

Table 7: Concentration differences of MVOC and other environment variables in building factors

	n	3-methyl-1-butano		2-pentanol		2-hexanone		2-heptanone		3-Octanone		1-Octene-3-ol		Total MVOC		Formaldehyde		Total VOC		Total fungi		Total mite allergen			
		GM	p-value	GM	p-value	GM	p-value	GM	p-value	GM	p-value	GM	p-value	GM	p-value	GM	p-value	GM	p-value	GM	p-value	GM	p-value		
Housing structure																									
wooden	144	0.88	0.219	1.22	0.001**	0.58	0.086	0.46	0.000**	0.26	0.005**	0.18	0.585	0.31	0.049*	4.02	0.001**	39.3	0.220	188.2	0.001**	429	0.016*	18.64	0.901
others	35	0.66		0.51		0.51		0.25		0.16		0.15		0.19		2.56		39.0		80.0		681		9.12	
Building Age																									
3-5 years	128	0.87	0.369	1.08	0.606	0.59	0.123	0.43	0.722	0.24	0.555	0.17	0.367	0.24	0.283	3.74	0.684	39.6	0.134	173.3	0.063	461	0.930	12.65	0.003**
6-8 years	24	0.87		0.82		0.66		0.36		0.25		0.19		0.28		3.57		44.0		158.7		451		45.58	
Environmental tobacco smoke																									
yes	36	0.88	0.603	0.75	0.122	0.51	0.525	0.40	0.295	0.21	0.120	0.17	0.418	0.25	0.874	3.30	0.412	44.3	0.265	186.3	0.492	517	0.527	23.63	0.871
no	146	0.83		1.16		0.58		0.42		0.25		0.29		0.29		3.82		37.7		160.7		467		14.82	
Condensation																									
yes	121	0.89	0.708	1.10	0.429	0.51	0.418	0.43	0.133	0.24	0.735	0.17	0.443	0.29	0.466	3.76	0.861	39.7	0.372	175.1	0.551	543	0.004**	16.93	0.257
no	60	0.75		1.03		0.66		0.39		0.25		0.18		0.27		3.68		36.5		149.3		344		15.04	
Visible mold growth																									
yes	140	0.89	0.637	1.10	0.135	0.55	0.857	0.41	0.610	0.24	0.768	0.17	0.608	0.30	0.911	3.78	0.413	39.2	0.721	179.2	0.735	512	0.284	17.77	0.025*
no	42	0.67		1.00		0.60		0.44		0.26		0.23		0.23		3.51		38.3		120.8		359		12.45	
Moldy odor																									
yes	37	1.00	0.537	1.23	0.794	0.43	0.309	0.41	0.765	0.26	0.466	0.13	0.184	0.20	0.379	3.78	0.603	44.4	0.115	152.0	0.982	500	0.476	23.13	0.050
no	144	0.80		1.04		0.60		0.42		0.24		0.19		0.30		3.72		37.7		169.8		470		14.98	
High humidity in the bathroom																									
yes	35	0.82	0.953	0.90	0.851	0.65	0.370	0.40	0.460	0.20	0.302	0.21	0.786	0.23	0.961	3.54	0.532	41.4	0.329	122.2	0.908	599	0.253	16.62	0.765
no	146	0.84		1.12		0.54		0.42		0.25		0.17		0.29		3.76		36.5		177.1		448		16.68	
Water leakage																									
yes	20	0.80	0.436	1.70	0.358	0.42	0.469	0.42	0.956	0.32	0.567	0.13	0.584	0.25	0.969	4.16	0.968	35.5	0.695	128.2	0.609	418	0.656	12.02	0.125
no	161	0.85		1.00		0.58		0.42		0.23		0.18		0.29		3.68		39.5		171.3		486		14.10	
Housing pet																									
yes	60	0.94	0.706	0.86	0.169	0.49	0.781	0.35	0.126	0.21	0.164	0.19	0.431	0.22	0.361	3.38	0.243	39.1	0.862	147.0	0.429	566	0.080	23.35	0.819
no	121	0.79		1.19		0.59		0.44		0.26		0.17		0.31		3.88		39.0		175.3		433		13.40	

P-values were calculated by Mann-Whitney U test.

