厚生労働科学研究費補助金(化学物質リスク研究事業) 総合研究報告書

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、3年引き続きシンポ ジウムを開催して議論した。以下、サプテーマ毎の要旨を報告する。

サブテーマ(a) <u>曝露評価・リスク評価</u>では、一年目に、防炎カーテン中の臭素系および有機リン系難燃剤 の網羅的な定性・定量分析を行った。本研究で開発した完全溶解法と精密質量数を組み合わせた定性分析法 により、有機リン系難燃剤として 6-benzylbenzo[c][2,1]benzoxaphosphinine 6-oxide(BzlDOPO) (5-ethyl-2-methyl-2-oxido-1,3,2-dioxaphosphorinan-5-yl)methyl methyl methylphosphonate (PMMMP)、 naphthalen-2-yl diphenyl phosphate (NDPhP)の3種を市販の防炎カーテンから初めて検出した。その成果を踏まえ、二年目では難燃 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、有機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。三年目には、国内の29ヶ所の一般住宅から採集したハウスダスト中の有機リン 系難燃剤濃度を実測し、ハウスダスト経由のヒトへの有機リン系難燃剤の経口・経皮曝露量の推定およびそ のリスク評価を行った。また、「室内に存在する化学物質リスト 1698」においてリスク懸念物質として挙がっ たグリオキサールやグルタルアルデヒドの分析方法を確立し、一般住宅における空気中濃度を実測し、汚染 実態調査を行った。

サブテーマ(b)<u>ハザード評価</u>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。そこで、本研究ではPMMMPの ハザード評価に資するための情報を得る目的で、げっ歯類を用いた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 0、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、投与期間中の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。器官重量を測定した結果、300 mg/kg/day 以上の PMMMP 投与群において副腎重量の有意な高 値が認められたが、病理組織学的な変化は認められなかったことから毒性学的意義の乏しい変化であると考 えた。血清生化学的検査の結果、300 mg/kg/day 以上の投与群において無機リンの有意な高値が認められた が、カルシウムの変動を伴う変化でなく、関連する臓器において病理組織学的変化が認められなかったこと から毒性影響ではないと判断した。雄性 CD1 マウスに 1000 mg/kg/day の PMMMP を 4 週間反復投与しても 毒性影響は観察されなかったことから、本実験条件下における PMMMP の NOAEL は雄で 1000 mg/kg/day 以 上と判断した。また、同一実験条件下における骨髄小核試験を実施した結果、PMMMP は小核誘発性は示さ ないと考えられた。さらに、マウスの血液学的検査の結果、1000 mg/kg/day 投与群において、血小板数の有 意な高値のみが認められた。

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。また、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。さらに、ライブラリへの入力情報の更新とともに、スクリーニング評価ツールについて、多様な 曝露経路を考慮して評価できるよう拡充・改良とツール公開のための準備や確認を行った。

サブテーマ(d)<u>実際の室内環境でのエミッション評価</u>では、サブテーマ(a)と共同で住宅内の市販の防炎 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。また、ダスト中の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住民に対し、QEESI 問診票アンケートを行い、 ハウスダスト中の化学物質濃度との関係について検討を行った。高濃度で検出された上位 5 物質の有機リン 系難燃剤の値と QEESI のスコア値について比較検討を行った結果、今回の調査では両者に明確な関連性は見 いだせなかった。

(総括)研究3年目の2019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群で ある。このうち、難燃剤では、以前使用されてい たヘキサブロモシクロドデカン(HBCD)が規制 されたことにより、代替品が使用され始めている。 これまでの研究では、HBCD 代替品を含む有機リ ン系及び臭素系難燃剤について曝露評価、ハザー ド評価を連携して行い、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と推 定されることや、新規化合物が続々と使用されて いることなどが判った。

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、 一年目では、化学構造が未知である難燃剤の簡易 かつ迅速な定性分析法の開発を目的として、完全 溶解法と精密質量数を組み合わせた定量分析ス キームの開発を行った。次に本方法を用いて、化 学構造が未知である難燃剤も含めた、防炎カーテ ン中の臭素系および有機リン系難燃剤の網羅的 な定量分析を行った。その成果を踏まえ、二年目 では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。三年目では、2015-2019年に国内の29軒の 一般住宅から採集したハウスダストに対して、有 機リン系難燃剤の濃度レベルを実測した上で、新 規有機リン系難燃剤の汚染実態を把握し、さらに ハウスダスト中の各有機リン系難燃剤濃度を用 いて、ハウスダストの経口・経皮曝露に伴うリス クを推算した。

