

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）
平成 27~28 年度の総合研究報告書

シックハウス症候群の診断基準の検証に関する研究

建築工学的見地から見た患者居住環境の解析とガイドライン作成に
有益な建築工学的知見の提供

研究分担者 田辺 新一 早稲田大学創造理工学部建築学科 教授
研究協力者 金 炫兌 山口大学工学部感性デザイン工学科 助教

研究要旨

室内における SVOC 汚染物質は可塑剤、難燃材、殺虫剤などが挙げられており、特にプラスチック製品に含有されているフタル酸エステル類とリン酸エステル類が主な汚染物質であると報告されている。室内の SVOC 汚染に対する曝露は呼吸、経口、経皮の三つの経路が挙げられており、成人より幼児や子供のリスクが高いと報告されている。床上で生活をしている日本人、特に幼児や子供の場合は PVC 系の床表面と皮膚が接触する機会が多い。室内での SVOC リスクを減らすためには、室内での SVOC 汚染源の把握や、汚染メカニズムを明らかにすることで、室内における SVOC 汚染濃度を削減する必要がある。そのため、平成 27 年度の研究として、PVC 床材からの SVOC 放散速度と表面ブリードアウト量を測定し、SVOC 物質の同定と放散特徴を調べた。また、平成 28 年度は、様々な掃除方法を用いて床表面に堆積した SVOC や真菌の除去率に関する研究を行った。平成 27 年度の研究結果として、PVC 床材から 2E1H、DEP、C16、DBP、DEHP が放散されることが確認出来た。また、2E1H、DEP、DBP、DEHP の検出頻度は 100% であり、特に DEHP の放散速度は他の物質より高く測定された。また、試験片の表面ブリードアウト量を測定した結果、建材内部から染み出た DEHP が試験片の表面に高濃度でブリードアウトされることが分かった。平成 28 年度の研究結果では、各掃除方法の条件では、掃除前の SVOC 表面濃度に比べ、大きな削減はできなかった。掃除前の表面 DEHP 濃度は 11000 [$\mu\text{g}/\text{m}^2$] であり、雑巾のみの場合は初期の DEHP 濃度より約 30% 削減されていることが分かった。また、掃除機の場合のみは他の掃除方法より DEHP 濃度の削減が最も少なかった。一方、スチームクリーナーの条件の除去率は約 60% を示した。表面真菌数の結果も SVOC 濃度と同じ傾向が見られた。今回の実験により、床面に堆積しているダストのみではなく、表面に堆積した SVOC 物質を除去するためには、掃除機と雑巾を一緒に使用するか、スチームクリーナーなどを用いた方がより効果的であることが分かった。

A. 研究目的

最近、室内におけるフタル酸エステル類、リン酸エステル類など準揮発性有機化合物に対する室内汚染物質が注目されている¹⁻⁵⁾。準揮発性有機化合物(SVOC)は高揮発性

有機化合物(VVOC)、揮発性有機化合物(VOC)に比べ、空気中に気体として存在することより、浮遊粉塵やダスト等に付着して、室内に蓄積することが報告されている

6)。また、室内での SVOC 放散源が多種多様であり、体内に蓄積されて健康被害を生じる可能性が考えられることから、新たな室内汚染物質として研究されている。また、室内の SVOC 汚染に対する曝露は呼吸、経口、経皮の三つの経路が挙げられており、成人より幼児や子供のリスクが高いと報告されている⁷⁾。特に床上で生活をしている日本人は PVC 系床表面と皮膚が接触する機会が多いと考えられる。そのため、室内での SVOC 汚染源の把握や放散メカニズムを明らかにする必要がある。本研究では PVC 建材からの放散速度と試験片の表面 SVOC ブリードアウト量を測定することで、PVC 建材から放散する SVOC 物質の同定と放散特徴を測定した。また、各掃除方法を用いて床表面に堆積した汚染物質の除去率を調査することで、最も有効な掃除方法を提案した。

B．研究方法

1．平成 27 年度

5 種類の PVC 建材を用いて、SVOC 放散速度及び表面ブリードアウト濃度を測定した。PVC 床材からの SVOC 放散速度は「マイクロチャンバー法」を用いて測定を行った⁸⁾。また、表面ブリードアウト濃度とは、マイクロチャンバー法(JIS A 1904)で、24 時間の放散実験が終わった後、試験片の表面に残留された SVOC 濃度を言う。測定方法は医療用のガーゼで製作したサンプリングガーゼを用いて試験片の表面を拭き取る。サンプリングガーゼはエタノールを用いて洗浄し、ガラス瓶に保管する。PVC 表面を拭き取る時は、ガラスの瓶からガーゼを取り出し、サンプリングを行う。分析対象物質