ハウスダスト中有機リン酸トリエステル類濃度とシックハウス症候群に関する全国調査研究

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 $\mu\text{g/g}$ 、100%、棚ダスト中:119 $\mu\text{g/g}$ 、100%)、リン酸トリス(2-クロロイソプロピル)(床ダスト中:8.30 $\mu\text{g/g}$ 、97.6%、棚ダスト中:24.1 $\mu\text{g/g}$ 、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「<LOQ」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

アトハマイゆふ 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
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

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。

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 1998[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 1998[7]によるシックビル質問票日本語版[9]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 Quantification, LOQ）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LOQが異なる。そのため、表3で示した各化合物のLOQ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LOQ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「<LOQ」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気中、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、空気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は空気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。さらに検出率も空気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は空気中だけではなく、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、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）

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 16(3):209-216(2001)
- [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 17(1): 28-36(2007)
- [5] G. Ingerowski, A. Friedle, J. Thumulla; Chlorinated Ethyl and Isopropyl Phosphoric Acid Triesters in the Indoor Environment - An Inter-Laboratory Exposure Study, Indoor Air 11(3): 145-149(2001)
- [6] T. Staaf, C. Östman; Organophosphate triesters in indoor environments, J. Environ. Monit. 7(9): 883-887(2005)
- [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. 118(3): 318-323(2010)
- [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 20(1): 72-84(2010)
- [9] K. Andersson; Epidemiological approach to indoor air problems, Indoor Air 4: 32-39(1998)
- [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. 154(9): 803-808(2001)

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

	LOQ	Min	25%	Med.	75%	Max	検出率(%)
床							
TMP	1.03	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.0
TEP	0.52	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	2.80	8.8
TPP	0.49	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	1.13	0.7
TBP	0.73	<LOQ	<LOQ	1.06	1.89	132	74.4
TCIPP	1.11	<LOQ	3.69	8.30	18.9	429	97.6
TCEP	1.29	<LOQ	3.10	5.55	12.1	338	94.5
TEHP	1.33	<LOQ	<LOQ	2.23	4.49	51.0	66.0
TBEP	1.21	6.24	144	496	1417	5890	100.0
TDCPP	1.18	<LOQ	<LOQ	2.97	11.1	864	70.2
TPhP	1.60	<LOQ	3.06	4.57	8.07	522	89.5
TCP	8.00	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	59.8	6.1
棚							
TMP	1.03	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.0
TEP	0.52	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	3.31	9.0
TPP	0.49	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.0
TBP	0.73	<LOQ	<LOQ	1.23	1.82	103	74.4
TCIPP	1.11	1.30	9.81	24.1	56.9	430	100.0
TCEP	1.29	<LOQ	4.11	8.00	17.4	2320	92.0
TEHP	1.33	<LOQ	<LOQ	1.56	2.61	73.1	58.7
TBEP	1.21	5.29	59.2	119	300	14100	100.0
TDCPP	1.18	<LOQ	5.11	12.3	23.3	593	95.7
TPhP	1.60	<LOQ	6.49	11.3	26.7	889	95.0
TCP	8.00	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	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.	**
	0.05-0.14	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)	<=LOQ	148	3.4	Ref.	†
	0.73-1.03	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)	<=LOQ	176	2.8	Ref.	
	1.33-2.14	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)	
TDCPP(μg/g)	<=LOQ	159	4.4	Ref.	
	1.18-3.04	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.	
	3.07-4.59	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)	<=LOQ	107	5.6	Ref.	*
	0.73-1.15	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)	
	8.01-17.2	115	14.8	18.2(2.37-131)**	
	17.3<=	116	7.8	9.52(1.18-77.0)*	
TEHP(μg/g)	<=LOQ	170	7.1	Ref.	
	1.33-1.55	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	<LOQ	1.02	1.76	†
TCIPP	67	4.00	8.17	20.0	48	3.43	7.60	17.6	
TCEP	66	3.34	6.50	16.3	48	1.94	3.87	7.69	**
TEHP	63	<LOQ	2.28	4.27	46	<LOQ	1.91	4.44	
TBEP	67	167	533	1200	49	108	455	1420	
TDCPP	67	<LOQ	2.85	10.3	46	<LOQ	2.81	11.0	
TPhP	65	3.40	5.24	7.38	49	2.41	4.23	7.34	
棚ダスト									
TBP	50	0.88	1.31	2.62	38	<LOQ	1.03	1.66	†
TCIPP	61	10.4	22.6	57.7	42	11.0	26.9	46.6	
TCEP	59	4.32	9.67	22.5	39	3.50	6.40	11.5	*
TEHP	51	<LOQ	1.82	3.10	36	<LOQ	1.50	2.44	
TBEP	63	60.4	118	301	43	42.8	110	302	
TDCPP	58	5.72	10.3	18.9	40	3.70	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	<LOQ	1.05	1.74	
TCIPP	47	4.00	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	<LOQ	1.83	3.83	72	<LOQ	2.51	4.81	
TBEP	48	114	384	893	76	151	620	1555	†
TDCPP	48	<LOQ	3.96	12.9	71	<LOQ	2.59	11.6	
TPhP	46	3.19	4.64	8.71	75	2.79	4.64	7.10	
棚ダスト									
TBP	38	0.66	1.31	3.30	54	<LOQ	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	18.0	59	4.50	7.68	15.9	
TEHP	37	<LOQ	<LOQ	2.36	53	<LOQ	1.63	2.50	
TBEP	44	32.4	85.7	226	65	71.4	167	334	*
TDCPP	40	4.31	10.0	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	<LOQ	0.83	1.41	*
TCIPP	72	3.83	8.91	15.5	30	3.10	7.51	27.1	
TCEP	70	3.18	6.16	12.4	30	2.02	3.87	6.31	*
TEHP	67	<LOQ	2.30	4.51	30	<LOQ	1.21	3.30	†
TBEP	73	145	421	1380	31	113	300	1210	
TDCPP	71	<LOQ	3.04	12.4	30	<LOQ	3.18	11.0	
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	<LOQ	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	3.50	6.68	8.92	
TEHP	54	<LOQ	1.65	3.29	26	<LOQ	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	<LOQ	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	<LOQ	2.66	4.55	37	<LOQ	0.67	2.90	*
TBEP	65	215	518	1445	38	56.7	242	853	*
TDCPP	63	1.33	3.66	13.5	37	<LOQ	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	<LOQ	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	<LOQ	1.46	2.88	32	<LOQ	1.50	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	21.0	
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)