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室内環境中の 分析法が確立されていないため、本研究では 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。さらに、 一般住宅の室内空気中濃度の測定を行い、曝露量 を推算した。

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-(2,3dibromopropyl) 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。

ー年目では、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、二年目はラット 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。三年目は、PMMMP のより詳細な生体影響 を明らかにする目的で、同一実験条件下における 血液学的検査及び骨髄小核試験を追加検討した。

サブテーマ(c) ライブラリ構築では、平成 29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年目以降は、リストに挙げ られた多種の化合物の取り組み優先度を決める 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のプロトタイプ を作成した。3年目は、情報の更新とともに、多 様な曝露経路を考慮して評価できるよう、スクリ ーニング評価ツールの拡充改良とツール公開の ための準備や確認を行った。

サブテーマ(d)では、室内化学物質エミッショ ン評価についての検討を行った。室内空気汚染対 策として厚生労働省では、室内空気汚染に係る13 物質の室内濃度指針値を設定し、建築基準法では ホルムアルデヒドを発散する建材の使用制限を するなど、それらの対策効果により室内環境は改 善されてきた。しかし、家具や電化製品など室内 に持ち込まれた部材から発生する未規制の化学 物質の問題が残されている。

室内に持ち込まれる物としてカーテンは、一般 家庭室内では窓等に設置されており、その使用頻 度や面積・容積規模から、化学物質が放散された 場合、室内環境への負荷率が大きい家庭用品であ る。防炎カーテンの難燃剤は代替化が進んでいる が、その代替難燃剤の有害性が不明なものも多く、 代替品による新たなリスクの発生が懸念される。 これら難燃剤のようなSVOCは室内空気よりハウ スダストから高濃度で検出され、ヒトへの暴露経 路としてハウスダストの摂取が重要な経路であ るとされている。そこでダストへ移行経路を明ら かにするために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 を行うための試料採取を実施した。。

```
B.研究方法
```

サブテーマ(a)

(a-1) 化学構造が未知である難燃剤も含めた防炎 カーテン中の臭素系および有機リン系難燃剤の 分析 (H29 年度)

本サブテーマでは、2014年に日本国内で購入した40種類の防炎カーテンをサンプルとした。防炎カーテンは,主にポリエステル製であり、アクリル繊維などとの混紡したものも含む。防炎カーテンの情報を表1に示す。

完全溶解法の操作手順は、防炎カーテンを 100 mg 程度になるよう切断し、2 mL の 25% ヘキサフ ルオロイソプロパノール(HFIP)/クロロホルム (CHF)混合溶媒を添加し、超音波を 20 分間照射 した。その後、8 mL のトルエンを添加することで ポリマー成分を沈殿させ、10 分間超音波を照射し た。遠心分離(3000 rpm、10 分間)後、上澄み液 10 µL をアセトニトリルで希釈(溶媒置換)し、 最終液量を 1 mL とした。

完全溶解法により均一相となったサンプルを 液体クロマトグラフ-オービトラップ質量分析装 置(LC-Orbitrap-MS)で分析することにより、化学 構造が未知である物質の精密質量数を得た。精密 質量数を基に化学式を推定し、難燃剤としての登 録状況など(例えば特許情報)を参考に、候補物 質を選定した。候補物質の標準物質を入手し、ガ スクロマトグラフ-質量分析計(GC-MS)での保持 時間やマススペクトルなどを比較することで同 定を行った。

本研究では18種類の臭素系難燃剤と、15種類 の有機リン系難燃剤に加え、定性分析により明ら かとなった新規難燃剤も測定対象とした。定量分 析は液体クロマトグラフ-タンデム型質量分析計 (LC-MS/MS)で行った。分析条件のうち、ガス流 量や気化温度などを表2に、検出質量数などを表 3に示す。

(a-2) 防炎カーテン中有機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(H30年度)

防炎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。防炎カーテン内の有機 リン系難燃剤の濃度は、カーテン No.5 では 3,900 µg-TDCPP(リン酸トリス(1,3-ジクロロ-2-プロピ ル))g⁻¹、カーテン No.8 では 4,310 µg-TDCPP g^{-1} 、カーテン No. 12 では 4,840 μg -TCsP(リン酸 トリクレジル) g^{-1} である。

