

Table 7 家庭用品 16-30 からの放散速度および気中濃度増分予測値

No.	用途	品名	放散速度 ( $\mu\text{g}/\text{unit}/\text{h}$ )			気中濃度増分予測値 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )					
						呼吸器近傍			室内空気		
			ICA	PIC	PhI	ICA	PIC	PhI	ICA	PIC	PhI
16		セメダイン シューズドクターN									
17		超強力接着剤 ボンドウルトラ多用途 S・U	0.0670			0.134			0.00670		
18	接着剤	ボンド 1液型ウレタン樹脂系接着剤 床職人			0.0154			0.0308			0.00154
19		ウレタンフォーム 住まいるフォームmini	0.0191		0.159	0.0381		0.318	0.00191		0.0159
20		室内引き戸のすきまを防ぐ新ソフトテープ	122			244			12.2		
21	合成樹脂塗料	水性つやありEXE	0.0371			0.0742			0.00371		
22		環境対応塗料高品質 水性ウレタンニス	0.0527			0.105			0.00527		
23		SPARA オーダーカーペット	16.2			32.4			12.9		
24		快適音静 軽量 スゴ静 コニー	31.4			62.9			25.2		
25	カーペット等	EXマイクロファイバーマット	45.9			91.8			36.7		
26	床用敷物	低反発高反発フランネルラグマット	30.2			60.3			24.1		
27		ジーロックフローリング	148			296			118		
28		45cm正方形フローリングマット	82.3	5.02		165	10.0		65.9	4.02	
29	壁紙等	サンゲツ/ウレタンコート	82.6			165			231		
30		ビニールレザー	89.6	8.37		179	0.837		251	23.4	

Table 8 GC/MS シミラリティ検索結果

No.	用途	主な検出化合物	
1		Butylated Hydroxytoluene	2-Ethyl-1-hexanol
2		2,2,4,6,6-Pentamethylheptane	2,2,4,4-Tetramethyloctane
3	枕	<i>p</i> -Dichlorobenzene	2-Ethyl-1-hexanol
4		Triethyl phosphate	<i>n</i> -Octane
5		Triethylenediamine	Bis(2-(Dimethylamino)ethyl) ether
6		Octane	<i>n</i> -1-Octene
7	アイロン台	2,2,4,6,6-Pentamethylheptane	Hexamethylcyclotrisiloxane
8		<i>p</i> -Dichlorobenzene	Hexamethylcyclotrisiloxane
9		Octane	2,4,6-Trimethyloctane
10		Isobornyl acrylate	2-Hydroxyethyl methacrylate
11		Decamethyltetrasiloxane	Diketone alcohol
12	ジェルネイル	Isobornyl acrylate	Diketone alcohol
13		<i>n</i> -Butyl acetate	Isobornyl methacrylate
14		Diketone alcohol	2-Hydroxypropyl methacrylate
15		2-Hydroxyethyl methacrylate	Octamethyltetrasiloxane
16		2,2,4,6,6-Pentamethylheptane	2,2,4,4-Tetramethyloctane
17		<i>n</i> -Undecane	Toluene
18	接着剤	Ethyl Acetate	<i>n</i> -Pentanal
19		Bis(2-chloroisopropyl) ether	Toluene
20		1-Butanol	Butylated Hydroxytoluene
21	合成樹脂塗料	Butyl glycol	1-(2-Hydroxy-1-methylethyl)- 2,2-dimethylpropyl 2-methylpropanoate
22		1-(2-Hydroxy-1-methylethyl)- 2,2-dimethylpropyl 2-methylpropanoate	3-Hydroxy-2,4,4-trimethylpentyl 2-methylpropanoate
23		2,2,4,6,6-Pentamethylheptane	Hexamethylcyclotrisiloxane
24		2,2,4,6,6-Pentamethylheptane	Hexamethylcyclotrisiloxane
25	カーペット等	<i>n</i> -Octane	2,5,6-Trimethyldecane
26	床用敷物	2,2,4,6,6-Pentamethylheptane	Hexamethylcyclotrisiloxane
27		Toluene	2-Ethyl-1-hexanol
28		2,2,4,6,6-Pentamethylheptane	Formamide
29	壁紙等	<i>n</i> -Octane	<i>n</i> -1-Octene
30		Dimethylformamide	<i>n</i> -Octane

