

厚生労働科学研究費補助金（化学物質リスク研究事業）  
（H29-化学-一般-004）  
総括研究報告書

室内環境中の化学物質リストに基づく優先取組物質の検索とリスク評価

研究代表者 雨谷 敬史 静岡県立大学・教授

研究要旨

室内環境ガイドラインが設定されてからもシックハウス問題の懸念が存在している。本研究班では、これまでに室内に存在する可能性がある化学物質 1698 種の名称、性状、用途、毒性情報、感作性情報を網羅的に収集した「室内環境中の化学物質リスト 1698」を開発したが、曝露情報、毒性情報ともに空白があり、懸念が高い物質から空白を埋めていく必要がある。本研究は、曝露評価、ハザード評価、化学物質情報処理、エミッション評価の専門家が連携して、リストに基づく優先取組物質の検索と、予備的リスク評価を行うこととした。得られた成果は、論文発表、学会発表等で公表すると共に、環境科学会において、昨年度に引き続きシンポジウムを開催して議論した。以下、各サブテーマ毎の要旨を報告する。

サブテーマ (a) 曝露評価・リスク評価では、昨年度に明らかにした防災カーテン中の臭素系およびリン系難燃剤の網羅的な定量分析結果を基に、これら難燃剤のヒトへの曝露量を明らかにするために、曝露媒体であるハウスダストへの移行メカニズムの解明を行った。この結果、リン系難燃剤のハウスダストへの移行は、ダストとカーテンの接触に伴う直接移行が主であることが明らかとなった。また、上記のリストで高懸念物質として挙げられたグリオキサールやグルタルアルデヒドについて、一般住宅の空气中濃度の測定を行った。

サブテーマ (b) ハザード評価では、曝露評価・リスク評価サブグループで市販のカーテンから検出・定量した新規難燃剤(5-ethyl-2-methyl-2-oxido-1,3,2-dioxaphosphorinan-5-yl)methyl methyl methylphosphonate (PMMMP) について、これまでほとんど行われていない毒性評価を行った。昨年度は、ラットを用いて推定されるヒトばく露量を考慮した PMMMP の 1 週間反復投与毒性試験を実施し、今年度はより高い用量での生体影響を検討する目的で、マウスを用いた PMMMP の反復投与毒性試験を実施した。6 週齢の雄性 CD1 マウス各群 5 匹に生理食塩水に溶解した PMMMP を 100、300 又は 1000 mg/kg/day の用量で 4 週間強制経口投与した。その結果、一般状態の変化は認められなかったが、投与終了後、PMMMP 投与群において副腎重量の有意な増加が認められた。今後、病理組織学的検査を実施し PMMMP の生体影響について明らかにする。

サブテーマ (c) 室内化学物質ライブラリの構築では、上記リストの情報の拡充を検討した。特に、多様な製品中の化学物質情報（用途や含有率）を収集・整理し、QSAR 情報も活用するなどして評価できる対象物質を増した。さらに、高懸念物質のスクリーニング手法の改良や、事業者らが任意の物質について、情報を入力してスクリーニング評価（相対的な懸念度や注意すべき曝露経路を判定）が出来る簡易なツールのプロトタイプを作成した。

サブテーマ (d) 実際の室内環境でのエミッション評価では、サブテーマ (a) と共同で住宅内の市販の防災カーテンやハウスダスト中の難燃剤の含有量調査を行った。

（総括）研究 2 年目の平成 30 年度は、室内環境中の化学物質リストの拡充に努めると共に、新たな有機リン系難燃剤のハザード評価や発生源評価を進めた。このように、各グループの研究成果を活用することにより、優先的検討対象化合物の選定やその簡易リスク評価につなげたいと考えている。

研究分担者：

雨谷 敬史（静岡県立大学食品栄養科学部・教授）

三宅 祐一（静岡県立大学食品栄養科学部・助教）

小川 久美子（国立医薬品食品衛生研究所安全性生物試験研究センター病理部・部長）

高須 伸二（国立医薬品食品衛生研究所安全性生物試験研究センター病理部・主任研究官）

小林 剛（横浜国立大学大学院環境情報研究院・准教授）

久米 一成（東京都市大学 客員教授）

## A．研究目的

室内汚染の問題は、室内空気質ガイドラインの作成によりその一部が解決されたが、室内環境中に存在する化学物質は多種多様であり、建材や家具等から発生する未規制の化学物質の問題が残されている。

本研究班では、平成 26 年～28 年の本事業において、室内に存在する可能性がある化学物質 1698 種の名称、性状、用途、毒性情報、感作性情報を網羅的に収集した「室内環境中の化学物質リスト 1698」を開発した。しかし、このリストには、曝露情報、毒性情報ともに空白があり、懸念が高い物質から空白を埋めていく必要がある。この中でも、難燃剤や殺虫剤は WHO の室内空気質ガイドラインに挙げられている優先度が高い物質である。このうち、難燃剤では、これまでの 3 年間の研究により臭素系難燃剤のリスクより、有機リン系の難燃剤のリスクがより高いことや、新規化合物が続々と使用されていることが判った。

そこで、本研究では以下の 4 つのサブテーマ(a)～(d)を設定し、これらを連携して進めることによって、「室内環境中の化学物質リスト 1698」に基づく優先取組物質の検索と、予備的リスク評価を行うこととした。これらの研究と併行して、室内に存在する化学物質リストの空白を埋め

るための研究を行った。

以下、サブテーマ毎の目的について詳述する。

サブテーマ(a) 曝露・リスク評価については、昨年度に行った、防災カーテン中の臭素系およびリン系難燃剤の網羅的な定量分析結果を踏まえ、カーテン中の難燃剤のヒトへの曝露経路を明らかにするため、難燃剤の主要な曝露媒体であるハウスダストへの移行メカニズムの解明を行った。また、「室内に存在する化学物質リスト 1698」から有害性と曝露可能性が高い物質としてグリオキサールやグルタルアルデヒドがリストアップされたが、これらの物質について昨年度、2,4-ジニトロフェニルヒトラジン(DNPH)含浸シリカゲルを用いた分析法の開発を行った。本年度は、本方法を用いて、一般住宅の室内空気中濃度の測定を行うことにより実際の曝露量を求めることを目的とした。

