

Fig. 1 アンケートに回答した 100 人の (a) 性別および (b) 年齢の分類

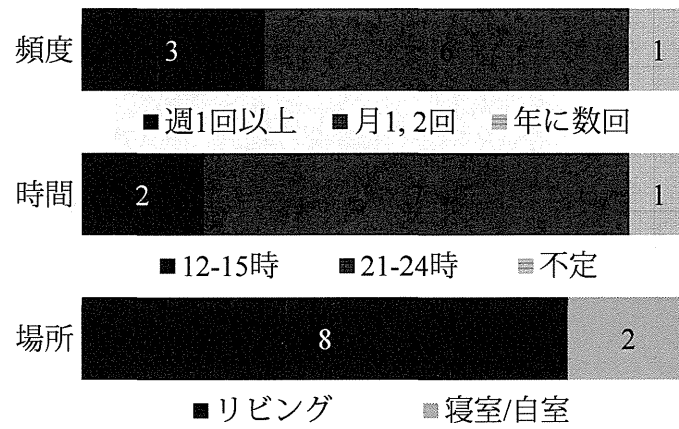


Fig. 2 ジェルネイル製品の使用状況に関するアンケート結果

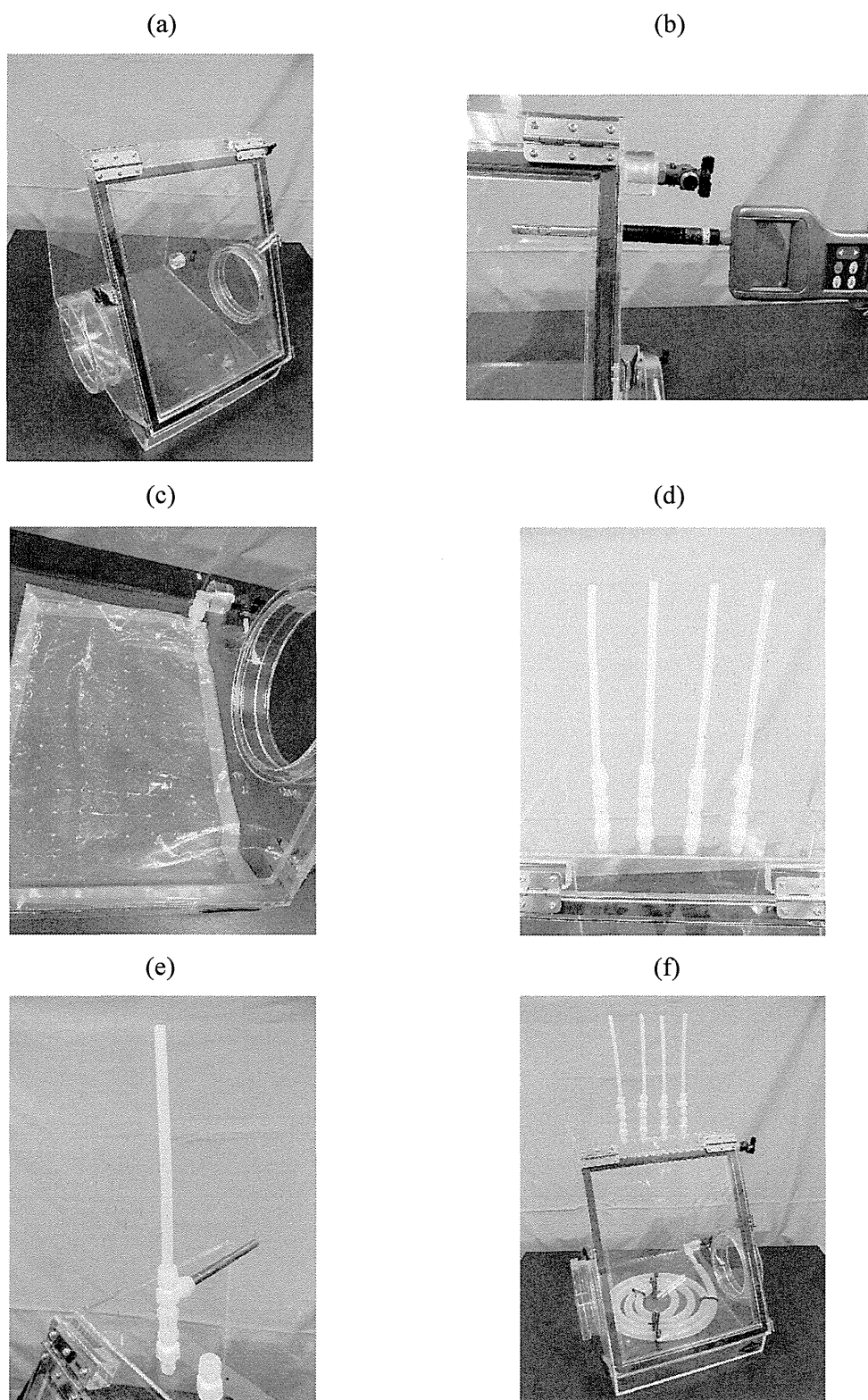


Fig. 3 作製した局所曝露チャンバー

(a) グローブボックス, (b) 温度および気流の計測, (c) 空気の流入方法例, (d) サンプル
 リングポート, (e) サンプルリングポートのベント, (f) 完成した局所曝露チャンバーの全体

厚生労働科学研究費補助金 (化学物質リスク研究事業)
分担研究報告書

家庭用品から放散される揮発性有機化合物/準揮発性有機化合物の
健康リスク評価モデルの確立に関する研究

高残香性衣料用柔軟仕上げ剤中の揮発成分による気道刺激に関する研究

研究協力者 香川(田中)聡子 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部 主任研究官
研究協力者 神野 透人 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部 第一室長
研究協力者 田原 麻衣子 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部
研究協力者 岡元 陽子 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部
研究協力者 川原 陽子 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部
研究協力者 真弓 加織 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部