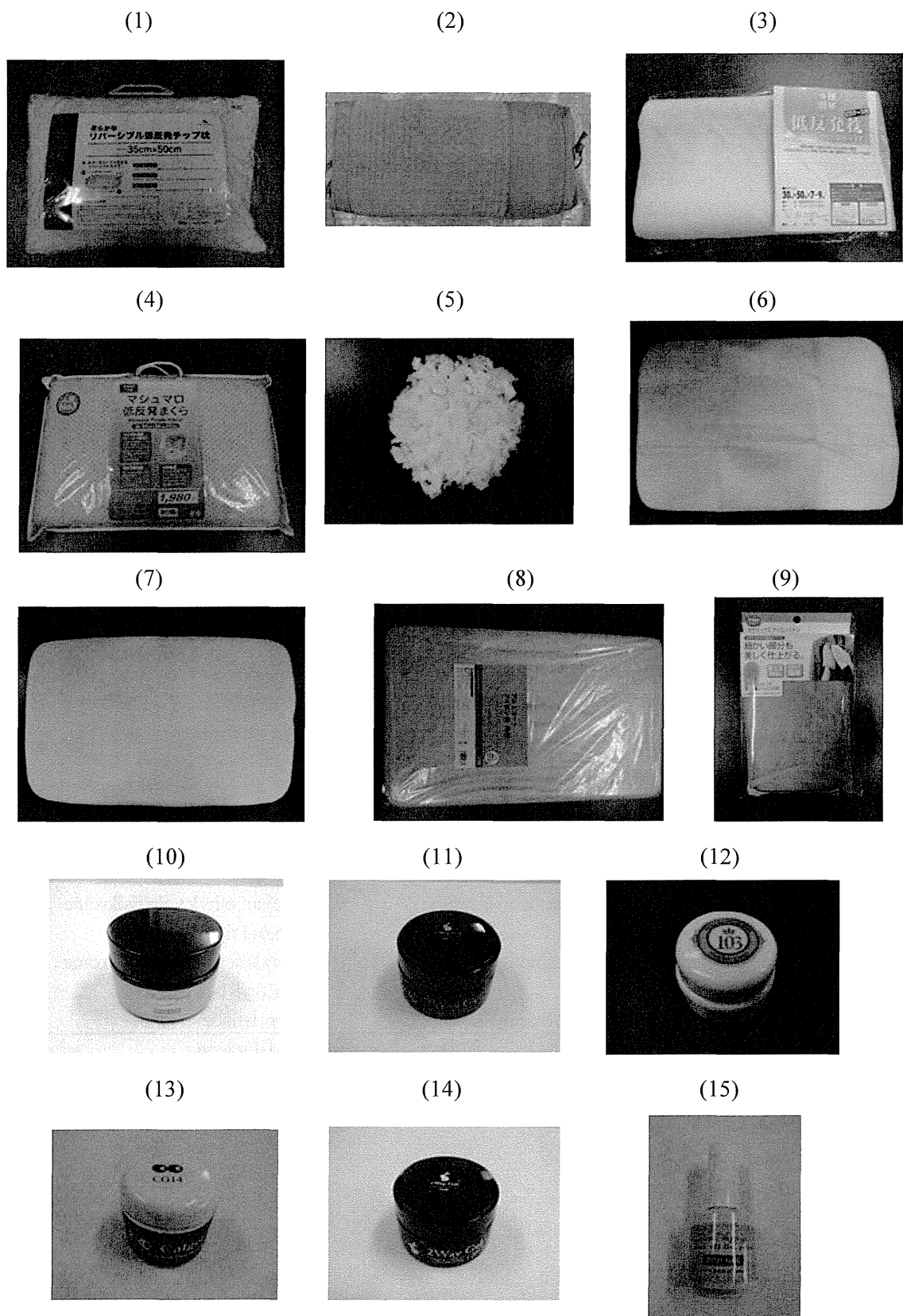
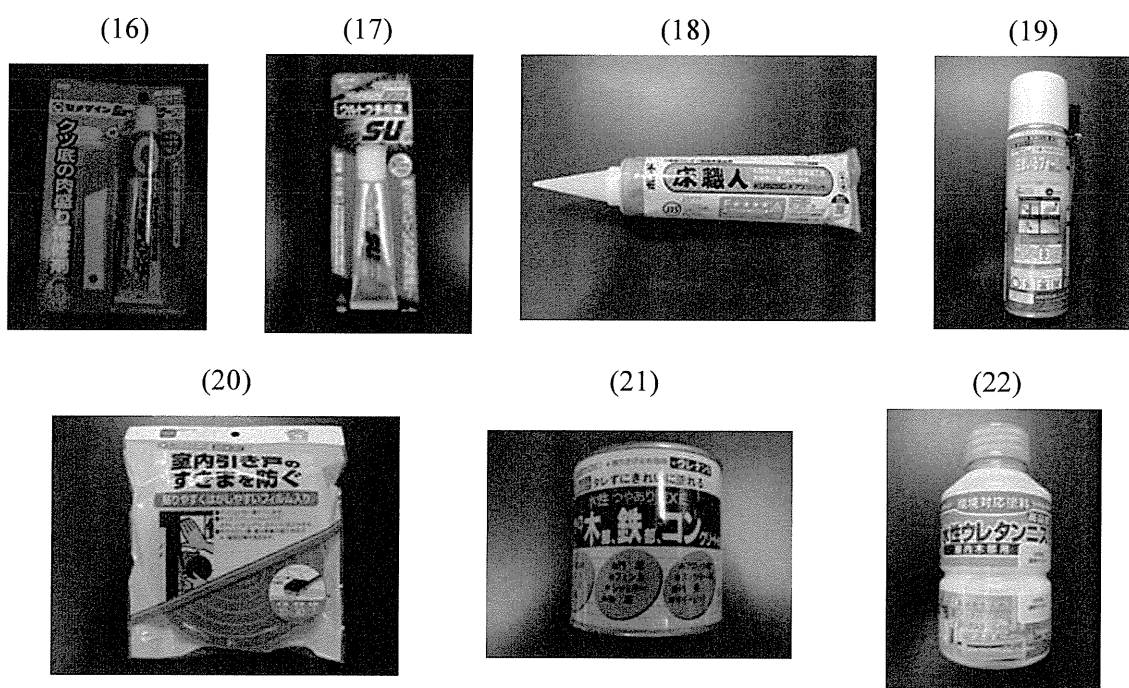


Fig. 1 試験に供したウレタン製家庭用品 30 製品の写真 (番号は Table 1 に該当)



(23-30) 上段左から 23-26, 下段 27-30

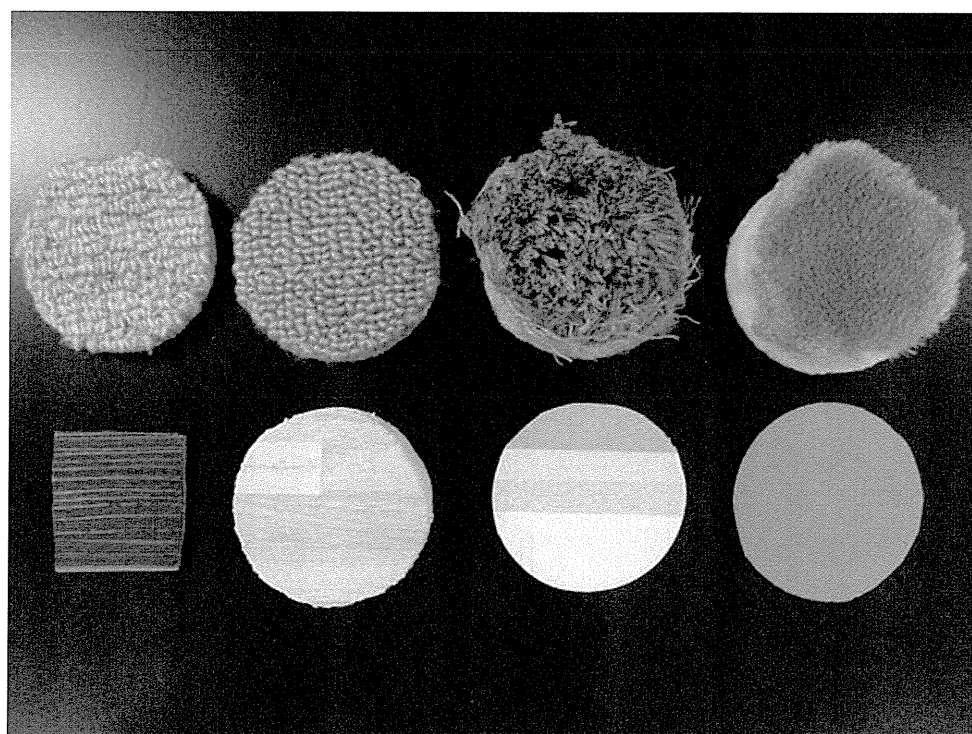


Fig. 1 の続き 試験に供したウレタン製家庭用品 30 製品の写真 (番号は Table 1 に該当)