サブテーマ(b) ハザード評価ではこれまでに、本研究事業において臭素系難燃剤である decabromodiphenyl ether および tris-(2,3-dibromopropyl) isocyanurate のげっ歯類を用いたハザード評価を行い、それぞれの毒性情報を提供した。このように、未だ毒性情報などを欠く化学物質が数多く存在するため、懸念が高い物質からより詳細な毒性情報を収集していく必要がある。

(5-ethyl-2-methyl-2-oxido-1,3,2-dioxaphosphorinan-5-yl)methyl methylphosphonate (PMMMP)は難燃化を目的に使用されている化学物質であり、実際に室内環境中からも検出されることから、ヒトへのばく露が懸念されている。しかしながら、その毒性評価はほとんどなされていない。

昨年度までに、ラットを用いて推定されるヒトばく露量を考慮した比較的低用量での PMMMP の 1 週間反復投与と毒性試験を実施した結果、本実験条件下での

PMMMP 投与による顕著な影響は認められなかった。しかしながら、化学物質のハザード評価に有用となる、より高用量での生体影響に関しては不明であった。従って、今年度はラットに比較して個体の小さいマウスを用いて、より高い用量での PMMMP の反復投与毒性試験を実施した。

サブテーマ(c) ライブラリ構築では、昨年度には、「室内環境中の化学物質リスト1698」の更新やリスト空白部を埋めるための情報の拡充をおこなった。研究2年目となる本年度は、リストに挙げられた多種の化合物の取り組み優先度を定めるスクリーニング法について確認するとともに、事業者らが任意の物質について、情報を入力してスクリーニング評価できるツールを作成する。

サブテーマ(d) 室内化学物質エミッション評価では、ハウスダストに含まれる難燃剤濃度の実態調査及び化学物質の放散源実態調査のための試料の捕集を実施するとともに、当該家庭において QEESI 問診票によるシックハウスの自己診断調査を行い、室内の難燃剤濃度とシックハウス自己診断結果との比較を目指した。

## B. 研究方法

### サブテーマ(a)

#### (a-1) 防災カーテン中リン系難燃剤のハウスダストへの移行メカニズムの解明

防災カーテンのサンプルは昨年度に調査した3種類のカーテンを用いた。防災カーテン内のリン系難燃剤の濃度は、カーテン No.10 では 3,900  $\mu\text{g-TDCPP}$  (リン酸トリス(1,3-ジクロロ-2-プロピル))  $\text{g}^{-1}$ 、カーテン No.13 では 4,310  $\mu\text{g-TDCPP}$   $\text{g}^{-1}$ 、カーテン No.19 では 4,840  $\mu\text{g-TCsP}$  (リン酸トリクレジル)  $\text{g}^{-1}$  である。

本研究では防災カーテン中のリン系難燃剤のハウスダストへの移行メカニズムとして、下記の二つの移行経路を検討した。一つ目の経路は、防災カーテン中のリン系難燃剤が室内空気中へ放散した後、ハウス

ダストへと吸着する間接移行である。間接移行実験の手順は下記の通りである。カーテンの上に 10 cm  $\times$  10 cm  $\times$  高さ 5 cm のエミッションセルを置き、20 に設定した恒温槽の中に入れた。エミッションセルには、ポリウレタンフォーム (PUF) (直径 90 mm、厚さ 10 mm) を取り付けて、カーテンから放散されたリン系難燃剤をサンプリングした。48、72、168 時間後に恒温槽から取り出し、PUF をアセトン 30 mL で 30 分間、超音波抽出を行った。

もう一つの経路は、防災カーテンに付着したハウスダストへとリン系難燃剤が拡散する直接移行である。直接移行実験の手順は下記の通りである。ハウスダスト (50 mg) を 250  $\mu\text{m}$  メッシュのふるいに通し、カーテン (7 cm  $\times$  7 cm) の上に散布した。その上からステンレススチール製のエミッションセル (10 cm  $\times$  10 cm  $\times$  高さ 5 cm) で覆い、20 に設定された恒温槽の中に置いた。その後 6、24、48、72、120 時間後にサンプリングし、捕集したダストは、アセトン 3.0 mL で 20 分間、超音波抽出を行った。

両実験とも、ハウスダスト中のリン系難燃剤はガスクロマトグラフ質量分析計 (GC/MS) を用いて分析を行った。

#### (a-2) 室内空気中のグリオキサールおよびグルタルアルデヒドの測定

測定対象物質はグリオキサール、グリオキサール、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、アセトンとした。DNPH 含浸シリカゲルを充填した多孔質テフロンチューブをパッシブサンプラーとして用い、一般住宅4戸にて24時間の捕集を行った(2017年夏季、 $n = 2$ )。捕集後、20 vol% ジメチルスルホキシド (DMSO) / アセトニトリル混合液を抽出溶媒として用いてアルデヒド類を抽出した後、分析を行った。内標準物質としては DNPH 誘導化したホルムアルデヒド- $d_2$  とアセトン- $d_6$  を用いた。

アルデヒド類の分析には、液体クロマト

グラフィータンデム質量分析装置 (LC-MS/MS) (Ultimate 3000 – Endura, Thermo Scientific) を用い、カラムは Knitex C18 (長さ 5.0 mm、内径 2.1 mm、粒径 1.3 μm、島津製作所) を用いた。移動相にはメタノールと Milli-Q 水を使用した。イオン化法はエレクトロスプレーイオン化 (ESI) (Negative) を使用し、イオン化電圧を 3300 V、イオントランスファークラップおよびベーパーライザー温度をそれぞれ 250℃ とした。