研究要旨: 衣料用柔軟仕上げ剤は本来繊維を柔らかくすることを目的に使用されるが、2000年代後半から香りの強い海外製の柔軟仕上げ剤がブームとなったのをきっかけに、現在は、芳香性を工夫した商品の市場規模が拡大している。それに伴い、危害情報も含めた柔軟仕上げ剤に関する相談件数が急増しており、呼吸器障害をはじめ、頭痛や吐き気等の体調不良が危害内容として報告されている。本研究では、侵害受容器であり気道過敏性の亢進にも関与することが明らかになりつつある TRP イオンチャンネルに対する柔軟仕上げ剤中揮発成分の影響を検討した。ヒト TRPA1 及びヒト TRPV1 をそれぞれ安定的に発現する Flp-In 293 細胞を用いて、細胞内 Ca^{2+} 濃度の増加を指標として、高残香性衣料用柔軟仕上げ剤から抽出した揮発性成分について TRPA1 及び TRPV1 の活性化能を評価した。製品 2g から抽出した揮発性成分 Methanol 抽出液について活性化能を評価した結果、TRPA1 については 20 製品中 18 製品が濃度依存的に溶媒対照群の 2 倍以上の活性化を引き起こすことが明らかになった。さらに、Methanol 抽出液の GC-MS 分析結果より、揮発性成分として含まれることが判明した Linalool 及び Rose oxide が TRPA1 を顕著に活性化することが明らかになった。これらの結果より、高残香性衣料用柔軟仕上げ剤に含まれる香料成分が TRP イオンチャンネルの活性化を介して気道過敏性の亢進を引き起こす可能性が考えられる。以上の結果は、未だ十分に解明されていないシックハウス症候群や本態性多種化学物質過敏状態の発症メカニズムを明らかにする上でも極めて重要な情報であると考えられる。

A. 研究目的

最近、衣類に香りを付加するという副次的な機能をもった柔軟剤が注目され、さまざまな製品が販売されている。香りを楽しむこと自体は個人の嗜好の範疇ではあるものの、過度の香りによる健康被害が社会的な問題となりつつある。2013年9月に国民生活センターから出された報告書¹⁾によれば、近年「柔軟剤のにおい」に関する相談が増加する傾向にあり、2008年度以降の計187件の相談のうち、60%を超える115件が頭痛や吐き気などの体調不良を訴える内容であった。また、強い芳香のある柔軟剤あるいは微香タイプの柔軟剤を使用した場合、柔軟剤を使用しない場合について、室内空気中の総揮発性有機化合物 (TVOC) を調べた結果、柔軟剤を使用しない場合と微香タイプの柔軟剤を使用した場合では TVOC がそれぞれ約 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 上昇したのに対し、強い芳香のある柔軟剤を使用した場合の TVOC の増加は 3~7 倍 (約 70~140 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) に達することが報告されている。

ただし、TVOC の増加と柔軟剤のにおいによる健康被害を直接結びつけることは困難であり、香料成分によって引き起こされる可能性のある咳や頭痛、吐き気についてもそれらの発生機序が十分に明らかにされていない。

そこで、本研究では Formaldehyde や Acrolein などのアルデヒド類や防腐剤パラベン、抗菌剤など多様な室内環境化学物質の生体内標的分子であり、これらの

化学物質による気道刺激などにも関与する TRPA1 (Transient Receptor Potential Cation Channel, Subfamily A, Member 1) に着目し、柔軟剤の揮発性成分による活性化について検討を行った。

B. 実験方法

B-1. 柔軟剤中の揮発性成分の抽出

残香を謳った衣類用柔軟仕上げ剤 20 製品をドラッグストアあるいはインターネットで試買して実験に用いた。検体とした製品の成分等の情報を表 1 に示す。ディスク型 MonoTrap DCC18 (ジーエルサイエンス) 2 枚を吊した清浄な 40 mL バイアルに柔軟剤 2 g を採り、40°C, 250 rpm で一晚振盪して、気相中の揮発性成分を吸着させた。次いで、MonoTrap ディスクを PTFE 製抽出容器に入れ、Methanol 300 μL を加えて 5 分間超音波処理した。この操作を 2 回行い、得られた Methanol 溶液を合わせて柔軟剤抽出液とした。

B-2. GC/MS による揮発性成分の分析

Methanol 抽出液中の香料成分をガスクロマトグラフ/タンデム型質量分析計で定性した。装置は GCMS-TSQ8030 (島津製作所) を使用し、以下の条件で測定を行った: カラム, Rxi-5Sil MS (30 m x 0.25 mm ID, 0.25 μm); キャリアガス, He, 36 cm/sec (線速度一定); 注入口温度, 200°C; スプリット比, 50; カラム温度, 40°C - 8°C/min - 300°C; トランスファーライン温度, 250°C; イオン源温度, 200°C; イオン化法, EI; 測定モード, SCAN (m/z 35~500, 4

Hz). 香料成分の推定には NIST11 データベース及び FFNSC 1.2 香料ライブラリーを用いた。

B-3. TRP イオンチャネル発現細胞による気道刺激性の評価

ヒト後根神経節 Total RNA より RT-PCR によって TRPV1 及び TRPA1 cDNA を pENTR/D-TOPO Vector にクローニングし、Gateway LR 反応により pEF5/ERT/V5-DEST Vector にサブクローニングした。得られた Plasmid を Lipofectamine LTX をもちいて pOG44 Vector とともに Flp-In 293 細胞に Co-transfection し、Hygromycin B を含む選択培地中で培養を行って耐性細胞株を選択してヒト TRPV1 及び TRPA1 安定発現細胞株を樹立した (TRPV1/HEK293, TRPA1/HEK293)。

樹立したヒト TRPV1 及び TRPA1 安定発現細胞を用いて細胞内 Ca^{2+} 濃度の増加を指標として被検物質による TRPV1 及び TRPA1 イオンチャネルの活性化を評価した。細胞内 Ca^{2+} 濃度の測定には FLIPR Calcium 5 Assay Kit (Molecular Devices, Inc.) を用いた。96-well plate に hTRPV1/Flp-In 293 又は TRPA1/Flp-In 293 を 1well あたり 4×10^4 個播種した。24 時間培養後に、培地を除去し Calcium indicator (Calcium 6) を添加して $37^{\circ}C$ で 1 時間インキュベーションした。柔軟剤 Methanol 抽出液は Calcium 6 添加 1 時間後に最終濃度 1.25% あるいは 2.5% となるように添加し、FlexStation 3 (Molecular