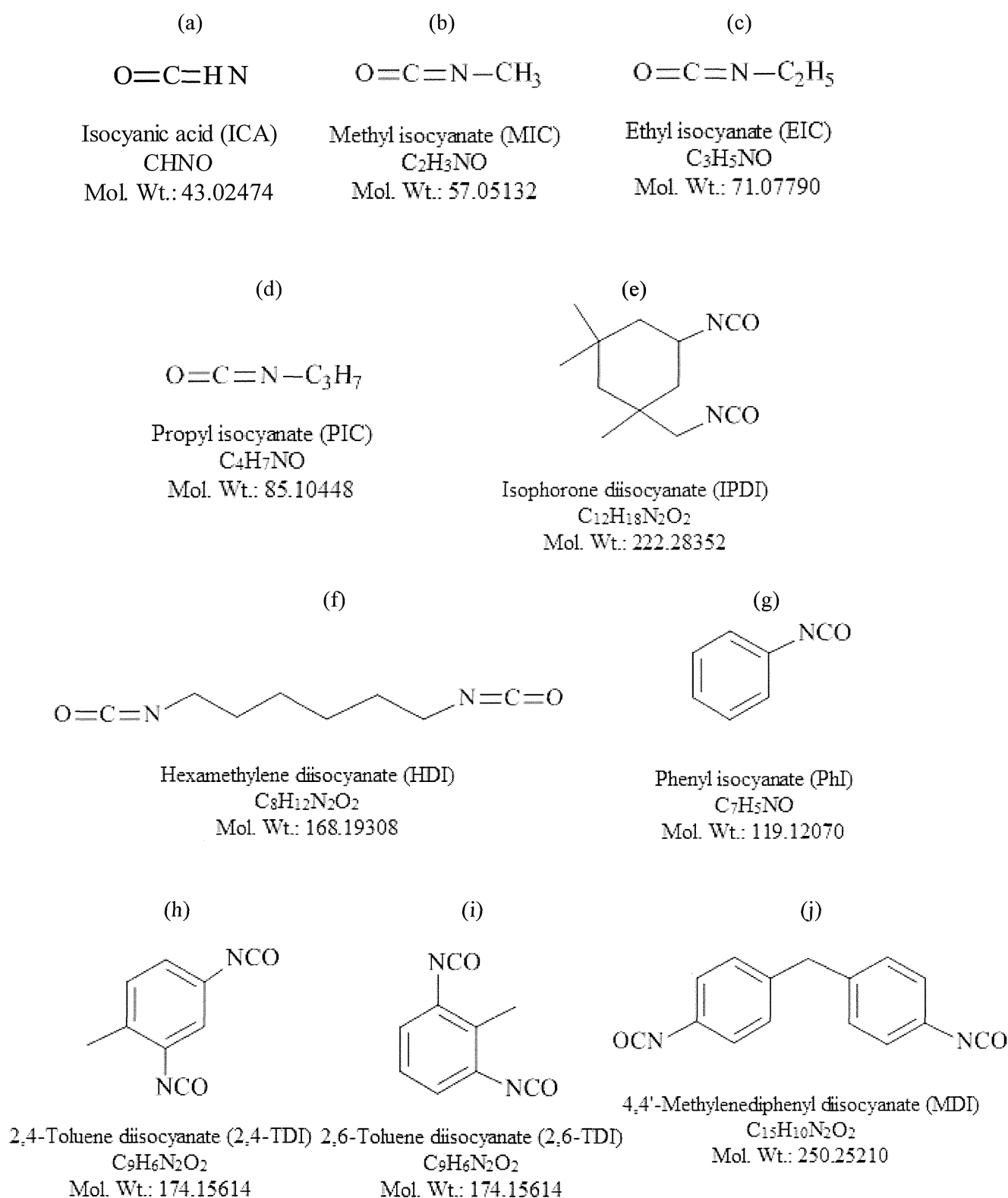


Fig. 2 測定対象としたイソシアネート類 10 種

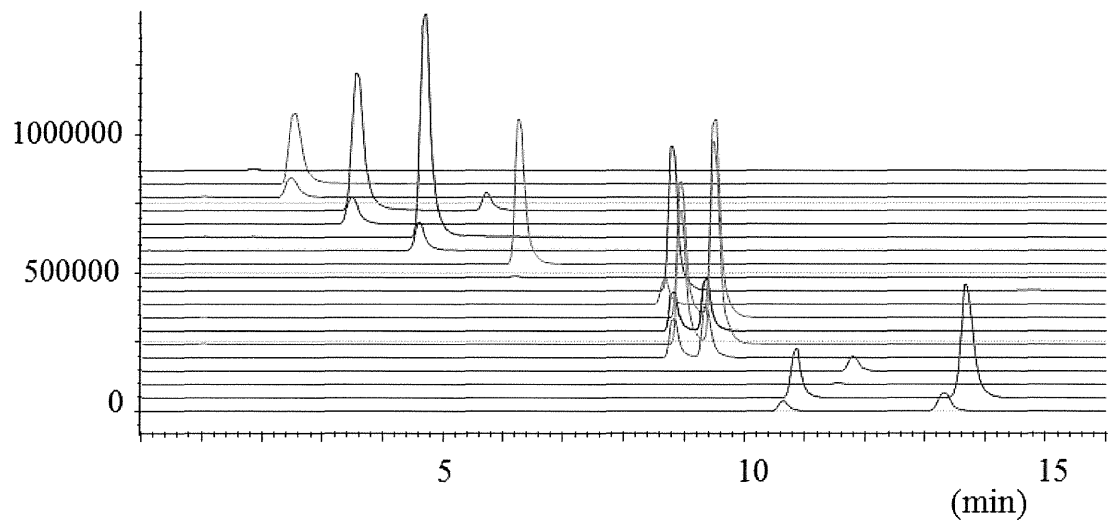


Fig. 3 最適化した条件におけるクロマトグラム



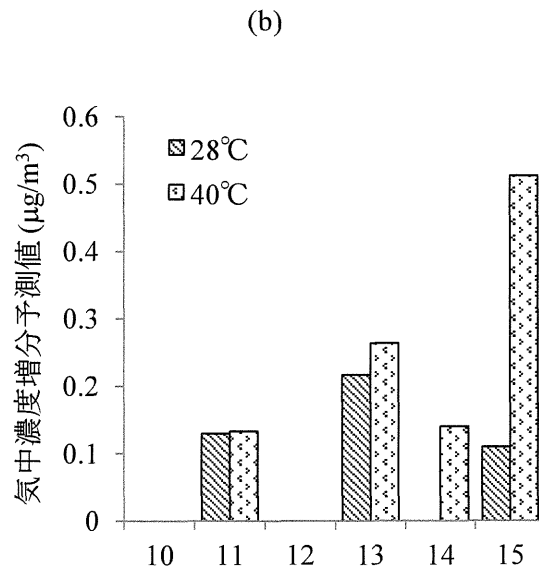
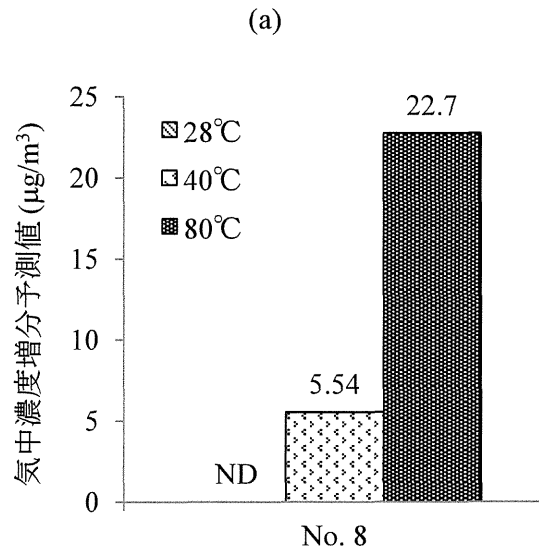