札幌地区および西日本地区における住宅内殺虫剤および難燃剤汚染の実態調査

研究代表者 岸 玲子 北海道大学環境健康科学研究教育センター 特任教授
研究分担者 瀧川 智子 岡山大学大学院医歯薬学総合研究科公衆衛生学 助教
研究協力者 吉村 健清 産業医科大学 名誉教授（福岡県保健環境研究所 元所長）
研究協力者 森本 兼曩 大阪大学大学院医学系研究科付属ツインリサーチセンター 特任教授
研究協力者 斎藤 育江 東京都健康安全研究センター

研究要旨

シックハウス症候群の原因解明のため、平成 18 年度に札幌地区、平成 19 年度に西日本地区(大阪、岡山、北九州)において、住宅内における殺虫剤および難燃剤の汚染状況の調査を行った。難燃剤を使用したカーテン、敷物、壁紙および天井については、全世帯の 20%-40%程度で使用している状況であり、各地域には大きな差は見られなかったが、殺虫剤についてはシロアリ駆除剤および蚊取薬剤の使用頻度が高く、西日本地区が札幌地区より使用世帯の割合が高い結果であった。調査対象住宅の室内空気中殺虫剤およびリン酸エステル類濃度の測定を実施した結果、今回の試料採取法は低感度であったため、多くの成分で調査世帯における検出率が低い結果であったが、殺虫剤成分の中でピレスロイド系殺虫剤であるトランスフルトリンが 25.8%の世帯で、共力剤である s-421 が 32.0%の世帯で検出された。一方、難燃剤として使用されているリン酸トリエステル類はリン酸トリエチル等の 4 物質が 50%以上の世帯で検出された。リン酸エステル類については大きな地域差は認められなかったが、殺虫剤については、トランスフルトリンが札幌地区に比べ西日本地区で検出率が高い結果であった。トランスフルトリンはゴキブリ駆除剤およびダニ駆除剤の使用世帯で検出率が高く、その室内濃度の中央値も高い結果であった。また、難燃カーテンを使用している世帯で、リン酸トリエチル等 4 物質の検出率と中央値が高い結果を示した。SHS2 について、目・鼻・のどやせきの粘膜症状に限定した場合には、リン酸トリエチルの濃度と症状に有意な関連が認められた。