Devices, Inc.) において、被検物質添加後の蛍光強度の経時的な変化を励起波長 485 nm, 蛍光波長 525 nm の条件で測定した。活性化の程度は、相対蛍光強度 (Relative fluorescence units) の差, あるいはそれぞれのイオンチャネルの典型的な活性化物質である Capsaicin (TRPV1) 及び Cinnamic aldehyde (TRPA1) による活性化能に対する比率で示した。評価に用いる化合物は、可能な限り高純度の試薬を入手した。

B-4. 統計的解析手法

結果の解析は Prism 5.00 (GraphPad Software, San Diego, CA) を用いた。

C. 結果と考察

柔軟剤 20 製品の Methanol 抽出液についてヒト侵害刺激受容体 TRPA1 の活性化能を検討した結果, Fig.2 に示したように, 18 製品で用量依存的かつ溶媒対照 (Methanol) の 2 倍を超える TRPA1 の活性化が認められた (図 2(A)). TRPV1 に関しては, 柔軟剤 Methanol 抽出液添加によって活性化される傾向が認められたものの, 溶媒対象の 2 倍を超える活性化は本実験条件下では認められなかった (図 2(B)).

最も高い活性がみられた ID 06 の Methanol 抽出液を GC/MS で測定した結果, Limonene や Linalool の他に, Dihydromyrcenol, Benzyl Acetate, *n*-Hexyl Acetate, Rose Oxide, Methyl Ionone の存在が推定された (図 3)。これらの中で,

Linalool alpha-Isomethyl ionone, Methyl ionone について TRPA1 の活性化を評価した結果, Linalool と Rose Oxide が TRPA1 の活性化を引き起こすことが明らかになった. この 2 化合物について TRP イオンチャンネルの活性化様式について評価した結果, 濃度依存的な TRPA1 活性化能が認められたものの, EC_{50} 値はいずれも 300 μ M 以上であり (図 4), 他に活性の高い香料が存在する可能性あるいは多数の香料による複合的な影響を考慮する必要があると考えられる.

D. 結論

本研究では市販の柔軟剤 20 製品について気道刺激において重要な役割を果たす侵害受容器に対する影響を検討し, 多くの製品中に TRPA1 を活性化する化合物が含まれていることを明らかにした.

E. 健康危険情報

なし

F. 研究発表

論文発表

なし

学会発表

1. 神野透人, 大河原 晋, 岡元陽子, 田原麻衣子, 川原陽子, 真弓加織, 五十嵐良明, 香川(田中) 聡子: 柔軟剤中の香料による気道刺激に関する研究. 平成 25 年室内環境学会学術大会 (2013.12)
2. 香川(田中) 聡子, 大河原 晋, 岡元陽子, 真弓加織, 田原麻衣子, 川原陽子,

五十嵐良明, 神野透人: 衣料用柔軟仕上げ剤中の香料成分によるヒト侵害受容体 TRPA1 の活性化. 日本薬学会第 134 年会 (2013.3)

G. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を含む)

特許取得

なし

実用新案登録

なし

H. 引用文献

1. 柔軟仕上げ剤のにおいに関する情報提供, 独立行政法人国民生活センター, 2013 年 9 月 19 日公表
http://www.kokusen.go.jp/news/data/n-20130919_1.html

表1. 検体情報 (1/2)

ID	品名	成分	用途	使用量の目安	特長・備考
01	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、安定化剤	衣料品用(綿・毛・絹・化学繊維)	衣類1kgに6.7mL	こするとはじける香りのテクノロジー「マジックビーズ」を2種類配合、防臭効果
02	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、安定化剤	衣料品用(綿・毛・絹・化学繊維)	衣類1kgに6.7mL	こするとはじける香りのテクノロジー「マジックビーズ」を2種類配合、防臭効果
03	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、安定化剤	衣料品用(綿・毛・絹・化学繊維)	衣類1kgに6.7mL	こするとはじける香りのテクノロジー「マジックビーズ」を2種類配合、防臭効果
04	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、安定化剤	衣料品用(綿・毛・絹・化学繊維)	衣類1kgに6.7mL	こするとはじける香りのテクノロジー「マジックビーズ」を2種類配合、防臭効果
05	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、安定化剤	衣料品用(綿・毛・絹・化学繊維)	衣類1kgに6.7mL	こするとはじける香りのテクノロジー「マジックビーズ」を2種類配合、防臭効果
06	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)	衣料用(綿、毛、化学繊維など)	水65L(洗濯物量の目安6.0kg)に対して約25mL	香りのマイクロカプセル配合、濃縮タイプ柔軟仕上げ剤
07	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)	衣料用(綿、毛、化学繊維など)	水65L(洗濯物量の目安6.0kg)に対し約25mL	
08	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル)、香料	衣料品用(綿・毛・絹・化学繊維)	衣類1kgに7ml	抗菌・防臭効果、洗濯じわ・静電気を防ぐ、香りの強いタイプ
09	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル)、香料	衣料品用(綿・毛・絹・化学繊維)	衣類1kgに7ml	抗菌・防臭効果、洗濯じわ・静電気を防ぐ、香りの強いタイプ
10	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル)、香料	衣料品用(綿・毛・絹・化学繊維)	衣類1kgに7ml	抗菌・防臭効果、洗濯じわ・静電気を防ぐ、香りの強いタイプ

表1. 検体情報 (2/2)