は建材からの放散速度の対象物質と同じである。分析対象物質は D6(シロキサン 6 量体)、BHT(ブチル化ヒドロキシトルエン)、DBP(フタル酸ジ-n-ブチル)、DEP(フタル酸ジエチル)、C16(ヘキサデセン)、TBP(リン酸トリブチル)、TCEP(リン酸トリス(2-クロロエチル))、TPP(リン酸トリフェニル)、DBA(アジピン酸ジブチル)、DOA(アジピン酸ジオクチル)、DEHP(フタル酸ジ-2-エチルヘキシル)の SVOC11 物質と SVOC より沸点が低く、DEHP の加水分解物質である 2E1H(2-エチル-1-ヘキサノール)を加えた合計 12 物質とした。

2．平成 28 年度

測定場所は山口大学内の実験棟である。実験室に PVC 床材を敷き、0 日目に床面を綺麗に掃除し、3 日後、様々な掃除方法を用いて PVC 建材の表面を掃除した。その後、床面表面に残留する SVOC 濃度や、真菌のコロニー数を測定した。以下に SVOC 濃度測定方法と表面真菌測定方法の詳細を述べる。

SVOC 濃度測定法

各条件の掃除を行った後、石英ウールを用いて PVC 試験材の表面を拭き取った。拭き取った後の石英ウールは、そのままマイクロチャンバーに入れ、加熱脱着装置を用いて加熱し、SVOC 物質を回収した。捕集管は Tenax TA 管を用いた。分析対象物質は平成 27 年度と同様である。

表面真菌測定方法

試験用の PVC 床材の表面に付着している真菌の初期濃度を最低化するため、0 日目に実験用 PVC 床材の上をエタノールで綺麗に掃除した。3 日後、試験体の表面を各掃

除方法により掃除をした後、スタンプ式培地を用いて表面に付着している真菌を捕集した。真菌は 25℃ で 3~5 日間培養し、各培地に発育したコロニーを数えた。培地表面積は 25 cm² である。

C. 結果

1. 平成 27 年度の結果

PVC 建材からの SVOC 放散速度結果を測定した結果、PVC 床材から 2E1H、DEP、C16、DBP、DEHP が放散された。また、2E1H、DEP、DBP、DEHP の検出頻度は 100% であり、特に DBP、DEHP の放散速度は他の物質より高く測定された。DBP の放散速度の範囲は 0.42~1.52[$\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$]であり、平均 DBP 放散速度が 1.06[$\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$]であった。DEHP は 0.95~12.54[$\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$]の範囲を示し、他の SVOC 物質より放散速度の幅が広く測定された。DEHP の平均放散速度は 7.61[$\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$]であり、他の物質より高く測定された。一方、TPP、TCEP、TBP などのリン酸エステル類の放散はいずれの建材からも測定されなかった。

表面ブリードアウト濃度の測定結果として、分析対象物質は放散速度と同じ 12 物質としたが、DEHP 以外の物質は検出限界以下であった。試験片の表面 DEHP ブリードアウト濃度は 631~5683[$\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$]であり、平均ブリードアウト濃度は 2747[$\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$]であった。

2. 平成 28 年度の結果

1) 表面 SVOC 濃度

今回の実験で分析した化学物質は 12 物質であるが、検出頻度が高い DBP、TPP、DEHP の 3 物質のみ考察することとした。

掃除前の表面 DBP 濃度は 4[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]であった。雑巾、掃除機、掃除機(ブラシあり)、掃除機+雑巾と⑦スチームクリーナーの表面 DBP 濃度は掃除前の表面濃度とほぼ同じであった。雑巾(水あり)の場合は掃除後の DBP の表面濃度が 1.8[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]で、掃除前の濃度より低くなっていることがわかった。

TPP 濃度の測定結果からは、掃除前の表面 TPP 濃度は 8.9[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]であった。雑巾(水なし)の表面 TPP 濃度は 18[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]で、約 2 倍となっている。これは雑巾に付着していたものが表面に付着して濃度が高くなったと考えられる。雑巾(水あり)、掃除機(ブラシなし)、掃除機+雑巾の条件で検出された表面 TPP 濃度は 8.1~9.1[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]の範囲で測定され、掃除前の表面濃度とほぼ同じであった。一方、掃除機(ブラシあり)、スチームクリーナーを用いた条件では 5.6[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]で、他の掃除条件に比べて約 40% 削減されていることが分かった。

最後に、掃除前の DEHP 表面濃度は 11000[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]であった。雑巾(水あり)の場合は 7600[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]で、初期の DEHP 濃度より約 30% 削減されていることが確認出来た。また、掃除機(ブラシあり)の条件は 5300[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]、掃除機+雑巾の条件は 6100[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]であった。雑巾(水なし)、掃除機(ブラシなし)の場合は表面 DEHP 濃度が 9000[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]、9300[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]で、掃除前の条件に比べ、約 15% しか削減出来なかった。一方、スチームクリーナーの条件の表面 DEHP 濃度は 4500[$\mu\text{g}/\text{m}^2$]で、除去率約 60% を示した。