#### サブテーマ(b)

6 週齢の雄性 CD1 マウス各群 5 匹に生理食塩水に溶解した PMMMP (不純物として CAS No. 42595-45-9 を 20% 含有) を 100、300 又は 1000 mg/kg/day の用量で 1 日 1 回 4 週間強制経口投与した。PMMMP の投与量は、雄性マウスを用いた 1000 mg/kg/day を最高用量とする 1 週間の用量設定試験から設定した。対照群には生理食塩水を投与した。実験期間中は一般状態を観察するとともに、体重、摂餌量及び摂水量を週 1 回測定した。投与終了後、麻酔下にて採血し、血清生化学的検査を実施した。剖検時に全身諸器官・組織を摘出し、脳、肺、心臓、胸腺、肝臓、腎臓、脾臓、副腎、精巣に関しては重量の測定を行った。摘出した全身諸器官・組織については定法に従い病理組織学的検査を実施する。

(倫理面への配慮)

本試験は「国立医薬品食品衛生研究所動物実験の適正な実施に関する規定」に基づき、動物実験計画書を作成し、国立医薬品食品衛生研究所動物実験委員会による審査を受けた後、実施した。

#### サブテーマ(c)

1) 室内化学物質のライブラリの情報更新  
「室内環境中の化学物質リスト 1698」の情報の拡充のため、特に外の作業環境基準の情報を追加・更新を行った。

#### 2) スクリーニング評価ツールの作成

事業者らが任意の物質について、情報を入力してスクリーニング評価できるツールのプロトタイプを作成する。

(倫理面の配慮)

本申請研究により得られた特定の個人・企業等の情報は、許可無く個人・企業等が特定されないような配慮の上で、研究発表等の情報発信を行う。

#### サブテーマ(d)

##### (d-1) 室内ハウスダスト調査

戸建・アパート等7家庭の居室等室内で、市販のハンディー掃除機 (リョウビ BHC1400) を用いて、延べ数十分から 1 時間前後、室内のダストを夏期 (冬期については、12月～2月に実施中) に採取した。

また1家庭については、詳細な季節的变化を確認するため四季における調査を実施中である。

##### (d-2) QEESI 問診票によるシックハウスの自己診断調査

室内化学物質量とシックハウス等の症状との関係を探るため、室内ハウスダスト調査を実施した家屋等の住民に対し、QEESI 問診票の Q1 (化学物質暴露による反応) ~ Q5 (日常生活の支障程度) による自己診断調査を実施した。

##### (d-3) 室内環境でのエミッションセルを用いた化学物質放散源の実態調査

室内ハウスダスト調査を実施した1家庭の室内において、化学物質の放散源の実態を知るため、ポリウレタンフォームを固定したエミッションセル (図1) をフローリングやカーペット等に設置し、そこからの放散する物質の調査を夏期に実施した。

(倫理面への配慮)

室内ハウスダスト調査や QEESI 問診票によるシックハウスの自己診断調査では、個人が特定されないような配慮を行う。また、東京都市大学に倫理審査を申請し、判定を受けた後、実施した。

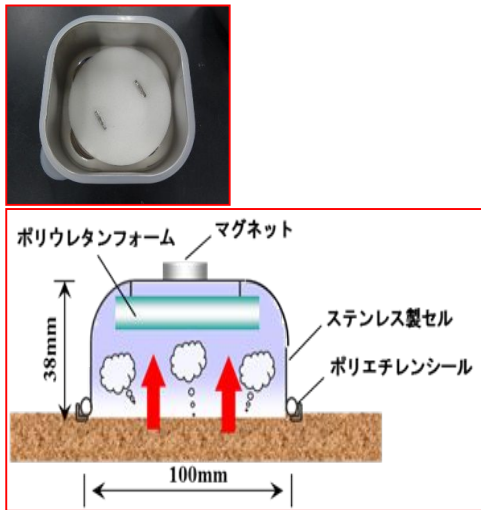


図1 エミッションセルの写真と概要図

なお、サブテーマ(d)は、ハウスダスト中の化学物質の分析をサブテーマ(a)の中で行うこととし、以降の項ではサブテーマ(a)の報告の中に記載する。

### C. 研究結果

#### サブテーマ(a)

##### (a-1) 防災カーテン中リン系難燃剤のハウスダストへの移行メカニズムの解明

防災カーテン中リン系難燃剤のハウスダストへの間接移行実験の結果を図2に示す。間接移行の放散速度を比較すると、カーテン No.5 ( $0.044 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ) よりカーテン No.8 ( $0.17 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ) の方が速かった。また、カーテン No.5 よりもカーテン No.12 ( $0.060 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ) の放散速度の方が速かった。

防災カーテン中リン系難燃剤のハウスダストへの直接移行実験の結果を図3に示す。カーテン No.5 とカーテン No.8 のTDCPPのハウスダストへの直接移行速度を比較すると、カーテン No.5 ( $4.4 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ) よりカーテン No.8 ( $12 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ) の方がより速い移行速度を示した。

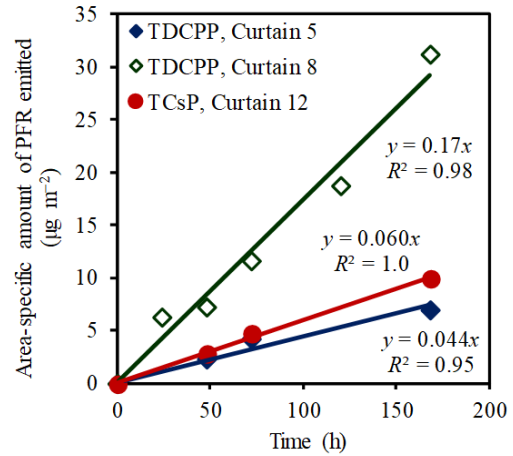


図2 防災カーテン中リン系難燃剤(PFR)のハウスダストへの間接移行実験結果

(TDCPP:リン酸トリス(1,3-ジクロロ-2-プロピル),TCsP:リン酸トリクレジル)