本研究では防炎カーテン中の有機リン系難燃 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、 防炎カーテン中の有機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 × 10 cm × 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有機 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、防炎カーテンに付着した八 ウスダストへと有機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 µm メッシ ュのふるいに通し、カーテン(7 cm × 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 × 10 cm × 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、ハウスダスト中の有機リン系難燃 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-3) ハウスダストに含まれる有機リン系難燃剤の曝露・リスク評価(R1年度)

本研究では、初年度に行った防炎カーテン中の 有機リン系難燃剤の網羅的な定量分析に関する 研究成果として得られた3種類の新規有機リン系 難燃剤である6-benzylbenzo[c][2,1] benzoxaphosphinine 6-oxide(BzlDOPO)(5-ethyl-2methyl-2-oxido-1,3,2-dioxaphosphorinan-5-yl)methyl methyl methylphosphonate (PMMMP) Naphthalen-2-yl diphenyl phosphote (NDPhP)に加えPMMMP の二量体であるbis [(5-ethyl-2-methyl-1,3,2dioxaphosphorinan-5-yl)methyl]methyl phosphonate p,p'-dioxide(di-PMMMP)を含む、合計19種類 の有機リン系難燃剤を測定対象とした。対象化合物のCAS 番号、定量下限値などを表4に示す。

ハウスダストは 2015-2019 年に国内の 29 軒の 一般住宅から採取した。そのうち、季節により PFRs の濃度変化の有無を調査するため、2017 年 に、同じ住宅(n=7)において夏季と冬季のダスト をそれぞれ採集した。ダストの採取には紙パック 式の掃除機を用いた。捕集したダストサンプルは ステンレス篩(メッシュサイズ 250 µm) にかけた 後、適量を円筒形ろ紙に取り出した。ソックスレ ー抽出器を用いてジクロロメタンにより 18 時間 抽出を行った。抽出液はロータリーエバポレータ ーと窒素パージにより濃縮を行った後、アセトニ トリルへ溶媒交換し、液体クロマトグラフ-タンデ ム型質量分析計(LC-MS/MS)にて分析を行った。 Tris(Butoxyethyl) Phosphate (TBOEP) $-d_{12}$, Tris(2-Chloroethyl) Phosphate (TCEP) $-d_{12}$, Tris(2-Ethylhexyl) Phosphate (TEHP) $-d_{51}$, Tricresyl Phosphate(TCsP)- d_{21} , Triphenyl Phosphate(TPhP) -d₁₅をクリーンアップスパイクとして、Tributyl Phosphate(TBP)-d27をシリンジスパイクとして用 いた。

曝露量は、経口曝露量と経皮曝露量を別々に推 算し、合計することで1日当たりの曝露量を推算 した。体重は成人 60 kg、児童 18 kg を用いた。経 口曝露量の推算には、成人の1日当たりのダスト 摂取量として 30 mg(最大摂取量:50 mg)を用い、 児童の1日当たりのダスト摂取量は 60 mg(最大 摂取量:200 mg)を用いた。経皮曝露量の推算に ついては、成人の曝露する皮膚表面積として 4154 cm、皮膚のダスト付着量として 0.01 mg cm⁻²を用 い、児童の場合は 2308 cm および 0.04 mg cm⁻²を それぞれ用いた。リスクの指標である曝露マージ ン(MOE)は、無毒性量(No Observed Adverse Effect Level: NOAEL)(mg kg-bw⁻¹ day⁻¹)などの毒性値 を、1日の推定曝露量(mg kg-bw⁻¹ day⁻¹)(経口 および経皮曝露量の和)で除して求めた。

(a-4) 室内空気中のグリオキサールおよびグルタ ルアルデヒド測定法の開発(H29年度)

パッシブ法により空気中の VOCs 濃度を算出す る場合、対象物質に対するサンプラーの捕集速度 は不可欠なパラメーターの一つである。正確な捕 集速度を算出するため、本研究では温度、湿度、 および気流速度を制御できるパッシブサンプラ ー評価用のチャンバーを用いた。パッシブサンプ ラー(n=4)(図1)とアクティブサンプラー(n=4) の同時捕集(8時間)を行い、グリオキサールお よびグルタルアルデヒドに対するパッシブサン プラーの捕集速度を測定した。