Fig. 5 温度による家庭用品からのICA放散量の影響

(a) アイロン台 8, (b) ジェルネイル 10-15



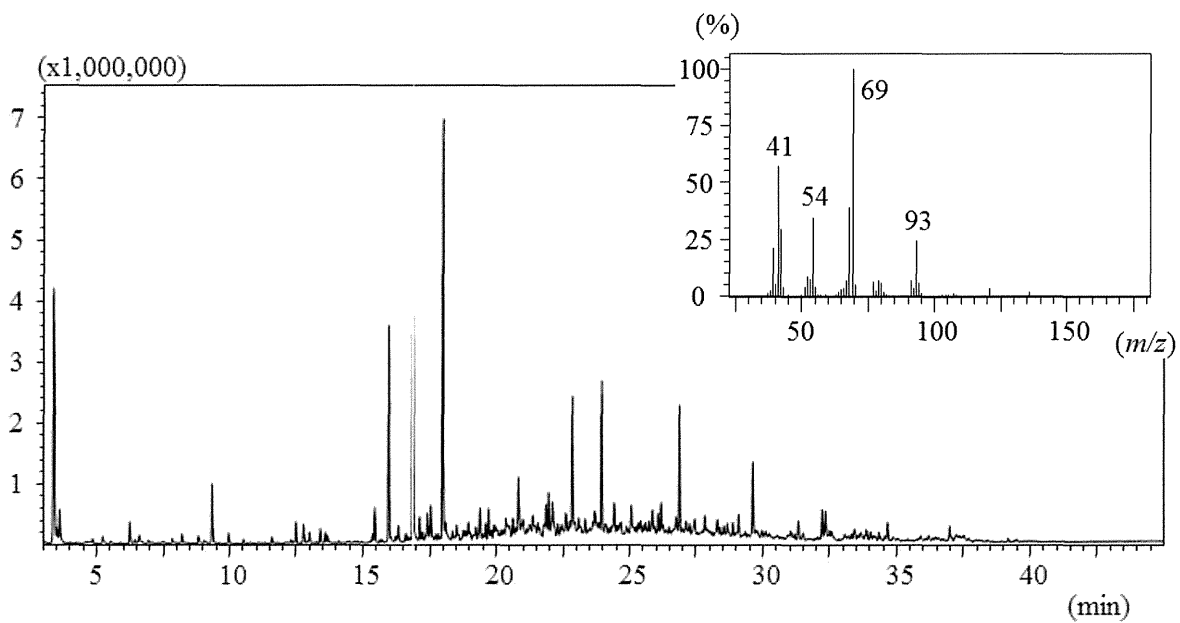


Fig. 6 枕試料の GC/MS トータルイオンクロマトグラム (TIC)  
および 17 min のマスクロマトグラム

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

国立研究開発法人 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

室内環境の化学物質濃度は、居住者のライフスタイルによって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。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、スプレー噴霧を対象としたシミュレーション手法の開発、スプレー噴霧および防虫剤の使用に関する暴露係数の収集、およびスプレー噴霧および防虫剤使用に関するシミュレーション手法の適用を試みた。

スプレー噴霧を評価対象として開発したモデルは既存のモデルと同等の推定精度であった。既存のスプレーモデルは、入力データとして一般に入手が困難である粒径分布が必要であるが、今回開発したモデルは粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子存在率がわかれば計算を行うことができ、より簡便に利用可能であった。

また防虫剤を対象としたマルチボックス（マルチゾーン）モデルの検証を実施した。モデルによる推定値は既報の再現試験の実測値とおおむね一致し、実測値の 1/2～2 倍の範囲内であった。開発したモデルを用いることにより、収納空間に設置された放散源の居室濃度へ及ぼす影響を考慮することが可能となる。

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における室内濃度の実態調査では、トルエンやキシレンなどの室内濃度に経時的な減少傾向が認められ、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、防虫剤の主要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、多くの実態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、クローゼット・押入れの扉の開閉などの生活行動の違いなどの居住者のライフスタイルに依存し、住宅間の差が大きい。このようなライフスタイルに依存する化学物質の場合には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。

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、昨年度開発したスプレー噴霧を対象としたシミュレーション手法の開発、スプレー噴霧および防虫剤の使用に関する暴露係数の収集、およびスプレー噴霧および防虫剤使用に関してのシミュレーション手法の適用を試みた。

## B. 研究方法

### B.1 スプレー噴霧を対象としたシミュレーション手法の開発

スプレー噴霧による化学物質の暴露評

価を目的として、既存の非揮発性のためのスプレーモデルである ConsExpo (Delmaar ら 2006) および昨年度開発した粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子存在率を用いた経験式モデル(東野 2015)を参考に、推定精度を保ちながら入力情報の簡略化を図ることとした。シミュレーション手法の検討には、表 1 に示したパラメータと、我々が昨年度実施した 11 種類のスプレー製品の粒径分布または粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子存在率の測定結果(東野 2015)を用いた。

次に、既存モデル、昨年度開発した経験式モデル、および本研究にて開発した簡略化モデルの 3 つを用いて、表 2 に示した条件下における粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子濃度の推定を実施し、推定結果を比較した。なお、粒径分布または粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子存在率のデータについては、我々が昨年度実施したスプレー製品の測定結果(東野 2015)を用いた。

### B.2 スプレー噴霧および防虫剤の使用に関する暴露係数の収集

既存文献等を中心として暴露係数に関する情報収集を実施した。

#### B.2-1 スプレー噴霧

本年度モデルを用いたスプレー噴霧による化学物質の暴露評価に必要なパラメータとして、1 回あたりの噴霧量、粒子径分布等に着目し、既存文献から情報を収集した。

#### B.2-2 防虫剤の使用

東野(2014)は非定常型暴露シミュレー

シミュレーション手法の開発においてアンケート結果を基に防虫剤の典型的な使用シナリオについて検討し、代表的な暴露シナリオとして防虫剤を衣装ケースに入れ、押入れ・クローゼットに置く場合（防虫剤→衣類用収納容器→押入れ→部屋）を設定した。防虫剤を対象として開発したシミュレーション手法（東野 2014）は上記暴露シナリオでの防虫剤使用を評価することが可能であることから、上記暴露シナリオに即した暴露係数として衣類用収納容器のサイズ、押入れ・クローゼットのサイズ、防虫剤の使用回数等についての情報を収集した。

### B.3 スプレー噴霧および防虫剤使用に関するシミュレーション手法の適用

#### B.3-1 スプレー噴霧

一般的なスプレー噴霧を再現した大型チャンバーにおける粒子状物質の濃度測定例が知られている（Delmaar と Bremmer 2009）。この試験は殺虫剤、洗剤、ヘアスプレー、脱臭剤などの9種類のスプレー製品（スプレー缶タイプ6種類、ポンプおよびトリガー式3種類）を対象とした再現試験である。本研究で開発したシミュレーション手法の適用としてスプレーモデルによる粒子状物質濃度の推定を行い、その結果を既報の再現試験のデータと比較することで、手法の検証を実施した。計算条件は再現試験と同じとした。なお、一部の条件は文献に示されていない場合があり、その場合は一般的な値を採用した。図9に計算に用いた数値を示した。図中の下線の数値が一般的な値を採用したパ