研究協力者

力 寿雄 福岡県保健環境研究所
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
中山邦夫 大阪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研究科

て解析を行ったので報告する。

B. 研究方法

1. 対象住宅

本調査の前年度にあたる平成 17 年度調査(札幌 64 軒)、平成 18 年度調査(大阪 56 軒、岡山 22 軒、北九州 16 軒)に参加した全世帯に質問紙調査および住宅室内環境測定の調査依頼を行った。その結果、住宅 97 軒(札幌 40 軒、大阪 28 軒、岡山 16 軒、北九州 13 軒)、居住者 333 名(札幌 130 名、大阪 104 名、岡山 58 名、北九州 41 名)から同意が得られた。

2. 調査時期

札幌地区では平成 18 年 10 月～平成 19 年 1 月、西日本地区では平成 19 年 7 月～9 月に調

A. 研究目的

本研究班ではシックハウス症候群の原因解明のために、平成 18 年度に札幌地区、平成 19 年度に西日本地区(大阪、岡山、北九州)において、住宅内における殺虫剤および難燃剤の汚染状況の調査を行った。そこで、札幌地区および西日本地区で実施した調査結果を統合し、殺虫剤および難燃剤の汚染状況につい

査を実施した。

3. 調査票

対象住宅には「住まいに関する調査票」を各世帯1部、世帯主または代表者に記入をお願いした。同調査票では殺虫剤および難燃剤の使用状況を中心に質問した。また、対象住宅の居住者全員に「健康に関する調査票」を配布し、アレルギー疾患歴や最近の自覚症状について質問した。なお、回答が困難な未就学児には成人用の調査票から一部抜粋した「未就学児用調査票」を使用した。

4. 室内環境測定

対象住宅におけるピレスロイド系殺虫剤等7物質、有機リン系殺虫剤10物質、有機リン酸エステル類11物質の室内空气中濃度の測定を行った。試料採取には ODS フィルターをセットしたミニサンプラーを用い、居間空気を流量200ml/分で48時間採取し、測定対象物質を捕集した。採取後の試料は分析直前まで冷凍保存した。採取後のフィルターはアセトン0.3mLで10分間超音波抽出し、遠心分離後、内部標準物質を添加し、GC-MS（ピレスロイド系殺虫剤等）およびGC-FPD（有機リン系殺虫剤および有機リン酸エステル類）により測定を行った。なお、各物質のLODは表3-1に示したとおりである。

5. 解析方法

シックハウス症候群（以下、SHS）については Anderson et al, 1988 らによるシックビル症候群質問票日本語版に合わせて、5症状12項目、いずれか1つ以上の項目が SHS1:「よくあった」かつその症状が「自宅の環境によると思う」、と回答した場合 SHS2:「よくあった」あるいは「ときどきあった」かつその症状が「自宅の環境によると思う」、と回答した場合、と定義した。

（倫理面への配慮）

本研究は、それぞれの大学および機関に設置された倫理審査委員会の承認を得ている。また、調査票冒頭に本調査の趣旨を明記するとともに、検査データ等の個人情報厳重な管理の下で扱われている。

C. 結果と考察

1. 調査対象世帯と対象者の属性

1) 殺虫剤と難燃剤の使用状況

4 地域の調査世帯における殺虫剤および難燃剤の使用状況を表1にまとめた。壁材の種類はビニルクロスが全世帯の61.9%であり、難燃剤を使用したカーテン、敷物、壁紙および天井については使用実態が不明という回答が多いものの、全世帯の20%-40%程度で使用している状況であり、各地域には大きな差は見られなかった。一方、殺虫剤についてはシロアリ駆除剤および蚊取薬剤の使用がそれぞれ42.3%、49.5%であり、ゴキブリ駆除剤およびダニ駆除剤の使用はそれぞれ12.4%、6.2%であった。これら殺虫剤については、札幌地区が西日本地区より使用世帯の割合が低い結果であったが、これは同地区が害虫の影響が少ないことと、調査時期が冬季であったためと考えられる。

2) 対象者の属性(健康調査)