一般的に、DNPH 法によるアルデヒド・ケトン 類の抽出溶媒としては、アセトニトリルが使用さ れているが、この場合、グリオキサールの DNPH 誘導体が数 µg/mL 程度で飽和状態になり、結晶が 析出するため、本研究では、20vol%ジメチルスル ホキシド (DMSO) / アセトニトリル混合液を使 用して、標準溶液作成用および抽出用の溶媒とし た。

分析装置は LC-MS/MS (Ultimate 3000 - Endura, Thermo Scientific)、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。移動相はメタノールと Milli-Q 水を使用 した。イオン化法は ESI(Negative)を使用し、イ オン化電圧を 3300 V、ion transfer tube および vaporizer 温度を 250 とした。

(a-5) 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(H30, R1 年度)

測定対象物質はグルタルアルデヒド、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-d₂ とアセ トン-d₆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 ァーチューブおよびベーパライザー温度をそれ ぞれ 250 とした。

サブテーマ(b)

(b-1) ラットを用いた PMMMP の反復投与毒性 の検討

6週齢の雌雄 Slc:SD ラット各群 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0.1、1または10 mg/kg の用量で1週間強制経口投与した。対照群には生 理食塩水を投与した。PMMMP 投与量は、室内八 ウスダストから検出された PMMMP 濃度および ヒトが環境中からばく露されるハウスダストの 推定ばく露量を基に、推定される PMMMP ばく露 量のおおよそ10,000、100,000 および1,000,000 倍 に相当する量に設定した。投与期間中は一般状態 を観察するとともに、体重を測定した。投与終了 後、肺、心臓、肝臓、腎臓、脾臓を摘出し、器官 重量の測定を行った。

(b-2) マウスを用いた PMMMP の反復投与毒性 の検討

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 CD1 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した。

(b-3) マウスを用いた PMMMP の骨髄小核誘発 性の検討

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または1000 mg/kg体重/日の用量で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、 4週間反復投与毒性試験と同一の用量とした。対 照群には生理食塩水を投与し、陽性対照群には ethyl methanesulfonate (EMS)を100 mg/kg 体重の 用量で1日1回28日間強制経口投与した。投与 終了後、麻酔下にて採血し、血液学的検査を、並 びに大腿骨より骨髄を採取し骨髄小核試験を実 施した。

(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)

(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」の情報の拡充 のため、物性情報・毒性情報等の追加の確認・更 新のため、「17120の化学商品」、ACGH、OSHA、 NIOSH、DFG、AIHA、日本産業衛生会の作業環境 基準(吸入毒性情報)に関する最新情報の確認と ともに、情報データベースを、スクリーニング評 価ツールで利用しやすいように整理した。

本研究で考慮することとした曝露経路は図2に示 す7つの曝露経路であり、 製品からの室内空気 への移行吸入曝露、 製品からの室内空気への 移行 経皮曝露、 製品からの室内空気への揮 発 食品や水への溶解・吸収(濃縮) 経口曝露 (は食品中の水分 は油分への吸収) 製品 から室内ダストへの移行吸入曝露、 製品から 室内ダストへの移行経口曝露、 製品への直接 接触 経皮曝露について、曝露経路毎にスクリー ニング手法を提案している。これを用いて、スク リーニング結果の検証と手法の改善(特に用途情 報を再確認し、化学物質量ランクの妥当性確認) を行った。

特に、各曝露経路で高リスク懸念となった、(有 害性ランク,曝露性ランク)=(A,A)(A,B)(B,A) の物質については、評価結果が妥当か、特に判定 の根拠となった情報について、その妥当性を確認 し、情報データベースも修正、更新した。

なお、本研究では有害性ランクの決定は表 5、 曝露性ランクの決定は図 3 および図 4 (吸入曝露 の例)に示している。

(c-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について、令 和元年度は、多様な前述の7つの曝露経路を考慮 して評価できるよう、スクリーニング評価ツール の拡充改良とツール公開のための準備や確認を 行った。

新たな化学物質について、有害性情報と曝露情

報とを入力すれば、これまでにスクリーニング評価された物質と比べて、相対的なリスク懸念の程度が表示されるツールの作成を行った。誰でも容易に使用できるよう、ユーザーインターフェースは、Microsoft社の Eccel のワークシートを用いて、評価できるようにすることとした。