ラメータである。

#### B.3-2 防虫剤

一般的な防虫剤の使用を再現したモデル住環境において構成成分であるパラジクロロベンゼン濃度を測定した例が知られている（山本ら 2002、東京都消費生活総合センター 2004、望月ら 2004）。本研究で開発したシミュレーション手法の適用として防虫剤モデルによるパラジクロロベンゼン濃度の推定を行い、その結果を既報のモデル試験の実測データと比較することで、モデルの検証を実施した。計算条件はモデル試験と同じとしたが、一部の条件が文献に示されていないことがあり、そのような場合には収集した暴露係数から一般的な値を採用した。図10に計算に用いた数値を示した。図中の下線の数値が一般的な値を採用したパラメータである。以下にパラメータの設定根拠について示した。

- ✓ 部屋は押入れの設置率の高い寝室を想定し、部屋の床面積は暴露係数の収集結果から寝室の平均床面積（16.1 m<sup>2</sup>）を用いた。また高さは2.5mと仮定した。
- ✓ 部屋の換気は既報モデル試験の実施が10年以上前であることを考慮し、現在の住宅と比較して高気密ではないとの仮定を置き、換気時は2.0回/hを、無換気時は0.5回/hを採用した。
- ✓ 収納空間は押入れと仮定し、暴露係数の収集結果から床面積を3.24（=1.8 × 1.8）とした。

- ✓ 収納空間の換気回数は測定データ（産業技術総合研究所 安全科学研究部門 2014）を基づいて 2.15 回/h と設定した。
- ✓ 収納容器の換気回数は実測（東野 2015）から衣装用収納容器（高気密）で 0.2 回/h、衣装用収納容器（低気密）で 0.4 回/h、タンス（高気密）で 1.4 回/h、タンス（低気密）で 2.4 回/h、洋服ダンスで 3.5 回/h を採用した。

## C. 結果

### C.1 スプレー噴霧を対象としたシミュレーション手法の改良

#### C.1-1 昨年度の検討結果の要約

スプレーモデルはスプレー噴霧特有である非揮発性化学物質の液滴等を評価する数理モデルと、揮発性化学物質の拡散を、瞬時拡散と仮定して一時的な放散として評価する数理モデルの 2 種類がある。昨年度開発の参考とした既存の非揮発性のためのスプレーモデルである ConsExpo の推定では、粒子径別重力沈降を考慮したワンボックスモデルを採用しており、各種暴露シナリオに関するパラメータをデータベースに搭載していることが特徴であった (Delmaar ら 2006)。このモデル上では粒子径別重力沈降に関するパラメータはストークスの式 (式 1) によって推定されている (Delmaar ら 2006)。

$$v_s = \frac{D_p^2(\rho_p - \rho_f)g}{18\eta} \quad \text{式 1}$$

ここで、 $v_s$ : 終端速度 [m/s]、 $D_p$ : 液滴径 [m]、 $\rho_p$ : 液滴密度 [kg/m<sup>3</sup>]、 $\rho_f$ : 流体密度 [kg/m<sup>3</sup>]、 $g$ : 重力加速度 [m/s<sup>2</sup>]、 $\eta$ : 流

体粘度 [g/(cm·s)] である。本研究では、液滴を水、流体を空気と仮定して、 $\rho_p$  を 999.973、 $\rho_f$  を 1.293、 $\eta$  を  $1.81 \times 10^{-5}$  とし、 $g$  は 9.807 と設定した。液滴粒子量・濃度は以下の数式 (式 2、式 3) を用いて推定されている。

$$\frac{dA_{air}(\delta)}{dt} = EF(\delta) + \left(-q_v - v_s(\delta) \times \frac{S}{V}\right) \times A_{air}(\delta) \quad \text{式 2}$$

$$C_{air}(t) = \frac{1}{V} \int A_{air}(\delta, t) d\delta \quad \text{式 3}$$

ここで、 $A_{air}$ : 液滴量 [μg]、 $q_v$ : 換気回数 [1/sec]、 $S$ : 液滴が落下する面の表面積 [m<sup>2</sup>]、 $V$ : 部屋の容積 [m<sup>3</sup>]、 $\delta$ : 液滴の粒子径 [μm]、 $C_{air}$ : 液滴濃度、 $EF$ : 放散速度 [μg/sec] である。以上のように既存モデルでは、一般的な室内濃度推定時のパラメータである部屋の容積や換気回数以外に粒子径分布情報 (平均値とばらつき、あるいは粒子径別割合) を入力する必要がある。

一方、経験式モデルは噴霧開始から 120 sec までの部屋の濃度変化の再現を目的として作成された、粒子径 10 μm 以下の粒子存在率を用いた、以下の数式である (東野 2015)。

$$C_{air}(t) = \frac{W_p \times Q_{10}}{V} [(\beta n + \gamma)t + 1] \quad \text{式 4}$$

ここで、 $t$ : 噴霧からの経過時間 [sec]、 $W_p$ : 一回当たりの噴霧量 [μg]、 $\beta$ : 係数 -0.00020、 $\gamma$ : 係数 -0.00074、 $n$ : 換気回数 [回/h]、 $Q_{10}$ : 10 μm 以下の粒子存在率 (%) であった。この経験式による推定では噴霧からの経過時間と換気回数に比例して濃度が減少する。

### C. 1-2 モデルの開発

昨年度と同様に室内濃度推定としてワンボックスモデルに適合できる、発生源モデルとしてスプレーモデルを開発した。既存モデルは、粒子径分布の情報を必要とするが、粒子径分布の情報は暴露評価者にとって準備することが難しいパラメータの一つである。そこで、精度を保ちながら手法の簡略化、主として入力情報の単純化を図ることとした。

昨年度と同様に一般に吸入暴露への影響は粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子の寄与が重要 (Cope ら 2014) とされていることから粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子存在率に着目してスプレー噴霧シミュレーション手法を開発した。

既存モデルでは粒径区分ごとの  $v_s$  および濃度を算出しているが、本研究では粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒径画分を一つとして計算することとした。従って、 $v_s$  は粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下を代表する値となる。

$$\frac{dA_{air}}{dt} = EF \times Q_{10} + \left(-q_{vent} - v_s \times \frac{S}{V}\right) \times A_{air}$$

式 5

$$C_{air}(t) = \frac{A_{air}(t)}{V}$$

式 6

$v_s$  は既存モデル (式 2、式 3) で推定した 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子濃度の時間変化に対して式 5、式 6 をフィッティングして算出した (表 3)。この算出した  $v_s$  は粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の平均終端速度 ( $\bar{V}_s$  [m/s]) と補正係数の積であると仮定し、補正係数と粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子存在率の関係を検討した。この結果、粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子存在率が高いほど補正係数は小さくなり、粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子存在