調査対象者の属性、アレルギー疾患歴、SHS症状の有訴状況を表2-1(4地域)と表2-2(地域別)にまとめた。対象者は20歳未満と40歳~59歳の年齢階級が多く、現在治療中のアレルギー疾患がある人は全体の14.1%で男女差はあまりみられないが、SHS2の有訴者は全体で14.4%であり、女性の割合がやや高い傾向を示した。症状の地域別の特徴としては、札幌地区ではアレルギー疾患およびSHS2の有訴者の割合が西日本地区より高く、アレルギー疾患では皮膚炎の割合が高く、SHS2症状では鼻、のどまたはせきなどの粘膜症状と皮膚症状の訴えが多い傾向であった。なお、大阪地区はアレルギー疾患およびSHS2の有訴者とも低い傾向であった。

2. 住宅室内空气中の殺虫剤およびリン酸エステル類の濃度

住宅室内空气中の殺虫剤およびリン酸エステル類の濃度の測定結果を表3-1(4地域統合)に示した。殺虫剤については、ピレスロイド系殺虫剤および有機リン系殺虫剤の室内空气中濃度の測定を行った。今回の試料採取法は

従来法に比べ採取量が少なく、低感度であったため、多くの成分で調査世帯における検出率が低い結果であった。殺虫剤成分の中でピレスロイド系殺虫剤であるトランスフルトリンが25.8%の世帯で、共力剤であるs-421が32.0%の世帯で検出された。一方、難燃剤として使用されているリン酸トリエステル類はリン酸トリエチル等の4物質が50%以上の世帯で検出されており、特に、リン酸トリエチルとリン酸トリス(2-クロロイソプロピル)は中央値がそれぞれ50.0ng/m³、47.9ng/m³と比較的高濃度で検出された。

殺虫剤およびリン酸エステル類濃度の地域別濃度の実態を表3-2にまとめた。リン酸エステル類については大きな地域差は認められなかったが、殺虫剤については、ピレスロイド系の殺虫剤であるトランスフルトリンが札幌地区に比べ西日本地区で検出率が高い結果であった。また、シロアリ駆除剤のジクロロボスが大阪地区で、クロルピリホスが北九州地区で検出率が高い傾向を示した。

3. 殺虫剤および難燃剤使用状況と濃度の関係

殺虫剤のうち、比較的検出率の高い成分であったトランスフルトリンとs-421について、室内空气中濃度と各種殺虫剤の使用状況の関係を表4に示した。トランスフルトリンはゴキブリ駆除剤およびダニ駆除剤の使用世帯で検出率が高く、その室内濃度の中央値も高い結果であった。しかし、s-421濃度は殺虫剤の使用状況と関連は認められなかった。

次に、リン酸エステル類のうち、検出率の高かった5成分について、難燃剤の使用状況との関係を表5に示した。この中では難燃カーテンを使用している世帯で、リン酸トリエチル等4物質の検出率と中央値が高い結果であった。

4. 主要成分と症状の関係

調査世帯において検出率の高い成分であったピレスロイド系殺虫剤のトランスフルトリンおよびリン酸トリエチル等5物質について、SHS2(全症状)、SHS2(粘膜症状のみ)の有訴

者およびアレルギー疾患の罹患者との関係をそれぞれ表6-1、表6-2、表6-3にまとめた。その結果、表6-1にあるように、SHS2(全症状)の有訴者とこれら成分の濃度には有意な関連は認められなかった。しかし、表6-2のように、SHS2について、目・鼻・のどやせきの粘膜症状に限定した場合には、リン酸トリエチルの濃度と症状に有意な関連が認められた。また、アレルギー疾患については症状とこれら成分濃度には有意な関連は認められなかった。

D. 結論

今回の調査ではSHS2について、目・鼻・のどやせきの粘膜症状に限定した場合には、リン酸トリエチルの濃度と症状に有意な関連が認められた。しかし、本調査では多地点の調査を実施するため、従来法より小型のポンプを用いており、多くの成分で検出率が低い結果であったため、特に殺虫剤成分と症状との関連を解析するのは困難であった。これについては空气中の殺虫剤成分の濃度は低濃度であり、居住環境の採取は困難なことから、住宅内のダストから定量する等の他の方法を検討する必要がある。また、ピレスロイド系の殺虫剤であるトランスフルトリンの濃度が札幌地区に比べ西日本地区で高い結果であったが、これは殺虫剤の使用頻度(害虫の生育数)の違いによるものか、調査時期が異なった(札幌地区は冬季、西日本地区は夏季)ことが原因か不明であるため、調査時期の統一が必要である。