(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、 延べ数十分から数時間、室内のダストを採取した (図 5)。2018年度は、6家庭について夏期と冬期 にそれぞれ室内の居間等で、また1家庭については、 詳細な季節的変化を確認するため四季(春期、夏 期、秋期、冬期)における調査を実施した(表6-1)。 2019年度は、夏期8軒、冬期9軒の家庭でハウスダ スト捕集調査(1軒の家庭では四期)を実施した (表6-2)。

(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 戸建・アパート等の住民に対し、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(表7)。

(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 6)を用いた調査を実施した。

室内ハウスダスト調査を実施した1家庭におい て夏期及び冬期に、カーテン、フローリングやカ ーペット等にエミッションセルを室内の7か所に 約3日間設置し、そこからの放散する物質の捕集を 行った(表8)。

(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。

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) 化学構造が未知である難燃剤も含めた防炎 カーテン中の臭素系および有機リン系難燃剤の 分析(H29年度)

完全溶解法を用いることで、抽出溶媒中に確実 に難燃剤を抽出できるため、GC-MSのスキャン分 析により未知の難燃剤由来だと思われるピーク が検出された(図7)。これらのピークのMSスペ クトルを The National Institute of Standards and Technology (NIST)の質量スペクトルライブラリ にて検索を行った結果、難燃剤と思われる物質は ヒットしなかった(図8)。

そこで、LC-Orbitrap-MS を用いた定性分析法を 試みた。LC-Orbitrap-MS を用いることで、未知物 質の精密質量を得ることができた(図9)。未知物 質の精密質量数やプロダクトイオンスペクトル をオンラインデータベースである MAGMa のライ ブラリ検索により、候補物質を選定した(表 9)。 防炎カーテン中の未知物質と、候補物質の標準試 薬の LC-Orbitrap-MS と GC-MS のリテンションタ イムと MS スペクトルを比較することで、最終的 な同定を行った(図10-12)。本方法により、市販 の防炎カーテンから 6benzylbenzo[c][2,1]benzoxaphosphinine 6-oxide (BzlDOPO) (5-ethyl-2-methyl-2-oxido-1,3,2-dioxa phosphorinan-5-yl)methyl methyl methylphosphonate (PMMMP) , naphthalen-2-yl diphenyl phosphate (NDPhP)が検出された(表 10)。以上の3種の 新規難燃剤を含む、防炎カーテン中の難燃剤の測 定結果を図13に示す。多くのカーテンより、新規 難燃剤が検出された。

(a-2) 防炎カーテン中有機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(H30年度) 昨年度に調査した3種類のカーテン内の有機リ ン系難燃剤の濃度を表 11 に示す。また、防炎カ ーテン中有機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 14 および表 12 に示す。 間接移行の放散速度を比較すると、カーテン No. 8 (0.17 µg m⁻² h⁻¹)よりカーテン No. 5 (0.044 µg m⁻² 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 µg m⁻² h⁻¹)の放散速 度の方が速かった(表 13)。

防炎カーテン中有機リン系難燃剤のハウスダ ストへの間接移行のモデル式を下記のとおり構 築した。

$$\frac{1}{A}\frac{d(Mq_A + A_W q_W)}{dt} = \frac{dE}{dt} = k_a (C_a^* - C_a)$$
(1)

ここで、A は放散面積、M は吸着剤の量、 qA は 有機リン系難燃剤の吸着濃度、AW はエミッショ ンセルの壁面面積、qW はエミッションセル壁面 への吸着濃度、t は時間、E は単位面積当たりの有 機リン系難燃剤の放散速度、ka は放散速度定数、 Ca*は平衡状態における気相中有機リン系難燃剤 濃度、Ca は気相中有機リン系難燃剤濃度を示す。 また、気相中有機リン系難燃剤はただちに吸着剤 に吸着すると仮定すると、下記の式の様に変換さ れる。表 13 に実験から得られた速度論的パラメ ーターをまとめた。

$$\frac{dE}{dt} = k_a C_a^{*} = k' \tag{2}$$

防炎カーテン中有機リン系難燃剤のハウスダ ストへの間接移行における温度の影響について 調べた結果を図 15 および表 14 に示す。温度が 20 では、間接移行の放散速度は 0.17 µg m⁻² h⁻¹ で あったが、温度を 60 に上昇させると、放散速度 は 11 µg m⁻² h⁻¹ となった。これより、温度上昇に 伴い、間接移行速度が上昇することが明らかとな った。