率が低いほど高くなる傾向が認められた (図 1)。ここで得られた非線形回帰式を  $v_s$  推定式 (式 7) とした。なお、 $\bar{V}_s$  は粒子径 5  $\mu\text{m}$  の  $v_s$  とした。

$$V_s = \bar{V}_s \times (-0.425 \ln Q_{10} + 3.136)$$

式 7

本研究では式 5、式 6、式 7 を組み合わせて簡略化モデルとした。このモデルは換気回数、容積や放散速度など一般的な入力パラメータに加え、粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子存在率を準備することで粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の室内濃度が計算可能である。

### C. 1-3 推定結果の比較

昨年度実施した粒子径分布の測定結果を用いて、既存モデル、経験式モデル、簡略化モデルによる 10  $\mu\text{m}$  以下の室内粒子濃度の推定を行った。推定結果の一例として製品 1 の濃度の変化を図 2 に示した。簡略化モデルの推定結果は、既存モデルの推定結果と良く一致していた。図 3 では 11 種類の製品における 120 sec 後と 1800 sec 後における 3 つの手法による推定値の比較結果を示した。120 sec 後の推定濃度の比較では、簡略化モデル、経験式モデルの推定結果は共に既存モデルによる推定結果とよく一致したが、1800 sec 後の推定濃度の比較では、経験式モデルによる推定結果が負の値となり既存モデルの推定結果から大きくはずれた。一方、簡略化モデルによる推定結果と既存モデルの推定結果はよく一致していた。

### C. 1-3 複数条件下での推定結果の比較

11 種類のスプレー製品のデータを用いて、表 2 に示した条件下で 10  $\mu\text{m}$  以下の室内粒子濃度の推定を行った。1 スプレ

一製品あたり81計算条件である。放散開始から120 sec後の比較結果を図4に、1800 sec後の比較結果を図5に示した。この結果によると、簡略化モデルは既存モデルとの相関式の傾きが、120sec後では0.996~1.001、1800sec後では0.429~1.340で、既存モデルの推定結果とおおむね一致した。一方で、経験式モデルによる推定結果は120 sec後では相関係数1.005~1.010とほぼ一致したが、1800 sec後では既存モデルの推定結果と一致しなかった。

## C.2 スプレー噴霧および防虫剤の使用に関する暴露係数の収集

### C.2-1 スプレー噴霧

#### [噴霧量]

東野(2015)は「非定常型暴露シミュレーション手法の開発」において31種類のスプレーを対象として噴霧量の測定を行った。その報告によると、平均的な噴霧量は0.85 g/回 (g/sec)で、エアゾールタイプ(スプレー缶)、ポンプタイプ(トリガースプレー)のそれぞれで1.04 g/secと0.58 g/回であった。殺虫剤の缶スプレーの1プッシュ当たりの時間を考慮してスプレー缶の1回あたりの噴霧量を算出すると2.88 g/回が妥当であったとしている。

斉藤ら(2014)は日用品のスプレー粒子径の調査の一環として4種のスプレーの10 secあたりの噴霧量を測定した。噴霧量はトイレ消臭スプレー6.6 g、化粧水スプレー5.8 g、制汗スプレー4.6 g、日焼け止めスプレー4.7 gと報告した。

香川ら(2008)はハンドスプレー式家庭

用品の調査の一環として一回あたりのスプレー行為によって放出される製品重量を測定し、その値を用いて室内濃度を推定した。モデル推定時に設定された値は衣類・空間用消臭剤等の家庭用品で0.8 g、整髪・化粧品等で0.3 gであった。

国民生活センター(2001)は「スプレータイプの消臭剤の商品」に関する調査の一環として噴霧量の調査を実施した。1回あたりの噴霧量は0.9~4.5 gで、平均1.6 gであったことを報告した。

Matobaら(1993)は、殺虫剤の室内濃度推定モデルの開発に関連して噴霧量をノズルの設計から0.45 g/secと設定した。

スプレーにはスプレー缶タイプとポンプタイプおよびトリガータタイプの2種があり、噴霧量の測定では、スプレー缶タイプでは1 secまたは10 secあたりと、ポンプタイプおよびトリガータタイプでは1回あたりの単位が使い分けられている。今回収集した情報(Delmaar & Bremmer 2009)ではポンプタイプの10回あたりの使用時間を6 secと仮定しており、この数値を参考として1 secあたりの平均噴霧量を求めると0.84 g/secであった。

#### [粒径分布]

東野(2015)は「非定常型暴露シミュレーション手法の開発」において11種類のスプレーを対象としてレーザー解析式粒度分布測定装置にて粒径分布の測定を実施した。それによると、粒子径の中央値の範囲は14.49~191.33  $\mu\text{m}$ の範囲で平均73.18  $\mu\text{m}$ であった。

国民生活センター(2005)は「虫よけ剤—子供への使用について—」に関する調

査の一環としてレーザー解析式粒度分布測定装置を用いた測定を実施した。測定対象は12種類の虫除けスプレーで、平均粒子径の範囲は23.4~68.5 μmで平均37.81 μmであった。また、エアゾールタイプ(スプレー缶)、ポンプタイプ(トリガースプレー)別の平均粒子径が24.9 μmと63.7 μmで大きく異なっていたことも報告した。

国民生活センター(2001)は「スプレータイプの消臭剤の商品」に関する調査の一環としてレーザー解析式粒度分布測定装置を用いた測定を実施した。測定対象は15種類の虫除けスプレーで、平均粒子径の範囲は7.9~360.5 μmで平均58.69 μmであった。

鹿庭正昭(2000)は「トリガータイトの家庭用エアゾル製品に関する研究」に関する調査の一環として15種類のトリガースプレー(ポンプタイプ)の測定を実施した。粒子径の中央値の範囲は67.9~186.8 μmで平均126.76 μmであった。

東京都生活文化局消費者部(1996)は「エアゾル製品に含まれる成分の室内挙動調査」の一環として10種類のスプレー製品について粒径分布を測定した。粒子径の中央値の範囲は7.2~193.8 μmで平均65.82 μmであった。

Matobaら(1993)は、殺虫剤の室内濃度推定モデルの開発に関連して、殺虫剤スプレーの粒径分布を測定し、その粒径分布がロージン・ラムラー分布に一致し、範囲は1~120 μmで平均30 μmであったことを報告した。

[10 μm以下の粒子存在率]

東野(2015)による11種類のスプレーを対象としたレーザー解析式粒度分布測定装置を用いた測定では0.05~14.91%の範囲で平均3.54%であった。

国民生活センター(2013)は「フッ素樹脂、シリコン樹脂等を含む衣類用スプレー製品の安全性」に関する調査の一環としてレーザー解析式粒度分布測定装置を用いた測定を実施した。測定対象は汗ジミ防止スプレー、静電気防止スプレー、防水スプレー(参考品)の計9種類で、10 μm以下の粒子存在率は0.24~39.6%の範囲で平均13.14%であった。