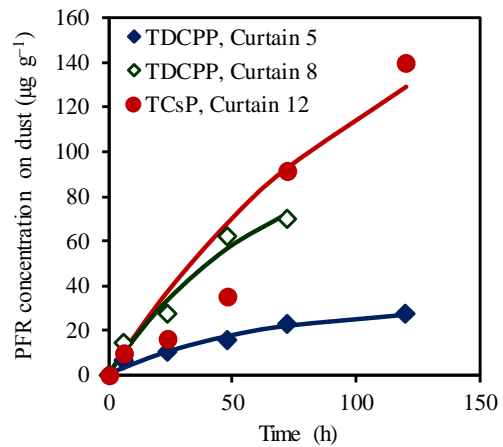


図3 防災カーテン中リン系難燃剤(PFR)のハウスダストへの直接移行実験結果

(TDCPP:リン酸トリス(1,3-ジクロロ-2-プロピル), TCsP:リン酸トリクレジル)

##### (a-2) 室内空気中のグリオキサールおよびグルタルアルデヒドの測定

室内空気中のアルデヒド類濃度は次式に従って算出した。

$$C = \frac{Q_P - Q_B}{V_P t} \times 1000$$

ここで  $C$  はアルデヒド類濃度 (ppb<sub>v</sub>)、 $Q_P$  はパッシブサンプラーによるアルデヒド類の捕集量 (μg)、 $Q_B$  はトラベルブランクに含まれていたアルデヒド類の量 (μg)、 $V_P$  はアルデヒド類の捕集速度 (μg ppm<sub>v</sub><sup>-1</sup> hr<sup>-1</sup>)、 $t$  は捕集時間 (h) である。

本年度調査した 4 戸の一般住宅におけるグルタルアルデヒドの室内空气中濃度は、0.0881ppb<sub>v</sub> (0.355 μg m<sup>-3</sup>、住宅 1)、0.0835ppb<sub>v</sub> (0.337 μg m<sup>-3</sup>、住宅 2)、0.0503ppb<sub>v</sub> (0.203 μg m<sup>-3</sup>、住宅 3) および 0.0325ppb<sub>v</sub> (0.132 μg m<sup>-3</sup>、住宅 4) であった。

一方、グリオキサールの室内空气中濃度は、いずれの住宅においても検出下限値 (<0.0015ppb<sub>v</sub> : <0.0035 μg m<sup>-3</sup>) 以下であった。また、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドおよびアセトンの室内空气中濃度は、85.8–187ppb<sub>v</sub> (104–227 μg m<sup>-3</sup>)、4.48–90.4ppb<sub>v</sub> (7.94–106 μg m<sup>-3</sup>) および 3.54–97.2ppb<sub>v</sub> (8.30–228 μg m<sup>-3</sup>) であった。

### サブテーマ(b)

実験期間中、何れの群においても死亡動物は認められず、一般状態の変化も認められなかった。実験期間中の体重推移及び最終体重について、PMMMP 投与群と対照群間に有意な変化は見られなかった。また、摂餌量並びに摂水量に顕著な変化は認められなかった。

器官重量を測定した結果、100 mg/kg/day 以上の投与群において、副腎絶対重量の有意な高値が認められた。また、300 mg/kg/day 以上の投与群において、副腎相対重量の有意な高値が認められた。副腎以外の器官重量については、統計学的に有意な変化は認められなかった。

血清生化学的検査の結果、300 mg/kg/day 以上の投与群で無機リンの有意な上昇が認められた。また、300 mg/kg/day 投与群のアルブミン / グロブリン比及び 100 mg/kg/day 投与群のグルコースはそれぞれ統計学的に有意な高値を示した。

### サブテーマ(c)

#### 1) 室内化学物質のライブラリの情報更新

「室内環境中の化学物質リスト 1698」の情報の拡充のため、ACGH、OSHA、NIOSH、DFG、AIHA、日本産業衛生会の作業環境基準に関する最新情報を追加・更新を行った。

現時点では、曝露経路「製品→室内空気→吸入曝露」および曝露経路「製品→室内空気→経皮曝露」に関しては、懸念が高く(有害性ランク, 曝露性ランク)=(A, A)の物質としては、図4のようになった。

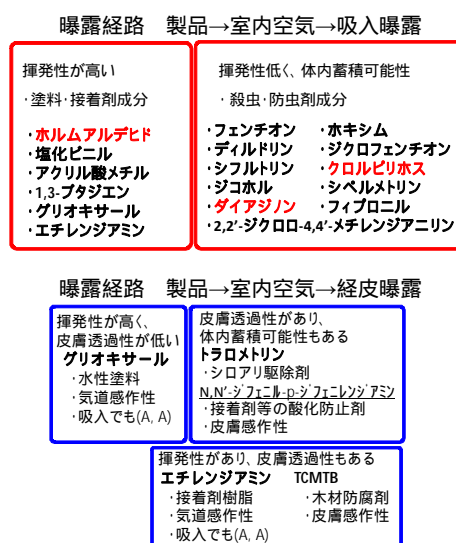


図4 スクリーニング評価結果の例

#### 2) スクリーニング評価ツールの作成

「室内環境中の化学物質ライブラリ」を活用して、事業者らが任意の物質について、情報を入力して、新たな懸念物質になりうるか否かをスクリーニング評価できるツールのプロトタイプを作成した。