防炎カーテン中有機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 16 と表 15 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 µg m⁻² h⁻¹)よりカーテン No. 8 (12 µg m⁻² h⁻¹)の方がより速い移行速度を示した。 防炎カーテン中有機リン系難燃剤のハウスダス トへの直接移行のモデル式を下記のとおり構築 した。

$$\frac{dC_d}{dt} = k_d (C_d^* - C_d) \tag{3}$$

ここで、kd は移行速度定数、Cd*は平衡状態にお けるハウスダスト中有機リン系難燃剤濃度、Cd は ハウスダスト中有機リン系難燃剤濃度を示す。表 16 に実験から得られた速度論的パラメーターを まとめた。

防炎カーテン中有機リン系難燃剤のハウスダ ストへの直接移行における温度の影響について 調べた結果を図 17 および表 17 に示す。温度が 20 では、間接移行の放散速度は 0.17 µg m⁻² h⁻¹ で あったが、温度を 60 に上昇させると、放散速度 は 11 µg m⁻² h⁻¹ となった。これより、温度上昇に 伴い、間接移行速度が上昇することが明らかとな った。

表 18 に既往研究における、ハウスダスト中の 有機リン系難燃剤の測定結果をまとめた。これら の有機リン系難燃剤濃度は、本研究で構築したモ デル式でのパラメーターで十分説明できる範囲 であった

(a-3) ハウスダストに含まれる有機リン系難燃剤の曝露・リスク評価(R1年度)

本研究で測定対象とした 19 種の有機リン系難 燃剤のうち、18 種がハウスダストから検出された。 各サンプル中の有機リン系難燃剤の詳細データ を表 19 に示す。

Trimethyl Phosphate(TMP)(定量下限値=7.0 ng g-1)は、本研究で採取したすべてのハウスダスト において定量下限値以下であった。最も高濃度 (中央値)であった有機リン系難燃剤は、TBOEP であり、33,000 ng g-1 であった。続いて、塩素を 含有する有機リン系難燃剤である Tris(2chloroisopropyl) phosphate(TCPP), TCEP、Tris(1,3dichloro-2-propyl) phosphate(TDCPP)が高濃度で 検出され、その濃度(中央値)はそれぞれ2,100、 1,500、1,500 ng g⁻¹であった。芳香族を含む有機リ ン系難燃剤である TPhP も高濃度で検出され、 1,100 ng g⁻¹であった(図 18)。 初年度の研究成果として、市販の防炎カーテン (2014年購入)から、新規有機リン系難燃剤として検出した BzlDOPO、PMMMP および NDPhP のハウスダスト中の濃度を測定した結果、di-PMMMP および PMMMP が 65 ng g⁻¹(中央値)
(範囲:13-590 ng g⁻¹、検出率:66%)と59 ng g⁻¹
(範囲:17-400 ng g⁻¹、検出率:52%)であった。
BzlDOPO(範囲:15-25 ng g⁻¹、検出率:7%)および NDPhP(範囲:10 ng g⁻¹、検出率:3%)も、検出率が低かったものの、ハウスダストから検出された(図 18)。

2017 年に採集した夏季と冬季のハウスダスト 中の有機リン系難燃剤の濃度比を表 20 と図 19 に示す。全体的に、PFRs の冬 / 夏濃度比は 0.1 -6 であり、ダスト中の PFRs 濃度は季節による変 動が小さいことが示唆された。しかし、1 ヶ所の 住宅(D14)において、夏季のサンプルから測定し たTCEPとTDCPPの濃度はそれぞれ1,500と5,100 (ng g⁻¹)であり、冬季のサンプルから測定したこ れらの濃度はそれぞれ 48,000 と 620,000 (ng g⁻¹) であり、約 30 倍と 120 倍高くなった。D14 の住 宅において 2017 年の夏季と冬季のサンプリング の間、TCEP と TDCPP を含有する室内製品を新た に購入した可能性が考えられる。