国民生活センター(2005)は「虫よけ剤-子供への使用について-」に関する調査の一環としてレーザー解析式粒度分布測定装置を用いた測定を実施した。測定対象は12種類の虫除けスプレーで、10 μm以下の粒子存在率は0.2~20.4%で平均9.75%であった。また、スプレー缶(エアゾール)タイプ、ポンプおよびトリガースプレー別の10 μm以下の粒子存在率の平均が14.5%と0.4%で大きく異なっていた。

国民生活センター(2001)は「スプレータイプの消臭剤の商品」に関する調査の一環としてレーザー解析式粒度分布測定装置を用いた測定を実施した。測定対象は15種類の虫除けスプレーで、10 μm以下の粒子存在率は0~59.1%で平均17.69%であった。

鹿庭正昭(2000)は「トリガータイトの家庭用エアゾル製品に関する研究」に関する調査の一環として15種類のポンプおよびトリガースプレーの測定を実施した。10 μm以下の粒子存在率は0~0.8%



で平均 0.12 %であった。

東京都生活文化局消費者部(1996)は「エアゾール製品に含まれる成分の室内挙動調査」の一環として10種類のスプレー製品について粒径分布を測定し、10  $\mu\text{m}$ 以下の粒子存在率は0~57.6 %で平均8.85 %であったことを報告した。

表4、表5に製品タイプ別の情報を集約した。スプレー缶における10  $\mu\text{m}$ 以下の粒子存在率は0.1~38.1 %と幅広いが、ポンプおよびトリガー式の10  $\mu\text{m}$ 以下の粒子存在率は0.1~0.7 %で低かった。10  $\mu\text{m}$ 以下の粒子存在率が高い製品群は、スプレー缶タイプの静電防止剤、スプレー缶タイプの制汗剤、スプレー缶タイプの芳香・消臭剤であった。一方、10  $\mu\text{m}$ 以下の粒子存在率が低い製品群は、両タイプの洗剤、ポンプおよびトリガー式の整髪剤、ポンプおよびトリガー式の制汗剤であった。スプレー缶の10  $\mu\text{m}$ 以下の平均粒子存在率は13.8 %、ポンプおよびトリガー式の平均は0.3 %で、全体では9.3 %であった。

図6に10  $\mu\text{m}$ 以下の粒子存在率と粒子径の算術平均、図7に10  $\mu\text{m}$ 以下の粒子存在率と粒子径の中央値の相関関係の検討結果を示した。共に決定係数が0.89~0.92であり関連性が認められた。

#### [噴霧時間]

産業技術総合研究所と製品評価技術基盤機構は暴露係数の収集を目的として、各種消費者製品の使用頻度や使用方法についてのアンケートを実施しており、その一環として消臭・芳香剤に関する調査を行った(産業技術総合研究所、製品評価

技術基盤機構 2010)。この結果によると、寝室で使用されるスプレー缶タイプの噴霧時間は平均1.6 sec/プッシュ、1回あたりのプッシュ回数は平均2.5プッシュ/回で、使用1回あたりの噴霧時間は4.0 sec/回であった。同じく寝室で使用されるポンプおよびトリガー式の1回あたりのプッシュ回数は平均3.6プッシュ/回であり、10プッシュの時間を6 secと仮定すると、使用1回あたりの噴霧時間は2.16 sec/回と算出された。一方で居室での使用の場合、スプレー缶タイプの使用1回あたりの噴霧時間は5.94 (=2.2 $\times$ 2.7) sec/回、ポンプおよびトリガー式の使用1回あたりの噴霧時間は2.46 (=4.1 $\times$ 0.6) sec/回であった。

Streiling ら(2014)はスプレー製品のリスク評価についてのレビューを行い、その中で噴霧時間について報告した。それによると整髪スプレー3~4 sec、消臭・制汗スプレー1.4 sec、芳香スプレー4~5 sec、洗剤スプレー24 sec、殺虫剤10 secであった。

### C.2-2 防虫剤

#### [防虫剤の使用量]

産業技術総合研究所と製品評価技術基盤機構は暴露係数の収集を目的として、各種消費者製品の使用頻度や使用方法についてのアンケートを実施しており、その一環として防虫剤に関する調査を行った(産業技術総合研究所、製品評価技術基盤機構 2010)。この結果によると、

寝室の使用量では、パラゾール系で平均10.9包、ピレスロイド系で平均7.8包、吊下タイプの防虫剤で平均2.4~2.5個で

あった。寝室の押入れでは、パラゾールで平均 11.1 包、ピレスロイド系で平均 8.4 包、吊下タイプの防虫剤で平均 2.3~2.4 個であった。

大坂ら (1997) は被服の保存に関する調査の一環として防虫剤の使用量のアンケートを行った。対象は 30 代、40 代、50 代以上の女性であった。その結果によると、「指示通りに入れる」は 30 代では最多の 44.0% であったが、40 代では 23.1、50 代以上では 23.1 であった。一方、「気にしないで適当に入れる」は 40 代で 32.8%、50 代以上で 48.1% であった。また、「指示を参考に多めに入れる」との選択肢は、16.0~25.0 であった。著者らは各自の感覚で入れている人が多いことを指摘している。

#### [収納容器のサイズ]

検索した範囲でデータを入手することができなかった。

東野 (2014) は、モデル推計時に収納容器のサイズを設定している。この値は通信販売サイトの売り上げ上位の容器サイズの平均を算出したもので、その値は 60 L であった。同様の方法で、インターネット上の販売サイト (amazon) の収納容器およびその部品等の販売売り上げ上位 20 商品に含まれる収納容器 16 種類の平均容積を算出したところ 56 L であった。この値は東野 (2014) の設定値とほぼ同じであった。

#### [収納容器の漏洩率]

東野 (2014) は、収納容器の漏洩率を測定した。平均漏洩率は密閉型衣類用収納

で 0.2 回/h、引出型収納容器で 0.4 回/h、チェストで 2.4 回/h、カラーボックスで 3.1 回/h、洋服ダンスで 3.5 回/h、簡易型収納容器で 5.1 回/h (n=2) であった。

神野ら (2009) は収納容器の換気回数を測定した。平均換気回数は布製箱形ケースや布製クローゼットなどで 10 回/h 以上、密閉コンテナや密閉型収納容器では 0.1~0.2 回/h、引出型収納容器で 0.55~0.58 回/h であった。

Shinohara ら (2008) は収納容器の換気回数を測定した。その範囲は 0.41~78 回/h で、引出型収納容器で 0.41 回/h、簡易的なチェストで 6.2~78 回/h、布製クローゼットで 11 回/h であった。

収納容器の換気回数は高気密衣装用収納容器 (樹脂製) で 0.2 回/h、低気密衣装用収納容器 (樹脂製) で 0.4 回/h、ダンス・チェストで 2.4 回/h、洋服ダンスで 3.5 回/h、簡易型クローゼット (布製) で 10 回/h 等が一般的な値だと考えられた。