吸入曝露の場合、当該物質の有害性に関する情報(定量情報、確度情報)、曝露性に関する情報(室内での使用量や用途情報、物性情報)を入力、選択することで、図5のような各詳細ランクと点数が表示されるエクセルのワークシートを作成した。各ランクと点数より、総合的な評価結果である「有害性ランク(A~Eの5段階)」

と「曝露性ランク (A~E の5段階)」を表示することとした。また、これまでにスクリーニング評価された「室内環境中の化学物質ライブラリ」の搭載物質と比べて、室内汚染の懸念の度合いが上位何%に位置づけられるのかも表示されることとした。これにより、多くの物質群の中での相対的な懸念の度合いを把握することができる。また、室内濃度指針値が設定されている13物質と比較しての懸念の度合いも把握することができる。更に、同様の手法で複数の曝露経路でも同様に評価して、どの曝露経路が上位の点数となるのかも判定が可能となる。

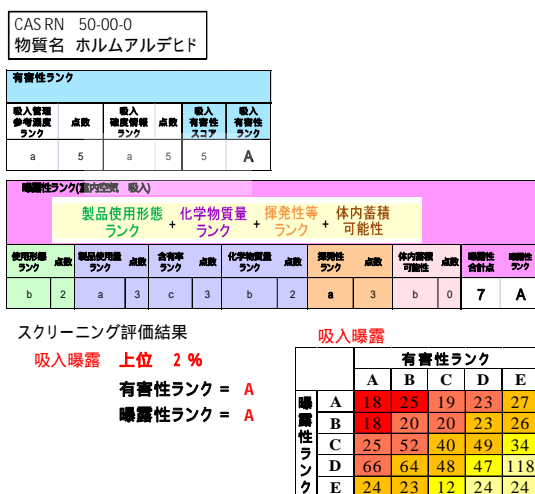


図5 評価結果の出力画面の例

## D. 考察

### サブテーマ (a 及び d)

(a-1) 防災カーテン中リン系難燃剤のハウスダストへの移行メカニズムの解明

間接移行実験において、カーテン No.5 (0.044  $\mu\text{g m}^{-2}\text{h}^{-1}$ )と比較し、カーテン No.8 (0.17  $\mu\text{g m}^{-2}\text{h}^{-1}$ )の移行速度が速かったが、これはカーテン中の高いTDCPP濃度に起因したものだと考えられる。また、カーテン No.5と比較してカーテン No.12 (0.060  $\mu\text{g m}^{-2}\text{h}^{-1}$ )の放散速度の方が速かった要因として、TCsPと比べてTDCPPの蒸気圧がより高いことが考えられた。

直接移行実験の場合、カーテン No.5(4.4

$\mu\text{g m}^{-2}\text{h}^{-1}$ )よりカーテン No.8 (12  $\mu\text{g m}^{-2}\text{h}^{-1}$ )の方がより速い移行速度を示したが、これは防災カーテン中の高いTDCPP濃度に起因したものだと考えられる。間接移行の場合と異なり、直接移行の場合、カーテン No.12からのTCsP (17  $\mu\text{g m}^{-2}\text{h}^{-1}$ )の移行速度はカーテン No.8からのTDCPP (12  $\mu\text{g m}^{-2}\text{h}^{-1}$ )の移行速度と同程度であった。リン系難燃剤の間接移行速度と直接移行速度を比較すると直接移行の方が71~280倍高いという結果となった。

(a-2) 室内空気中のグリオキサールおよびグルタルアルデヒドの測定

本年度調査した4戸の一般住宅におけるグルタルアルデヒドの室内空気中濃度は、グルタルアルデヒドが室内中で使用されている病院の室内空気中濃度(1.30-19.6 ppb<sub>v</sub>)(Katagiri et al., 2006)と比較し、低かった。しかし、検出率は100%であった。

ホルムアルデヒドの室内空気中濃度は、本年度測定したすべての住宅にて室内濃度指針値(80ppb<sub>v</sub>)を超過していた。

### サブテーマ(b)

PM MMPのハザード評価に資するデータの取得を目的に、マウスを用いたPM MMPの4週間反復投与試験を実施した。

その結果、投与期間中には死亡動物はみられず、一般状態の変化も認められなかった。しかしながら、投与終了後の器官重量を測定した結果、副腎重量の有意な増加が認められた。

血清生化学的検査の結果、300 mg/kg/day以上の投与群で無機リンの有意な上昇が認められた。一方、アルブミン/グロブリン比及びグルコースにおいても有意な変化が見られたが、用量依存性が認められなかったことから偶発的な変化であると考えた。現在、病理組織学的検査を実施しており、今後これら解析結果と合わせてPM MMPの生体影響について明らかにする。

## サブテーマ (c)

「室内環境中の化学物質リスト 1698」の情報を更新し、その情報を用いて新たな物質を相対評価できるスクリーニング評価ツールのプロトタイプを作成できた。今後、情報の更新とともに、評価できる曝露経路を増やし、評価ツールの活用事例を作成する。

## E . 結論

曝露・リスク評価グループでカーテン中から見出した化合物のうち、PMMMPをハザード評価グループでマウスを用いた4週間反復投与試験を実施したり、ライブラリ構築グループで高懸念物質としてリストアップしたグリオキサールやグルタルアルデヒドの曝露評価を行うなど、グループ間の連携研究が進み、これらは論文の形で公表することができた。また、本研究事業の他の研究班とは、環境科学会のシンポジウムで意見交換し、それらの情報を一般に公開することができた。

## F . 研究発表

### 1. 論文発表

- 1) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Takashi Amagai, Yasuhiro Takegawa, Yoko Yamagishi, Sayaka Ogo, Kazunari Kume, Takeshi Kobayashi, Shinji Takasu, Kumiko Ogawa, Kurunthachalam Kannan, Identification of Novel Phosphorus-Based Flame Retardants in Curtains Purchased in Japan Using Orbitrap Mass Spectrometry, *Environmental Science & Technology Letters*, 5, 448-455, 2018. (IF=5.869)
- 2) Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Qi Wang, Hayato Nakayama, Takashi Amagai, Sayaka Ogo, Kazunari Kume, Takeshi Kobayashi, Shinji Takasu,