ID	品名	成分	用途	使用量の目安	特長・備考
11	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル)、香料	衣料品用(綿・毛・絹・化学繊維)	衣類1kgに7ml	抗菌・防臭効果、洗濯じわ・静電気を防ぐ、香りの強いタイプ
12	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、防臭剤、安定剤	綿・毛・絹・合成繊維の柔軟仕上げ用	洗濯物量1.5kgに10ml	天然アロマオイル配合、抗菌効果、ニオイを抑える
13	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、防臭剤、安定剤	綿・毛・絹・合成繊維の柔軟仕上げ用	洗濯物量1.5kgに10ml	天然アロマオイル配合、抗菌効果、ニオイを抑える
14	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、防臭剤、安定剤	綿・毛・絹・合成繊維の柔軟仕上げ用	洗濯物量1.5kgに10ml	天然アロマオイル配合、抗菌効果、ニオイを抑える
15	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、防臭剤、安定剤	綿・毛・絹・合成繊維の柔軟仕上げ用	洗濯物量1.5kgに10ml	天然アロマオイル配合、抗菌効果、ニオイを抑える
16	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、安定化剤、香料	衣料品用(綿・毛・絹・合成繊維)	洗濯物量1.5kgに10ml	香りのピーズ
17	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)、安定化剤、香料	衣料品用(綿・毛・絹・合成繊維)	洗濯物量1.5kgに10ml	香りのピーズ
18	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)	水洗いできる衣料用品(綿・毛・化学繊維など)	洗濯物量1.5kgに15ml	オーガニックエキス配合、花粉吸着を抑制、赤ちゃん用衣類もOK、防臭・抗菌、静電気を軽減
19	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)	水洗いできる衣料用品(綿・毛・化学繊維など)	洗濯物量1.5kgに15ml	オーガニックエキス配合、花粉吸着を抑制、赤ちゃん用衣類もOK、防臭・抗菌、静電気を軽減
20	柔軟仕上げ剤	界面活性剤(エステル型ジアルキルアンモニウム塩)	水洗いできる衣料用品(綿・毛・化学繊維など)	洗濯物量1.5kgに15ml	オーガニックエキス配合、花粉吸着を抑制、赤ちゃん用衣類もOK、防臭・抗菌、静電気を軽減

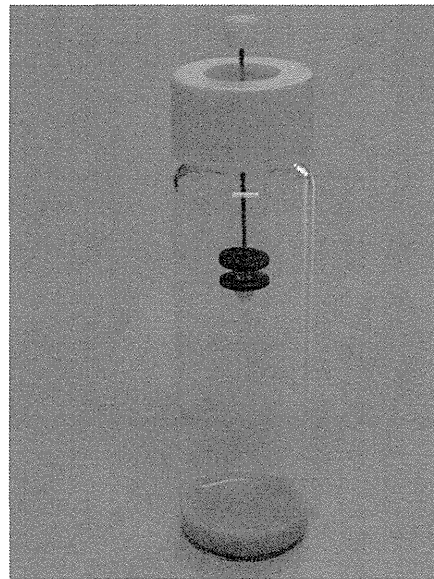
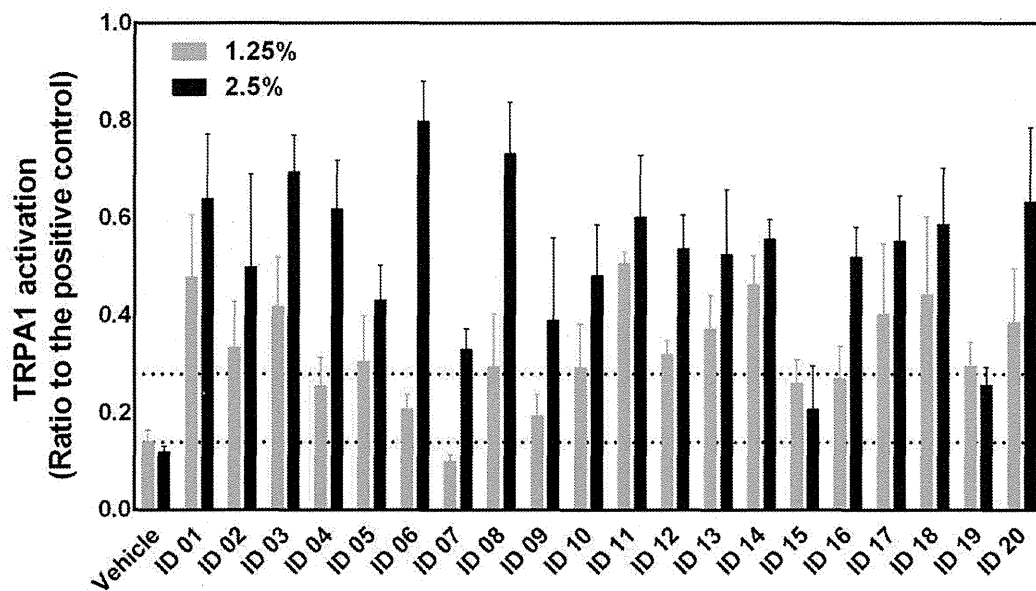