E. 研究発表

1. 論文発表

Takigawa T, Wang BL, Saijo Y, Morimoto K, Nakayama K, Tanaka M, Shibata E, Yoshimura T, Chikara H, Ogino K, Kishi R. Relationship between indoor chemical concentrations and subjective symptoms associated with sick building syndrome in newly-built houses in Japan. *Int Arch Occup Environ Health* 83; 225-35, 2010

Kishi R, Saijo Y, Kanazawa A, Tanaka M,
Yoshimura T, Chikara H, Takigawa T,
Morimoto K, Nakayama K, Shibata E. Regional
differences in residential environments
and the association of dwellings and
residential factors with the sick house
syndrome: A nationwide cross-sectional
questionnaire study in Japan. Indoor air
19;243-254, 2009.

2. 学会発表

力寿雄. 福岡県における住宅室内環境と住宅
に関連する自覚症状について 平成 22 年度
室内環境学会学術大会 2010.12 横浜

F. 知的財産権の出願・登録状況(予定を含む。)

なし

表1. 調査世帯における殺虫剤および難燃剤の使用状況

	4地域		札幌		大阪		岡山		北九州	
	N = 97	n(%)	N = 40	n(%)	N = 28	n(%)	N = 16	n(%)	N = 13	n(%)
壁材の種類										
ビニルクロス	60	(61.9)	27	(67.5)	16	(57.1)	10	(62.5)	7	(53.8)
布 または 紙	20	(20.6)	8	(20.0)	4	(14.3)	5	(31.3)	3	(23.1)
木材 または 合板	8	(8.2)	5	(12.5)	1	(3.6)	0	(0.0)	2	(15.4)
その他	9	(9.3)	0	(0.0)	7	(25.0)	1	(6.3)	1	(7.7)
シロアリ駆除剤の使用										
はい	41	(42.3)	6	(15.0)	19	(67.9)	9	(56.3)	7	(53.8)
いいえ	14	(14.4)	8	(20.0)	2	(7.1)	3	(18.8)	1	(7.7)
わからない	42	(43.3)	26	(65.0)	7	(25.0)	4	(25.0)	5	(38.5)
ゴキブリ駆除剤の使用										
はい	12	(12.4)	0	(0.0)	6	(21.4)	4	(25.0)	2	(15.4)
いいえ	83	(85.6)	40	(100.0)	20	(71.4)	12	(75.0)	11	(84.6)
わからない	2	(2.1)	0	(0.0)	2	(7.1)	0	(0.0)	0	(0.0)
蚊取薬剤の使用										
はい	48	(49.5)	13	(32.5)	19	(67.9)	8	(50.0)	8	(61.5)
いいえ	47	(48.5)	27	(67.5)	8	(28.6)	8	(50.0)	4	(30.8)
わからない	2	(2.1)	0	(0.0)	1	(3.6)	0	(0.0)	1	(7.7)
ダニ駆除剤の使用										
はい	6	(6.2)	0	(0.0)	1	(3.6)	2	(12.5)	3	(23.1)
いいえ	89	(91.8)	40	(100.0)	25	(89.3)	14	(87.5)	10	(76.9)
わからない	2	(2.1)	0	(0.0)	2	(7.1)	0	(0.0)	0	(0.0)
難燃カーテン										
はい	36	(37.1)	15	(37.5)	7	(25.0)	9	(56.3)	5	(38.5)
いいえ	31	(32.0)	12	(30.0)	9	(32.1)	6	(37.5)	4	(30.8)
わからない	30	(30.9)	13	(32.5)	12	(42.9)	1	(6.3)	4	(30.8)
難燃敷物										
はい	20	(20.6)	8	(20.0)	6	(21.4)	3	(18.8)	3	(23.1)
いいえ	51	(52.6)	23	(57.5)	11	(39.3)	10	(62.5)	7	(53.8)
わからない	26	(26.8)	9	(22.5)	11	(39.3)	3	(18.8)	3	(23.1)
難燃壁紙										
はい	37	(38.1)	16	(40.0)	7	(25.0)	9	(56.3)	5	(38.5)
いいえ	20	(20.6)	9	(22.5)	5	(17.9)	2	(12.5)	4	(30.8)
わからない	40	(41.2)	15	(37.5)	16	(57.1)	5	(31.3)	4	(30.8)
難燃天井										
はい	36	(37.1)	15	(37.5)	7	(25.0)	9	(56.3)	5	(38.5)
いいえ	21	(21.6)	10	(25.0)	5	(17.9)	2	(12.5)	4	(30.8)
わからない	40	(41.2)	15	(37.5)	16	(57.1)	5	(31.3)	4	(30.8)