Kumiko Ogawa, Methods for the analysis of organophosphate flame retardants- A comparison among GC-EI-MS, GC-NCI-MS, LC-ESI-MS/MS, and LC-APCI-MS/MS, *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 53, 475-481, 2018. (IF=1.425)

- 3) Qi Wang, Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Takashi Amagai, Yuichi Horii, Kiyoshi Nojiri, Nobutoshi Ohtsuka, Effects of characteristics of waste incinerator on emission rate of halogenated polycyclic aromatic hydrocarbon into environments, *Science of the Total Environment*, 625, 633-639, 2018. (IF=5.102)
- 4) Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai : Unintentional Generation of Chlorinated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons during Cooking, *Organohalogen Compounds*, 80, 544-548, (2018).
- 5) Mai Shindo, Kotone Terao, Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino : Estimating Potential Dermal Exposure to Organophosphorus Flame Retardants via Direct Contact with Products, *Organohalogen Compounds*, 549-552, 80 (2018).
- 6) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Hayato Nakayama, Qi Wang, Takashi Amagai, Sayaka Ogo, Kazunari Kume, Takeshi Kobayashi, Shinji Takasu, Kumiko Ogawa, Kurunthachalam Kannan: Simultaneous Determination of Brominated and Phosphorus Flame Retardants in Flame-Retarded Polyester Curtains by a Novel Extraction Method. *Science of the total Environment*, 601-602, 1333-1339 (2017). IF=5.102
- 5) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura,



- Qi Wang, Zhiwei Wang, Takashi Amagai: Comparison of Volatile Organic Compound Recovery Rates of Commercial Active Samplers for Evaluation of Indoor Air Quality in Work Environments. *Air Quality, Atmosphere & Health*, 10(6), 737-746 (2017). DOI: 10.1007/s11869-017-0465-0. IF=3.102
- 6) Takasu, S., Ishii, Y., Yokoo, Y., Tsuchiya, T., Kijima, A., Kodama, Y., Ogawa, K., Umemura, T. In vivo reporter gene mutation and micronucleus assays in gpt delta mice treated with a flame retardant decabromodiphenyl ether. *Mutat Res Genet Toxicol Environ Mutagen*. 816-817:7-11, 2017.
2. 学会発表
- 1) Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Generation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their derivatives during cooking, The 4th International Conference on Pharma and Food (ICP F2018), Shizuoka, Japan. (November, 2018)
- 2) Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Sayaka Ogo, Kazunari Kume, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Novel effective method to evaluate risks of phosphorus flame retardant, The 4th International Conference on Pharma and Food (ICP F2018), Shizuoka, Japan. (November, 2018)
- 3) Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons and their chlorinated derivatives produced by cooking, THE 23rd Shizuoka Forum on Health and Longevity, Shizuoka, Japan. (November, 2018)
- 4) Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Sayaka Ogo, Kazunari Kume, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Development of screening method to evaluate risks of flame retardants in indoor environments, THE 23rd Shizuoka Forum on Health and Longevity, Shizuoka, Japan. (November, 2018)
- 5) Kento Sei, Qi Wang, Misato Masuda, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, An Analytical Method for Chlorinated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Particles by Thermal Desorption-GC/MS, the 38th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs) & 10th International PCB Workshop (Dioxin 2018), Kraków, Poland. (August 2018)
- 6) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Takashi Amagai, Sayaka Ogo, Kazunari Kume, Takeshi Kobayashi, Shinji Takasu, Kumiko Ogawa, Kurunthachalam Kannan, Identification of Novel Phosphorus Flame Retardants in Curtains Using Orbitrap Mass Spectrometry, the 38th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs) & 10th International PCB Workshop (Dioxin 2018), Kraków, Poland. (August 2018)
- 7) Masahiro Tokumura, Kosuke Muramatsu, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Comparison of Rates of Direct and Indirect Migration of Phosphorus Flame Retardants from Flame-Retardant-Treated Polyester Curtains to Indoor Dust, the 38th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs) & 10th International PCB Workshop (Dioxin 2018), Kraków, Poland. (A

- ugust 2018)
- 8) Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Unintentional Generation of Chlorinated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons during Cooking, the 38th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs) & 10th International PCB Workshop (Dioxin 2018), Kraków, Poland. (August 2018)
  - 9) Mai Shindo, Kotone Terao, Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Estimating Potential Dermal Exposure to Organophosphorus Flame Retardants via Direct Contact with Products, the 38th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs) & 10th International PCB Workshop (Dioxin 2018), Kraków, Poland. (August 2018)
  - 10) Haruna Nishio, Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Yasuhiro Fukushima, Yoshihiro Suzuki, Takanori Enomoto, Effects of Environmental Factors on Sampling Rates of VOCs with Porous Tube-Type Passive Samplers, The Joint Annual Meeting of the International Society of Exposure Science and the International Society for Environmental Epidemiology (ISES-ISEE 2018), Ottawa, Canada. (August 2018)
  - 11) Kosuke Muramatsu, Hiroshi Aiuchi, Yuta Goro, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Takanori Ambo, Masakazu Minagawa, Ryutaro Ishibashi, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Decolorization of Colored Effluent from Textile Manufacturing Industry in Bangladesh by Photo-Fenton Reaction Coupled with Catalyst, The 12th Asia Impact Assessment Conference (AIC 2018), Shizuoka, Japan. (August 2018)
  - 12) Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Environmental impact of halogenated polycyclic aromatic hydrocarbons emitted from E-waste recycling activities in Vietnam, The 12th Asia Impact Assessment Conference (AIC 2018), Shizuoka, Japan. (August 2018)
  - 13) Mai Shindo, Kotone Terao, Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Device for Measuring Dermal Exposure Rate of Flame Retardants via Direct Contact with Products, The 12th Asia Impact Assessment Conference (AIC 2018), Shizuoka, Japan. (August 2018)
  - 14) Jumpei Miyazaki, Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Muhammad Rafiqul Islam, Qi Wang, Yuichi Miyake, Masahiro Sakata, Shigeki Masunaga, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Arsenic and Heavy Metal Contaminations of Rice Grown in Bangladesh, The 12th Asia Impact Assessment Conference (AIC 2018), Shizuoka, Japan. (August 2018)
  - 15) Masahiro Tokumura, Makoto Sekine, Mohammad Raknuzzaman, Md Habiburrahman Al Mamun, Md Kawser Ahmed, Muhammad Rafiqul Islam, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Shigeki Masunaga, Masakazu Makino, Feasibility of Quantitative Image Analysis Method to Improve Performances of Arsenic Field Test Kit for Screening of Tube Well Waters in Bangladesh, The 12th Asia Impact Assessment Conference (AIC 2018), Shizuoka, Japan. (August 2018)
  - 16) Masahiro Tokumura, Sayaka Ogo, Kaz