図1 製品中揮発成分の MonoTrap™ 抽出

(A)TRPA1



(B)TRPV1

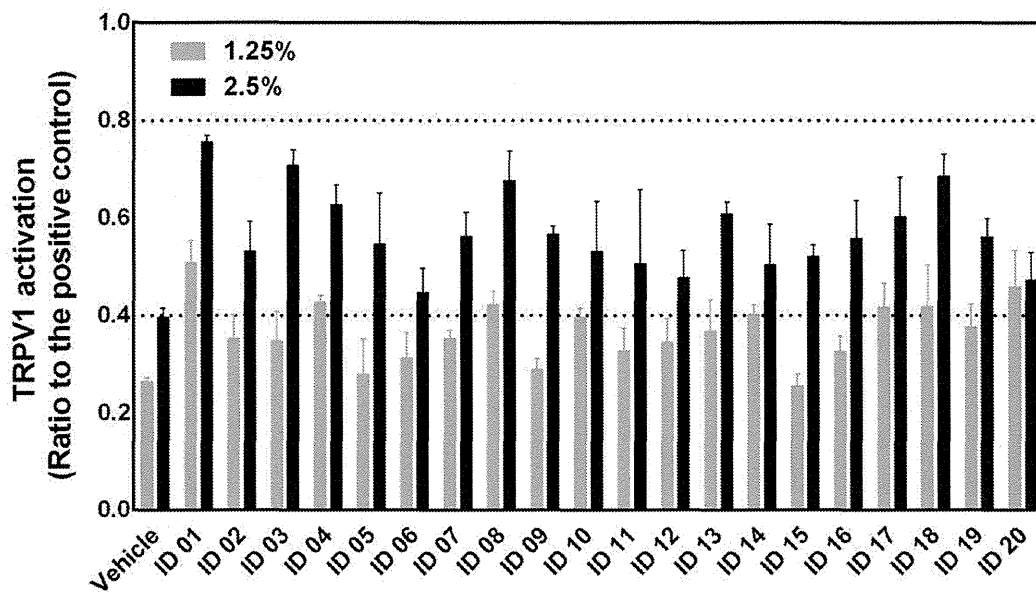


図 2 柔軟剤中の揮発成分によるヒト TRP イオンチャネルの活性化

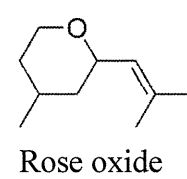
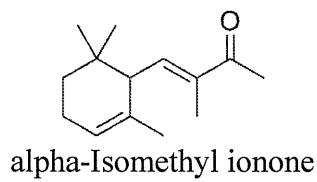
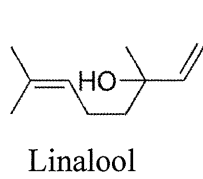
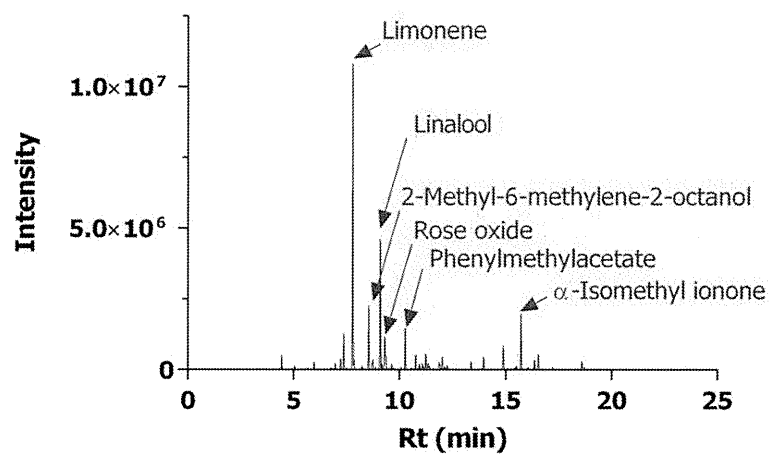
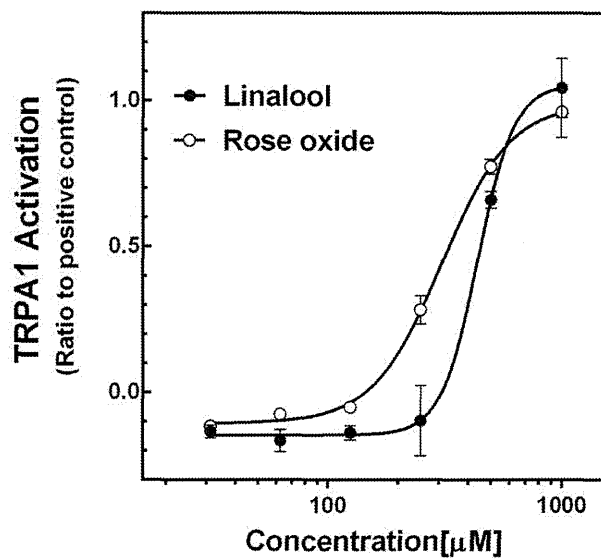


図3 柔軟剤中の揮発成分のGC/MSクロマトグラム (ID 06)

(A)TRPA1



(B)TRPV1

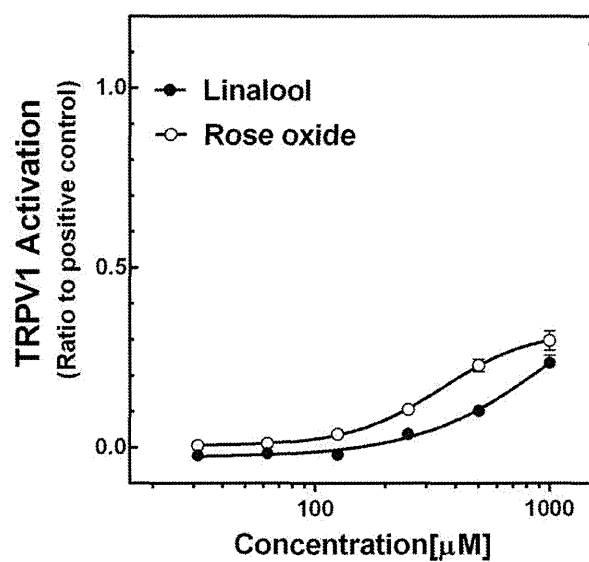


図4 柔軟剤中の揮発成分による TRP イオンチャネルの活性化

厚生労働科学研究費補助金（化学物質リスク研究事業）
分担研究報告書

家庭用品から放散される揮発性有機化合物/準揮発性有機化合物の
健康リスク評価モデルの確立に関する研究

非定常型暴露シミュレーション手法の開発

研究分担者 東野 晴行

独立行政法人 産業技術総合研究所安全科学研究部門

環境暴露モデリンググループ 研究グループ長

研究要旨

既報の一般家庭における衣料用防虫剤の使用状況に関するアンケート結果などを用いた暴露シナリオに基づき、クローゼット内における複数の衣料用収納容器・防虫剤から放散する化学物質の積算量の時間変化の推定式を作成した。容器形状（密閉度）の異なる多種類の衣料用収納容器（プラスチック製ケース、木製チェスト、及び木製タンス）の空気漏洩率を測定し、容器形状別の代表値を設定した。衣料用収納容器、収納空間、及び居室の各空間をリンクしたマルチボックス（マルチゾーン）モデルを開発し、時間分解暴露シナリオを考慮した収納空間内の空气中化学物質濃度の推定手法を開発した。開発した手法を用いて化学物質の室内空气中濃度及び吸入暴露濃度の推定した結果、吸入暴露量に対するクローゼット内暴露の寄与率は2.2～28.0%の範囲内であることを明らかにした。

A. 研究目的

室内環境はヒトの生涯のうち最も長く過ごす場所であり、吸入暴露評価においてきわめて重要である。室内環境中の化学物質濃度は多様性に富む製品の、多様な使用方法・使用形態によって化学物質が空气中に放散することで成り立っている。家庭内にある製品には構成的な放散源と一過性の放散源となるものがあり、前者の放散速度はほぼ一定、すなわち定常的な放散と見なせるのに対して、後者