2)表面真菌コロニー数

除菌後の表面濃度はスタンプ式の培地 (25cm²)から 0~2 コロニーが培養された。除菌後から 3 日目の掃除前の条件では、面積当たり平均値で 87200 コロニーであった。この結果は各掃除方法による掃除後の結果と比較を行う際、初期の表面真菌濃度として取り扱うこととした。掃除機(ブラシなし)の場合は初期真菌濃度に比べ、20%しか削減できず、表面真菌の除去率が低く測定された。しかし、掃除機(ブラシあり)と掃除機+雑巾はそれぞれ 90~97%まで除去されている。また、雑巾(水なし)、スチームクリーナーの場合は滅菌後の初期真菌濃度とほぼ同じ数値であった。

D. 考察

平成 27 年度の研究成果から考察した。5 種類の PVC 系床材を用いて SVOC 放散量測定を行った。特に DEHP は他の物質より放散量が高く、建材の種類によって放散量の幅が異なるため、放散量が少ない建材を選択することが室内汚染低減に繋がると考えられる。また、試験片表面ブリードアウト濃度を測定した。放散量が少なかった DEP、DBP などのフタル酸エステル類は検出されなかったが、放散量が高かった DEHP は試験片の表面から DEHP が検出された。今回測定した 5 種類の平均 DEHP 放散速度と平均 DEHP ブリードアウト速度から比較すると、ブリードアウト量が放散量より、約 361 倍高いことが分かった。

平成 28 年度の研究成果から考察した。雑巾水なしより水ありの方が汚染物質をよく除去できることが分かった。また、掃除機のみで床面に付着している SVOC 汚染物質

を削減することは難しく、掃除機ブラシなしよりブラシありの方が削減できることが分かった。さらに、床面に堆積しているダストのみではなく、表面にブリードアウトされた SVOC 物質を除去するためには、掃除機と雑巾を一緒に使用するか、スチームクリーナーなどを用いるとより効果的であるとことが分かった。

E. 結論

PVC 床材から SVOC 放散速度と表面ブリードアウト量を測定した。また、各掃除方法を用いて床面に堆積した汚染物質の除去率に関する測定を行った。

建材から主に放散される物質は 2E1H、DEP、DBP、C16、DEHP であった。特に DEHP は他の物質より放散速度が高く、建材の種類によって放散速度の差が見られた。また、DEHP は建材の表面にブリードアウトされ、高濃度になることが分かった。更に、床面の堆積している SVOC は掃除方法によって除去率が異なることが分かった。以上の研究結果より、居住者たちの SVOC に対する健康リスクを低減させるためには、可塑剤などが含有されていない建材を選択することが大事であることや、より効果的な掃除方法で床面を掃除しなければならないことが分かった。

「参考文献」

ヤンバー法, 2008

- 1) EPA, U.S.A : A pilot study of children`s total exposure to persistent pesticides and other persistent organic pollutants(CTEPP),2005
- 2)Salthammer, T: Beurteilung der Belastung von Aufenthaltsräumen mit Pentachlorphenol anhand der PCP-Richtlinie. Umweltmedizin in Forschung & Praxis Vol.6, No.2, pp.79–85, 2001.
- 3)Meierhenrich, U: Nachweis und Toxikologie pyrethroider Verbindungen. Bremer Umwelt Institut, Reihe Umweltwis-senschafter, Band I, Bremen, 1997.
- 4)Walker, G・Hostrup, O・Hoffmann, W. and Butte, W: Biozide im Hausstaub. Gefahrstoffe – Reinhaltung der Luft, Vol.59, pp.33–41, 1999.
- 5)L. Ernstgard・D. Norback・T. Nordquist・G. Wieslander・R. Walinder and G. Johanson: Acute effects of exposure to 1mg/m³ of vaporized 2-ethyl-1-hexanol in humans, Indoor Air, Vol.20, pp.168-175, 2010.
- 6)Environmental Health News, October 31, 2013, Common insecticides may be linked to kids' behavior problems, Synopsis by Lindsey Konkell
<http://www.environmentalhealthnews.org/ehs/newscience/2013/10/insecticides-kids-behavior/>, 2014.01.20
- 7) M. Wensing・E. Uhde・T. Salthammer : Plastics additives in the indoor environment-flame retardants and plasticizers; Science of the Total Environment, Vol.339, pp.19-40, 2005
- 8)JIS A 1904, 建築材料の準揮発性有機化合物(SVOC)の放散測定方法—マイクロチ

F . 研究発表

- 1.論文発表
- 2 . 学会発表

G . 知的所有権の取得状況

1. 特許取得
2. 実用新案登録
3. その他