- unari Kume, Kosuke Muramatsu, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Migration Mechanism of Phosphorus Flame Retardants from Flame-Retardant-Treated Polyester Curtains to Indoor Dust, the 15th Conference of the International Society of Indoor Air Quality & Climate (ISIAQ) (Indoor Air 2018), Philadelphia, PA, USA. (July 2018)
- 17) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Takashi Amagai, Novel Phosphorus Flame Retardants Found from Flame-Retardant Curtains Purchased from Japanese Market, the 15th Conference of the International Society of Indoor Air Quality & Climate (ISIAQ) (Indoor Air 2018), Philadelphia, PA, USA. (July 2018)
- 18) Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Determination of Chlorinated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Sediments, The Water and Environment Technology Conference 2018 (WET 2018), Ehime, Japan. (July, 2018). **【The WET Excellent Presentation Award受賞】**
- 19) Kosuke Muramatsu, Hiroshi Aiuchi, Yuta Goro, Masahiro Tokumura, Takano Ari Ambo, Masakazu Minagawa, Ryutarou Ishibashi, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Mechanism of Photo-Fenton Reaction Coupled with Catalyst Investigated by Kinetic Model, The Water and Environment Technology Conference 2018 (WET 2018), Ehime, Japan. (July, 2018).
- 20) 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 福島 靖弘, 鈴木 義浩, 榎本 孝紀, 活性炭・シリカゲルチューブを用いた作業環境における揮発性有機化合物の回収率に関する検討, 平成30年室内環境学会学術大会, 東京. (2018年12月)
- 21) 増田 美里, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 加熱調理により生成した多環芳香族炭化水素とその塩素化体の曝露経路別リスク評価, 平成30年室内環境学会学術大会, 東京. (2018年12月)
- 22) 清 健人, 王 斉, 増田 美里, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 加熱脱着法を用いた塩素化多環芳香族炭化水素類 (CIPAHs) の室内濃度の実態調査, 平成30年室内環境学会学術大会, 東京. (2018年12月)
- 23) 村松 孝亮, 徳村 雅弘, 小郷 沙矢香, 久米 一成, 王 斉, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, カーテン中に含まれるリン系難燃剤の反応速度論的解析, 平成30年室内環境学会学術大会, 東京. (2018年12月) **【優秀ポスター賞受賞】**
- 24) 新堂 真生, 村松 孝亮, 徳村 雅弘, 王 斉, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 室内製品との直接接触に伴うリン系難燃剤の経皮曝露量スクリーニング法の開発, 平成30年室内環境学会学術大会, 東京. (2018年12月) **【優秀ポスター賞受賞】**
- 25) 増田 美里, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 食品や調理排気中に存在する多環芳香族炭化水素誘導体のリスク評価, 富士山麓A&Sフェア2018, 富士. (2018年11月)
- 26) 清 健人, 王 斉, 増田 美里, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 高橋 ゆかり, 粒子状の発がん物質生成に対する室内暖房の寄与, 富士山麓A&Sフェア2018, 富士. (2018年11月)
- 27) 三輪 春樹, 古川 美乃里, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 高橋 ゆかり, ハウスダスト中に含まれる家庭製品由来の難燃剤の実態調査, 富士山麓A&Sフェア2018, 富士. (2018年12月)