は使用時のごく短期間に放散がみられるがその他の時間には放散が認められないなどの定常的な放散とは見なせない、すなわち非定常的な放散であると考えられる。

これまで行われた国内一般住宅の実態調査では、トルエンやキシレンなどの室内濃度は減少傾向が見られ、厚生労働省の室内空气中化学物質の室内濃度指針値の超過も少ない（国交省 2006）。一方で、防虫剤の主成分として用いられている *p*-

ジクロロベンゼンは高濃度の検出事例があり、多くの調査でガイドラインを超過している（たとえば国衛研 2013）。*p*-ジクロロベンゼン濃度は居住者のライフスタイルに依存し、住宅間の差が大きく、さらにクローゼット・押入の扉の開閉などの生活行動の違いによっても暴露濃度が大きく異なる可能性がある。したがって試料採取時間が限定される実態調査のみで暴露評価を実施することに限界がある。

放散速度が変化する事例としては使用頻度や使用時間などのライフスタイル以外に製品の材料の性質として含有している化学物質の減少に伴い変化する場合も知られている。この変化には一次減衰モデルや二重一次減衰モデルの適用および計算パラメータの推定が実施されており、室内濃度の推定には欠くことのできない情報の一つである。しかしながらこれらの情報は統一的に管理されている訳ではなく、放散速度の減衰を推定するには文献検索から始める必要があり、事業者や行政機関における吸入暴露評価の実施の障害となっている。

そこで本研究では、非定常型暴露シミュレーション手法の開発を目的として、防虫剤の暴露評価に必要な衣類用収納容器の開閉別空気漏洩率、既存の放散速度データの収集とデータベースの作成、防虫剤を対象としたシミュレーション手法の開発を実施した。

B. 研究方法

B.1 衣料用収納容器等の空気漏洩率の測定

B.1-1 測定方法

漏洩は容器と容器外との空気の交換、すなわち換気と考え、住居環境における換気回数測定法の一つである二酸化炭素（CO₂）減衰法（JIS A1406）に準じて算出した換気回数を空気漏洩率とした。

換気回数の測定は、防水コンクリートパネルで作成した簡易チャンバー（3.6 m³）の中央の高さ約 60 cm に設置した対象容器に CO₂ ガスを封入し、容器の開口部を閉じた条件で 10 分間、開口部を開いた条件で 10 分間の CO₂ 濃度の変化を測定した。CO₂ 濃度は、容器内の 2 箇所、チャンバー内の 3 箇所、チャンバー外の 1 箇所に設置した CO₂ ワイヤレスデータロガー（ティアンドデイ社製、RTR-576）で測定し、それぞれの平均値を当該箇所の CO₂ 濃度とした。換気回数は CO₂ 濃度の測定値とワンボックスモデルによる予測値の差分が最小となるように算出した。ワンボックスモデルは以下の式である。

$$\text{式 1 } V \frac{dc}{dt} = Q C_0 - Q C$$

ここで、 V は容器容積（m³）、 C は容器内の CO₂ 濃度（ppm）、 Q は 1 時間当たりの換気量（m³/h）、 C_0 はチャンバー内の CO₂ 濃度（ppm）である。換気回数（回/h）は Q を V で除することで算出することができる。

B.1-2 衣料用収納容器

茨城県つくば市近郊のホームセンターおよびインターネットサイトで一般に販売されていた衣類用収納容器や家具等を購入し、測定に供した。対象とした衣類用収納容器は、樹脂あるいは布製収納容器の 18 種類、カラーボックスやタンスの

ような家具の 11 種類、その他の 1 種類、合計 30 種類 (図 1～図 11) である。衣類用収納容器の詳細を表 1 に示した。

B.2 既存放散速度データの収集

B.2-1 文献の収集

2000 年以降の建築学会、室内環境学会などの学術論文誌、口答発表要旨集を中心に、厚生労働省科学研究費報告書、接着工業会、日本塗料工業会等の関連団体が作成した調査報告書なども対象として、網羅的に文献を収集した。

B.2-2 データの選択

文献には、20L チャンバーを用いた試験結果、実環境での放散速度測定結果などが含まれる。本研究では、1.放散速度の時系列変化、2.放散速度の時系列変化が計算可能な (チャンバー内) 濃度、3.ある時点の放散速度の 3 つをデータとして採用した。

B.2-3 データベースの作成

データベースは汎用性、利用性を考慮して表計算ソフトウェアであるマイクロソフトエクセルを用いて構築した。

B.3 非定常型暴露シミュレーション手法の開発

B.3-1 シミュレーション手法

防虫剤の評価を一つの例として、濃度推定方法の検討を実施した。まず防虫剤の使用を想定した暴露シナリオを想定し、次に典型的な暴露シナリオを選択した。室内暴露評価ツール (iAIR) を参考として、選択した暴露シナリオを簡易な数式

として記述し、マイクロソフトエクセルを用いてモデルケースの計算を実施した。モデルケースとしては、8 畳間に併設されたクローゼット内に一般的な密閉型樹脂製収納容器を設置しているとしたシナリオを設定し、室内濃度などを計算した。この時、クローゼット使用時はクローゼット内の空気を吸入すると仮定した。

加えて、使用時間や使用状態などが分単位で変化することを考慮できる時間分解暴露シナリオを想定したシナリオとして、ある日の 10:30 にクローゼット内の密閉型収納容器に防虫剤を設置し、1 日 3 回 (7:30、10:30、19:30)、1 回 3 分クローゼットに立ち入ると仮定したシナリオを設定し、室内濃度などを計算した。

B.3-2 暴露係数

B.3-1 の暴露シナリオの選択やモデルケース計算に必要な暴露係数は、(独) 産業技術総合研究所と (独) 製品評価技術基盤機構が行ったアンケート調査結果 (AIST&NITE 2010) を参考として設定した。検討したデータは、防虫剤の各部屋別使用者率、押入・クローゼットで使用している防虫剤の種類・個数、押入・クローゼットの家具の種類と個数、ウォークインクローゼットの使用回数と滞在時間、寝室の滞在時間などである。

