのに対して、2E1H は比較的高濃度が持続し、減少には長期間を要することが疑われる。

本研究では大規模ビル室内 2E1H 濃度の夏季、冬季の変化及びいくつかの室内 2E1H 濃度の経年推移を観察し、2E1H によるビル室内汚染の特徴を明らかにする。

B. 研究方法

サンプリング期間と調査したビル

冬季と夏季の 2-エチル-1-ヘキサノール濃度の比較

サンプリングは名古屋市内の総床面積が 3,000 m²を超える 56 のビルの 67 室について 2004 年から 2007 年にかけて夏季（7 月から 9 月）と冬季（1 月から 3 月）に行った。2004～2006 年の期間は 1 つのビルについて 1 室、2007 年には 1 つのビルについて 2 室行った。

図 1 は 67 室の特徴を示したものである。これらの部屋は事務所としての使用が最も多かった。これらのビルの築年数の範囲は 0～33 年であり、平均 7.3 年であった。67 室のうち 39 室は鉄筋コンクリートであった。床構造は OA 機器のケーブルを床下に這わせるいわゆるアクセスフロア構造になっているものが主流であった。床材で多かったのはタイルカーペットであった。すべての部屋には強制換気装置とエアコンが取り付けられ、ほとんど部屋で窓の開閉はできない。夏には 67 室中 57 室で強制換気が作動していた。1 日あたりの換気時間は 1.5～24 時間であり、平均 12.9 時間であった。1 日の平均室内気温は 23.3～33.1℃であり、平均で 27.1℃であった。冬季では 67 室中 58 室で強制換気が作動し、換気時間は 1.0～24 時間、平均 13.0 時間であった。1 日の平均室内気温は 8.9～26.2℃であり、平均で 21.1℃であった。夏季の室内温度は冬季よりも有意に高かった ($p < 0.01$)。

2E1H 濃度の経年変化

2E1H 濃度が比較的高かった 5 つのビルで 2 年以上にわたり、夏季、冬季に室内揮発性有機化合物 (VOC) 濃度を測定した。この調査は 1 つのビルについて 1 室行った。図 2 は 2E1H 濃度の経年推移を測定した 5 室の特徴を示した。これらの部屋はすべて室内を使用しているときには強制換気とエアコンが作動していた。換気の状態は調査期間を通じて変わることはなかった。

揮発性有機化合物

2E1H を含めた 45 物質の濃度を測定した (図 3)。45 物質の濃度の合計を総有機化合物濃度 (TVOC)

とした。濃度測定値が検出限界に満たない場合には TVOC の算出には検出限界値の 2 分の 1 を用いた。標準溶液はスペルコ社の T011/IP-6A Aldehyde/Ketone-DNPH、関東化学の VOC 標準溶液、和光化学の特級 2E1H を使用した。温湿度の測定には T&D 社のデータロガー、TR-72S を用いた。

サンプリング、分析方法

カルボニル化合物 (13 種類)

カルボニル化合物はアルデヒド用拡散サンプラー (DSD-DNPH) を用いた。これは 2,4-ジニトロフェニルヒドラジンを含むシリカゲルを詰めたものである。サンプリングは室内中央の床上 1.5m の高さにサンプラーを 24 時間置いて行った。屋外でのサンプリングは同じビル近くの室外で地面から同じ高さで行った。サンプリングは VOC の発生源となりうる物からは離して行った。カルボニル化合物はアセトニトリルで抽出し、高速液体クロマトグラフ (LC-9A 島津製作所) で測定した。使用カラムは Discovery RP-Amide C16 (Sigma-Aldrich 社) で長さ 25mm、内径 4.6mm である。恒温槽は 40℃に保ち、アセトニトリル/蒸留水混合液 (55:45) を 1.0ml/min の流速で流した。

カルボニル化合物以外の揮発性有機化合物

テフロンチューブにカーボンモレキュラーシープ (200mg) を充填した拡散型サンプラーを用いた。このサンプラーを上記のカルボニル化合物用サンプラーの近くに 24 時間設置した。サンプラー内の吸着剤は 7ml のバイアルに移し、2ml の二硫化炭素を加え、振とうした後 2 時間放置、3000 回転 10 分間の遠心を行い、この上清 1ml に 5 μ l の内部標準物質 (トルエン d8) を加え、ガスクロマトグラフ質量分析計 (5980Series II/5671A, Hewlett Packard) で分析した。カラムはジールサイエンス社製 NB-1 (60m \times 0.25mm i. d. 膜厚 1.5 μ m) を使用した。カラムオープンの温度は 45℃を 5 分間維持した後、毎分 10℃で昇音し、300℃を 7 分間保った。最初に 32 の VOC 測定のため、ヘリウムの流量を 0.9ml/min として選択イオンモードで測定、次に総イオンモードで測定した¹⁸⁾。拡散サンプラーの 2E1H のサンプリングレートは 23.2ml/min であった。