- 18年11月)
- 28) 西尾 春菜, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 福島 靖弘, 鈴木 義浩, 榎本 孝紀, 有害物質 (VOCs) の個人曝露におけるサンプラーの精確性の検討, 富士山麓A&Sフェア2018, 富士. (2018年11月)
- 29) 新堂 真生, 徳村 雅弘, 王 斉, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 身の回りの製品に含まれる化学物質の経皮曝露量測定法の開発, 富士山麓A&Sフェア2018, 富士. (2018年11月)
- 30) 宮崎 淳平, 村松 孝亮, 徳村 雅弘, イスラム ラフィクール ムハンマド, 王 斉, 三宅 祐一, 坂田 昌弘, 益永 茂樹, 雨谷 敬史, 牧野 正和, バングラデシュの重金属汚染におけるコメの栽培方法の最適化による健康リスク低減策の提案, 富士山麓A&Sフェア2018, 富士. (2018年11月)
- 31) 天野 あすか, 五老 祐大, 徳村 雅弘, 王 斉, 保田 倫子, 内藤 博敬, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 食品の加熱により生成する新規有害物質の代謝を考慮した毒性評価, 富士山麓A&Sフェア2018, 富士. (2018年11月)
- 32) 村松 孝亮, 五老 祐大, 徳村 雅弘, 王 斉, 安保 貴永, 皆川 正和, 石橋 龍太郎, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 開発途上国ための低コスト排水処理プロセスの開発, 富士山麓A&Sフェア2018, 富士. (2018年11月)
- 33) 柴崎 祐希, 徳村 雅弘, 王 斉, 三宅 祐一, 坂田 昌弘, 内藤 博敬, 戸敷 浩介, 雨谷 敬史, 牧野 正和, モンゴル国における自動車の普及に伴う土壌の重金属汚染の実態調査, 富士山麓A&Sフェア2018, 富士. (2018年11月)
- 34) 増田 美里, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 調理により生成する多環芳香族炭化水素とその塩素化体の経路別曝露量の比較, 環境科学会 2017年会, 東京. (2018年9月) 【優秀発表賞受賞】
- 35) 三輪 春樹, 古川 美乃里, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 高橋 ゆかり, ハウスダストを介した規制・未規制難燃剤の曝露・リスク評価, 環境科学会 2017年会, 東京. (2018年9月)
- 36) 清 健人, 王 斉, 増田 美里, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 塩素化多環芳香族炭化水素類 (CIPAHs) 個人曝露評価のための高感度分析法の開発, 環境科学会 2017年会, 東京. (2018年9月)
- 37) 新堂 真生, 寺尾 琴音, 村松 孝亮, 徳村 雅弘, 王 斉, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 製剤中難燃剤の直接接触に伴う経皮曝露量推算のための測定デバイスの開発, 環境科学会 2017年会, 東京. (2018年9月)
- 38) 宮崎 淳平, 村松 孝亮, 五老 祐大, 徳村 雅弘, イスラム ムハンマド, 王 斉, 三宅 祐一, 坂田 昌弘, 益永 茂樹, 雨谷 敬史, 牧野 正和, バングラデシュにおける稲品種および水管理方法の違いによるコメ中ヒ素および重金属濃度への影響, 環境科学会 2017年会, 東京. (2018年9月) 【優秀発表賞受賞】
- 39) 天野 あすか, 五老 祐大, 徳村 雅弘, 王 斉, 内藤 博敬, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 新規環境汚染物質である塩素化多環芳香族炭化水素類の包括的かつ統合的環境影響評価, 環境科学会 2017年会, 東京. (2018年9月)
- 40) 村松 孝亮, 五老 祐大, 王 斉, 徳村 雅弘, 安保 貴永, 皆川 正和, 石橋 龍太郎, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 反応速度論的解析に基づく排水処理プロセスの改善策の提案, 環境科学会 2017年会, 東京. (2018年9月)

- 月)
- 41) 徳村 雅弘, 瀬尾 真紀子, 王 斉, 甲斐 葉子, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, マニキュア液中に含まれる可塑剤の経皮曝露を考慮した確立論的リスク評価, 第27回日本臨床環境医学会学術集会, 三重. (2018年7月)
- 42) 三輪 春樹, 古川 美乃里, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 高橋 ゆかり, ハウスダスト中の代替難燃剤の一斉分析法の検討, 第27回環境化学討論会, 那覇. (2018年5月)
- 43) 西尾 春菜, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 福島 靖弘, 鈴木 義浩, 榎本 孝紀, 多孔性チューブ型パッシブサンプラーにおけるVOCsのサンプリングレートの影響要因に関する研究, 第27回環境化学討論会, 那覇. (2018年5月)
- 44) 清 健人, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 加熱脱着-GC/MSを用いた粒子状塩素化多環芳香族炭化水素類 (C1PAHs) 分析法の開発, 第27回環境化学討論会, 那覇. (2018年5月)
- 45) 新堂 真生, 寺尾 琴音, 村松 孝亮, 徳村 雅弘, 王 斉, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 製品中難燃剤の直接接触に伴う経皮曝露量測定デバイスの基礎的検討, 第27回環境化学討論会, 那覇. (2018年5月) 【RSC賞受賞】
- 46) 宮崎 淳平, 村松 孝亮, 五老 祐大, 徳村 雅弘, イスラム ムハンマド, 王 斉, 三宅 祐一, 坂田 昌弘, 益永 茂樹, 雨谷 敬史, 牧野 正和, バングラデシュにおけるコメのヒ素および重金属汚染の実態調査, 第27回環境化学討論会, 那覇. (2018年5月)
- 47) 村松 孝亮, 相内 博, 五老 祐大, 徳村 雅弘, 安保 貴永, 皆川 正和, 石橋 龍太郎, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 触媒併用型フォトフェントン反応による汚染物質除去機構の反応速度論的解析, 第27回環境化学討論会, 那覇. (2018年5月)
- 48) 増田 美里, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 底質および魚介類中の塩素化ピレンとそのヒドロキシ誘導体の分析法の開発, 第27回環境化学討論会, 那覇. (2018年5月)
- 49) 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, マニキュア液中に含まれるリン系化合物の経皮曝露を考慮した確率論的リスク評価スキームの構築, USフォーラム 2018, 静岡. (2018年4月)
- 50) 増田 美里, 相内 博, 徳村 雅弘, 五老 祐大, 王 斉, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 水生生物中のハロゲン化多環芳香族炭化水素及びその誘導体の分析法の開発, 第52回日本水環境学会年会, 札幌. (2018年3月)
- 51) 村松 孝亮, 相内 博, 五老 祐大, 徳村 雅弘, 安保 貴永, 皆川 正和, 石橋 龍太郎, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 触媒併用型フォトフェントン反応の汚染物質除去メカニズムの解明, 第52回日本水環境学会年会, 札幌. (2018年3月)
- 52) 相内 博, 徳村 雅弘, 五老 祐大, 王 斉, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 塩素化多環芳香族炭化水素類 (C1PAHs) とその誘導体の生体毒性評価, 第52回日本水環境学会年会, 札幌. (2018年3月)
- 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