クローゼットの換気回数としては、一般住宅を対象とした実測値を用いた (産総研 2013)。採用した値は、平均値の 2.3 回/h、最小値の 0.5 回/h、最大値の 5.4 回/h である。

C. 結果

C.1 衣料用収納容器等の空気漏洩率の測定結果

図 12 に樹脂製収納容器 T-8 における CO₂ 濃度の測定例を示した。約 3,000 ppm を目標として CO₂ ガスを封入し、はじめに開口部を閉じた条件、次に開口部を開いた条件での測定を 1 組として合計 6 回の測定を実施した。

図 13 に衣料用収納容器等の換気回数の測定結果を示した。開口部を閉じた条件では、平均（標準偏差）1.5（2.2）回/h で、0.13～8.82 回/h の範囲であった。比較的高い換気回数であった衣類用収納容器は、ハンガーラック Y-9（8.8±1.0 回/h）、カラーボックス用布製ケース Y-7（6.7±0.8 回/h）、簡易型布製ケース Y-5（6.3±0.2 回/h）であった。一方、比較的低い換気回数であった衣類用収納容器は、密閉型樹脂製収納容器 I-1（0.13±0.04 回/h）、密閉型樹脂製収納容器 T-9（0.17±0.01 回/h）、引出型樹脂製収納容器 T-4（0.17±0.05 回/h）であった。開口部を開いた条件では、平均（標準偏差）45.5（26.3）回/h で、8.74～122 回/h の範囲であった。比較的高い換気回数であった衣類用収納容器は、カラーボックスの木製引出 I-4（122±22 回/h）、簡易型布製ケース Y-6（91±9.2 回/h）、樹脂製収納容器 Y-3（89±8.5 回/h）であった。一方、比較的低い換気回数であった衣類用収納容器は、木製チェスト Ns-4（8.7±0.6 回/h）、密閉型樹脂製収納容器 T-9（16±1.9 回/h）、密閉型樹脂製収納容器 T-6（18±2.3 回/h）であった。開いた条件の換気回数は閉じた条件の換気回数と比較すると 10～100 倍高かった。

種類別の開口部を閉じた場合の換気回

数は、密閉型衣類用収納で 0.2 回/h（n=8）、引出型収納容器で 0.4 回/h（n=6）、チェストで 2.4 回/h（n=4）、カラーボックスで 3.1 回/h（n=3）、洋服ダンスで 3.5 回/h（n=3）、簡易型収納容器で 5.1 回/h（n=2）であった。一方、開口部を開いた場合の換気回数は、チェストで 31 回/h（n=4）、密閉型収納容器で 31 回/h（n=8）、引出型収納容器で 35 回/h（n=6）、洋服ダンスで 44 回/h（n=3）、簡易型収納容器で 73 回/h（n=2）、カラーボックスで 89 回/h（n=3）であった。

C.2 既存放散速度データの収集

2000 年以降の放散速度に関する文献を収集した。その結果、939 報（約 10,000 頁）の文献、要旨、報告書等があった。本研究では 1. 放散速度の時系列変化、2. 放散速度の時系列変化が計算可能な濃度、3. ある時点の放散速度のいずれかのデータの記載がある文献を抽出し、合計約 21,616 件のデータをデータベースに入力した。データベースの項目は、文献名・著者名など文献情報、換気回数条件・チャンバーサイズなどの測定方法、製品名・製品サイズなどの製品情報と、化学物質名、測定時間、放散速度である。作成したデータベースの一部を図 14 に示した。

C.3 非定常型暴露シミュレーション手法の開発

暴露シナリオを作成する上で、防虫剤の使用形態を検討した。まず衣料用収納容器に防虫剤を入れる使い方、これには部屋に衣料用収納容器を置く場合（化学物質の流れとしては防虫剤→衣類用

収納容器→部屋)と押入・クローゼットに置く場合(防虫剤→衣類用収納容器→押入→部屋)の2つが考えられる。また衣類用収納容器ではなく洋服ダンスやチェストなどの家具を置く場合でもほぼ同じ経路が考えられる。一方で、衣類用収納容器や家具内に設置しない使用状況としてウォークインクローゼット内に直接設置する場合(防虫剤→クローゼット→部屋)がある。

(独)産業技術総合研究所と(独)製品評価技術基盤機構が行った1,715人に対するアンケート(AIST&NITE 2010)によると、防虫剤の各部屋別使用者率は寝室(押入等を含む)で61%、居室(押入等を含む)で11%、ウォークインクローゼットで13%であり、寝室での使用が多数を占める。寝室では部屋(対象空間に設置した家具内を含む)で85%、押入・クローゼット(対象空間に設置した家具内を含む)で87%とほぼ同数であった。やや多い押入・クローゼット内での防虫剤の使用としては、引出・衣装ケース用が88%、吊下タイプが66%、その他タイプが36%であった。アンケート回答者全員に対する押入・クローゼット内の家具の所有率としては、衣装ケースが57%、洋服ダンスが32%、カラーボックスが20%であった。以上のことから典型的な暴露シナリオとして防虫剤を衣装ケースに入れ、押入・クローゼットに置く場合(防虫剤→衣類用収納容器→押入→部屋)を想定することが妥当だと考えられた。なお、アンケート回答者のほぼ半数がここで暴露シナリオとして選択した使用形態であると思われる。

衣類用収納容器、クローゼット、部屋のそれぞれの化学物質を推定するために3ボックスモデルを用いた。モデルケースとして、8畳間に併設されたクローゼット内に4個の一般的な密閉型樹脂製収納容器を設置しているとしたシナリオを設定した。衣類用収納容器内で使用する防虫剤は一般的な使用量として3個/容器とした。また暴露評価には、クローゼットの使用時間としてウォークインクローゼットの滞在時間の平均0.11h/日、97.5パーセンタイル0.38h/日を採用し、寝室滞在時間は8.21h/日を用いた。上記の暴露係数はいずれもアンケート調査結果(AIST&NITE 2010)より算出した。この結果、いずれの計算においても部屋内濃度(約950 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)には大きな差がなかったが、クローゼット内濃度は図15のように異なっていた。クローゼットや寝室の滞在・使用時間を考慮して暴露濃度を推定したところ、330~430 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と計算され、暴露濃度に対するクローゼット内暴露の寄与率は2.2~28%であった。