表2-1. 調査対象者の属性(4地域統合) N=333

	男		女	
	N=156	(%)	N=177	(%)
年齢				
<20	56	(35.9)	56	(31.6)
20-39	31	(19.9)	41	(23.2)
40-59	50	(32.1)	54	(30.5)
≥60	19	(12.2)	25	(14.1)
アレルギー疾患歴(喘息, 皮膚炎, 鼻炎, 結膜炎)				
現在治療中	21	(13.5)	26	(14.7)
以前治療していた	31	(19.9)	43	(24.3)
なし	103	(66.0)	108	(61.0)
喘息 現在治療中	5	(3.2)	5	(2.8)
皮膚炎 現在治療中	10	(6.4)	10	(5.6)
鼻炎 現在治療中	10	(6.4)	16	(9.0)
結膜炎 現在治療中	2	(1.3)	6	(3.4)
SHS2の症状について				
何らかの症状が一つ以上ある	19	(12.2)	29	(16.4)
粘膜症状(目, 鼻, のど, せき)	18	(11.5)	23	(13.0)
目の症状	4	(2.6)	8	(4.5)
鼻の症状	13	(8.3)	20	(11.3)
のどまたはせきの症状	8	(5.1)	16	(9.0)
皮膚症状	4	(2.6)	12	(6.8)
その他の症状	1	(0.6)	6	(3.4)

表2-2. 調査対象者の属性(地域別)

	4地域		札幌		大阪		岡山		北九州	
	N=333	(%)	N=130	(%)	N=104	(%)	N=58	(%)	N=41	(%)
性別										
男性	156	(46.8)	63	(48.5)	46	(44.2)	28	(48.3)	19	(46.3)
女性	177	(53.2)	67	(51.5)	58	(55.8)	30	(51.7)	22	(53.7)
年齢										
<20	112	(33.6)	46	(35.4)	39	(37.5)	19	(32.8)	8	(19.5)
20-39	72	(21.6)	30	(23.1)	13	(12.5)	18	(31.0)	11	(26.8)
40-59	104	(31.2)	38	(29.2)	40	(38.5)	15	(25.9)	11	(26.8)
≥60	44	(13.2)	16	(12.3)	11	(10.6)	6	(10.3)	11	(26.8)
アレルギー疾患歴(喘息, 皮膚炎, 鼻炎, 結膜炎)										
現在治療中	47	(14.1)	23	(17.7)	11	(10.6)	8	(13.8)	5	(12.2)
以前治療していた	74	(22.2)	39	(30.0)	19	(18.3)	11	(19.0)	5	(12.2)
なし	211	(63.4)	67	(51.5)	74	(71.2)	39	(67.2)	31	(75.6)
喘息 現在治療中	10	(3.0)	4	(3.1)	2	(1.9)	0	(0.0)	4	(9.8)
皮膚炎 現在治療中	20	(6.0)	13	(10.0)	3	(2.9)	2	(3.4)	2	(4.9)
鼻炎 現在治療中	26	(7.8)	10	(7.7)	8	(7.7)	7	(12.1)	1	(2.4)
結膜炎 現在治療中	8	(2.4)	4	(3.1)	1	(1.0)	2	(3.4)	1	(2.4)
SHS2の症状について										
何らかの症状が一つ以上ある	48	(14.4)	29	(22.3)	7	(6.7)	7	(12.1)	5	(12.2)
粘膜症状(目, 鼻, のど, せき)	41	(12.3)	25	(19.2)	5	(4.8)	7	(12.1)	4	(9.8)
目の症状	12	(3.6)	5	(3.8)	0	(0.0)	5	(8.6)	2	(4.9)
鼻の症状	33	(9.9)	19	(14.6)	3	(2.9)	8	(13.8)	3	(7.3)
のどまたはせきの症状	24	(7.2)	18	(13.8)	3	(2.9)	2	(3.4)	1	(2.4)
皮膚症状	16	(4.8)	13	(10.0)	0	(0.0)	2	(3.4)	1	(2.4)
その他の症状	7	(2.1)	2	(1.5)	3	(2.9)	0	(0.0)	2	(4.9)