#### [押入れ・クローゼットのサイズ]

中島 (1990) はハウスメーカーに対して押入れの設置やその標準的な寸法についての調査を行った。それによると、押入れは 90.3 % の和室に設置されていた。住居における標準的な寸法は間口 1,800~1,900 mm、奥行 900~950 mm、高さ 1,800~1,900 mm であった。物入は洋室と階段下に設置されるケースが多く、標準的な寸法は間口 1,800~1,900 mm、奥行 900~1,000 mm、高さ 2,400~2,500 mm であった。

松本ら (1990) は住宅金融公庫のユーザーを中心としたアンケート結果の解析を

通じて収納空間の現状について報告した。それによると、戸建住宅では延床面積に比例して収納空間の面積が増えること、この傾向は分譲の共同住宅でも認められること、一方、賃貸の共同住宅ではそのような関係が認められないことを示した。収納空間の平均は戸建住宅で 11.2 m<sup>2</sup>、共同住宅で 4.3 m<sup>2</sup>であった。

佐藤ら (1998) は、住宅誌に掲載されていた戸建て住宅の間取りに関して 40 年分のデータをまとめ、収納空間が増加していること、中でも個室に付随した納戸の設置比率が増加していることを報告した。この解析では主寝室の収納空間の面積の平均は 3.34 m<sup>2</sup>、子供室の収納空間の面積は 2.09 m<sup>2</sup>であった。

本間ら (2003)、亀田 (2003) は住宅誌に掲載されていた注文住宅の間取り情報に基づく面積配分についての調査で、総収納空間は延床面積と比例関係にあり回帰式が  $y = 0.1x - 3.3$  であること、総収納空間の平均床面積が 14 m<sup>2</sup> であること、主寝室の 38% に 6 m<sup>2</sup> 前後の専用収納空間があり、寝室 (専用収納空間を含む) の平均面積は 20.3 m<sup>2</sup>、専用収納空間は 4.2 m<sup>2</sup> であることを示した。

中村ら (2011) は収納空間としての納戸に着目したアンケート結果の解析を行っている。これによると、サイズ別の設置率は 2 畳以上 4 畳未満が 47.0 %、4 畳以上 6 畳未満が 24.3 %、6 畳以上 8 畳未満 24.3 %、8 畳以上が 4.4 % であった。著者らは、納戸の約 9 割が寝室圏に設置されること、その面積は住宅の延面積の広さに連動しないこと、居室を転用した納戸の場合に 6 畳以上が多いことなどを指摘

した。この調査は納戸を対象としたことからウォークインクローゼットに近いものだと考えられる。

産業技術総合研究所 安全科学研究部門 (2015) では押入れ・クローゼットの換気回数についての実測を行った。測定対象住宅の押入れ・クローゼット (18 カ所) の床面積は平均 1.33 m<sup>2</sup>、標準偏差 0.70 m<sup>2</sup>、その範囲は 0.33~3.5 m<sup>2</sup> であった。

個室専用収納空間は寝室に設置されることが多く、寝室は他の個室専用収納空間よりも容積が大きい傾向があることから、一般的な容積は 3.24 (1.8×0.9×2) m<sup>2</sup> 程度と考えられた。

#### [収納空間の換気回数]

産業技術総合研究所 安全科学研究部門 (2014) は、消費者製品のリスク評価ツールの開発の一環で押入れ等収納空間の換気回数の測定を実施した。換気回数の幾何平均は 2.15 回/h、最小は 0.5 回/h、最大は 9.3 回/h であった。

### C.3 スプレー噴霧および防虫剤使用に関するシミュレーション手法の適用

#### C.3-1 スプレー噴霧

図 8 に噴霧からの経過時間別全粒子濃度と 10 μm 以下の粒子濃度の比較結果の一例を示した。その結果、1800 sec では全粒子濃度と粒子径 10 μm 以下の粒子濃度はほぼ一致していた。

図 9 に既報の再現試験の実測値と、開発したスプレーモデルによるスプレー噴霧後の濃度変化の推定値の比較結果を示した。1800 sec 時の比較では、推定値が

実測値の 0.01~17.18 倍で、1/5~5 倍となったのは 9 ケース中 3 ケース、1/10~10 倍では 9 ケース中 6 ケースであった。

### C. 3-2 防虫剤の使用

図 10 に既報の再現試験の *p*-ジクロロベンゼンの実測値と、開発した防虫剤モデルによる *p*-ジクロロベンゼンの濃度変化の推定値の比較結果を示した。推定値は実測値とおおむね一致し、推定値は実測値の 1/2~2 倍に含まれた。過大評価や過小評価が見られた再現試験はケース 4 の収納空間 (約 5 倍)、ケース 5 の収納容器 (約 1/3 倍)、ケース 9 の部屋 (約 10 倍)、ケース 10 の部屋 (約 3 倍)、ケース 11 の部屋 (約 5 倍) であった。

検証実施した再現試験の条件下において推定した *p*-ジクロロベンゼン濃度は、収納容器内ではいずれも mg オーダーであり、また収納容器を設置した収納空間および部屋でも *p*-ジクロロベンゼンの室内指針値である 240  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  を超過していた。一方で、収納空間に収納容器を設置した場合の部屋の濃度は、防虫剤の使用量を通常の 2 倍とした試験を除き、室内指針値である 240  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  を超過しなかった。

## D. 考察

### D.1 スプレー噴霧を対象としたシミュレーション手法の改良

スプレー噴霧から 120 sec までの濃度推定結果を基にモデル化した経験式モデルは噴霧からの時間が経過すると濃度が線形に減少するモデル式であったことから、ある程度の時間が経過すると濃度が負の値になることが想定され、1800 sec

の比較において、経験式モデルの計算結果はすべての製品において負の値となった。一方で、簡略化モデルではそのような懸念はなく、1800 sec の比較においても、実測値と推定値の相関式の傾きは 0.42~1.34 倍であり、推定値はおおむね実測値と一致した。既存のスプレーモデルは、入力データとして一般に入手が困難である粒径分布が必要であるが、今回開発したモデルは粒子径 10  $\mu\text{m}$  以下の粒子存在率がわかれば計算を行うことができ、より簡便に利用可能であった。

### D.2 スプレー噴霧および防虫剤の使用に関する暴露係数の収集

#### [1 sec あたりの噴霧量]

Streiling ら(2014)はスプレー製品のリスク評価についてのレビューを行い、その中で噴霧量についても言及している。それによると整髪スプレー0.7 g/sec、消臭・制汗スプレー0.8 g/sec、芳香スプレー1.5~1.8 g/sec、洗剤スプレー1.2 g/sec、殺虫剤スプレー1.5 g/sec としている。また、Delmaar と Bremmer(2009)が実施したスプレーモデル開発に関する研究の報告書で、60 種類のスプレーについて噴霧量がまとめており、報告書によると噴霧量の範囲は 0.08~2.6 g/s で、平均 1.15 g/sec であった。

測定対象となった使用用途が多様であり、一概にまとめることは難しいが、国内製品噴霧量として本研究で収集した情報 (n=51) と国外製品噴霧量として Delmaar と Bremmer(2009)がまとめた情報を比較したところ、1 sec あたりの噴霧量には有意な差が認められた ( $p < 0.01$ )。消費者