また、図16に仮想的な時間分解暴露シナリオを設定して推定した各空間濃度を示した。シナリオで設定したクローゼットの扉を開くとクローゼット内濃度が約50%まで低下し、扉が閉じると徐々に平衡濃度へ達し、その回復の時間は約60分であった。一方、部屋内の濃度はクローゼット使用時に約20%上昇し、扉が閉じると徐々に平衡濃度へ達し、その回復の時間は約40分であった。

D. 考察

D.1 衣料用収納容器等の空気漏洩率に

ついて

本研究では、開口部を閉じた場合と開いた場合の空気漏洩率（換気回数）の測定を実施した。これまでも開口部を閉じた場合の換気回数については報告例（神野 2009）があり、本研究の結果はこの既存の測定結果とおおむね一致していた。

一方、開口部を開いた場合の換気回数データはこれまで得られてなかった。本研究において容器形状の異なる多数の衣類用収納容器を対象として調査を実施したことで、代表的な容器形状について開閉別に換気回数を設定することが可能となり、この結果は暴露評価の精緻化に寄与するものと考えられる。

容器容積の異なる同一商品シリーズの測定結果を見ると、容器容積が大きくなると換気回数が小さくなる傾向が認められた。容器の開口部面積が同じであり、計測された換気量も一部を除きほぼ同じであったことから、容器容積が大きくなったために換気回数が小さくなったものと推察される。

今回測定対象とした家具は全て低価格帯・普及価格帯の商品であり、樹脂製チェストや木製チェストの一部では、壁部分や引出の受け側の上下左右に仕切がない場合があった。このような開口部の大きな製品は換気回数も大きく、多くの防虫剤成分が居室内に拡散する可能性がある。

D.2 既存放散速度データの収集

今回は 939 報（約 10,000 頁）の文献を収集した。学術文献以外の報告書なども

調査対象としたため、想定より多くのデータが収集できた。ただし、本研究では一次文献のみを対象とし、二次文献についてはデータを網羅的に収集していない。また、建築学会や室内環境学会を中心に文献を検索したことから、その他の学会で公表されているデータの検索は十分ではない。今後、これらの情報の取得が必要であろう。

データは 1. 放散速度の時系列変化、2. 放散速度の時系列変化が計算可能な濃度、3. ある時点の放散速度のいずれかとした。3 の条件が実験的にも簡易で、放散量が多い放散初期のデータであることから、データ数が多かった。一方で、測定に長期間必要で、装置を占有する濃度または放散速度の時間変化の測定結果は少なかった。このような放散初期段階の放散速度を用いて暴露評価を行う場合は「安全側」の評価になるため、スクリーニング的な暴露評価では大きな問題にはならない。しかしながら、実際の暴露状況と比較すると大幅な過大評価となっている可能性があり、条件が厳しい場合の詳細な暴露評価には更なる情報収集が必要である。

D.3 非定常型暴露シミュレーション手法の開発

本研究結果によると、衣類用収納容器、押入、部屋の濃度は約 36 時間で平衡に達する。ただし、本来は壁面などへの化学物質の吸着反応、その逆の脱着反応があり、濃度平衡となる時間は本研究の推定結果よりも遅くなると思われる。

本研究では暴露濃度についての推定も実施したが、クローゼットの使用時間に

関する情報が得られなかったことから、ウォークインクローゼットの滞在時間を代わりに用いたことに注意が必要である。なお、一般的にはウォークインクローゼットの滞在時間はクローゼットの使用時間よりも長いと想定されることから、推定結果は過大評価と推察される。

本研究の結果は、クローゼットの換気回数、クローゼットの使用時間の違いによって推定結果に幅が生じている。クローゼットの滞在時間に平均を用いた場合、クローゼットでの暴露は寝室での暴露に対して 2.2~9.8%の寄与となり、97.5%ileを用いた場合には 7.6~28%の寄与であった。なお、この計算ではクローゼットの扉を開閉したときの部屋への化学物質流入は考慮していない。実環境では一時的な部屋濃度上昇が見られたはずである。

そこで、実際の使用を考慮して、クローゼットの扉開閉を再現した時間分解暴露シナリオを用いた推定もあわせて実施した結果、どの空間においても数時間以内には平衡濃度に達した。したがって、扉の開閉が長期的な濃度変化のトレンドに及ぼす影響は少ないと考えられる。しかしながら、クローゼット使用時に部屋の濃度の上昇が認められており、クローゼット使用者以外の部屋の滞在者の暴露濃度が増加すると思われる。部屋滞在者の詳細な評価には、クローゼット使用時の部屋の滞在者に関する代表的な暴露シナリオを設定する必要があるが、現在ではシナリオを設定できる情報が少なく今後の課題である。

E. 結論

容器形状（密閉度）の異なる多種類の衣料用収納容器（プラスチック製ケース、木製チェスト、及び木製タンス）の空気漏洩率を測定し、容器形状別の代表値を設定した。衣料用収納容器、収納空間、及び居室の各空間をリンクしたマルチボックス（マルチゾーン）モデルを開発し、時間分解暴露シナリオを考慮した収納空間内の空気中化学物質濃度の推定手法を開発した。開発した手法を用いて化学物質の室内空気中濃度及び吸入暴露濃度の推定した結果、吸入暴露量に対するクローゼット内暴露の寄与率は 2.2~28.0%の範囲内であることを明らかにした。

F. 参考文献

- 1) 国土交通省 2006. 新築住宅における化学物質濃度の実態調査.
- 2) 国立医薬品食品衛生研究所 2013. 平成 24 年度室内空気汚染全国実態調査・新築住宅調査結果の概要. 第 17 回シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会 配付資料.
- 3) JIS A1406. 屋内換気量測定方法（炭酸ガス法）.
- 4) （独）産業技術総合研究所と（独）製品評価技術基盤機構 2010. 生活行動パターン情報等のアンケート調査.
- 5) （独）産業技術総合研究所 2013. 室内環境における消費者製品に含まれる化学物質の管理手法の開発報告書.
- 6) 神野透人 2009. 化学物質、特に家庭内の化学物質の暴露評価手法の開発に関する研究総括・分担研究報告.