ハウスダスト中の各有機リン系難燃剤濃度 (TBOEP、TCPP、TCEP、TDCPP、TPhP、TCsP、 EHDPhP、TEHP)を用いて、ハウスダストの経口・ 経皮曝露に伴うリスク(MOE)を推算し、結果を 図 20に示す。MOE が最も低かった(最もリスク が懸念される可能性のある)物質は TBOEP であ り、その値は 6500(成人)と940(児童)であっ た。基準となる数値である 100,000(成人)および 10,000(児童)と比較し、低い値であるため、ハウ スダストを介した TBOEP の経口・経皮曝露に伴 うリスクは成人、児童ともに懸念されるレベルで あることが明らかとなった。一方、TBOEP 以外の 有機リン系難燃剤の経口・経皮曝露に伴うリスク は懸念されるレベルではなかった。

(a-4) 室内空気中のグリオキサールおよびグルタ ルアルデヒド測定法の開発(H29年度)

パッシブサンプラーの捕集速度を算出するた めに、チャンバー実験では、アクティブ法とパッ シブ法の同時捕集を行った(n=4)。アクティブ法 により測定した各物質の濃度、およびパッシブ法 により捕集した各物質の量を用い、式1)に従っ てパッシブサンプラーの捕集速度を算出した。VP は捕集速度(µg/(ppmv hr)) QP はパッシブサンプ ラーによる物質の捕集量(µg) CA はアクティブ 法による測定したチャンバー内各物質の濃度 (ppmv) t は捕集時間(hr)である。

 $VP=QP/(CA \times t)$ (4)

算出したグリオキサールおよびグルタルアル デヒドの捕集速度は、それぞれ9.64 μg/(ppmv hr)、 14.2 μg/(ppmv hr)であった。本分析法により室内空 気中のグリオキサールおよびグルタルアルデヒ ドの定量下限値は、それぞれ 0.0015 ppbv (0.0035 μg/m³)、0.0016 ppbv (0.0064 μg/m³)であった。

(a-5) 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(H30年度,R1年度)

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。

$$C = \frac{Q_P - Q_B}{V_P t} \times 1000 \tag{5}$$

ここでCはアルデヒド類濃度(ppbv) QPはパッ シブサンプラーによるアルデヒド類の捕集量 (µg) QB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) VPはアルデヒド類の捕集 速度(µg ppmv-1 hr-1) 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気中濃度は、0.0881ppbv (0.355µgm-³、住宅1) 0.0835ppbv(0.337µgm⁻³、住宅2) 0.0503ppbv(0.203µgm⁻³、住宅3)お よび 0.0325ppbv(0.132µgm⁻³、住宅4)であった。 測定結果は図 21-1~21-4 および表 21 に示す。

ー方、グリオキサールの室内空気中濃度は、い ずれの住宅においても検出下限値(<0.0015ppbv: <0.0035 μg m⁻³)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 空気中濃度は、85.8-187ppbv(104-227 μg m⁻³) 4.48-90.4ppbv(7.94-160 μg m⁻³)および 3.54-97.2ppbv(8.30-228 μg m⁻³)であった。

パッシブサンプラーの捕集速度は次式により 算出した。

 $V_P = Q_P / (C_A \times t) \tag{1}$

ここで、 V_P は捕集速度($\mu g ppm_v^{-1} hr^{-1}$) Q_P はパ ッシブサンプラーの捕集量(μg) C_A はアクティ ブ法により測定した濃度(ppmv) tは捕集時間(hr) である。

算出したグリオキサールおよびグルタルアル デヒドの捕集速度は、それぞれ 9.64 および 14.2 μg ppm_v⁻¹ hr⁻¹ であった。本分析法による室内空気中 のグリオキサールおよびグルタルアルデヒドの 定量下限値は、それぞれ 0.0015 ppb_v (0.0035 μg m⁻³) および 0.0016 ppb_v (0.0064 μg m⁻³)であった。

(a-5) 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(H30年度)

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。

$$C = \frac{Q_P - Q_B}{V_D t} \times 1000 \tag{2}$$

ここで *C* はアルデヒド類濃度 (ppb_v) 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_v⁻¹ hr⁻¹) *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気中濃度は、0.0881ppbv (0.355 µg m⁻³、住宅1)、0.0835ppbv(0.337 µg m⁻³ 、住宅2)、0.0503ppbv(0.203 µg m⁻³、住宅3)お よび0.0325ppbv(0.132 µg m⁻³、住宅4)であった。

ー方、グリオキサールの室内空気中濃度は、い ずれの住宅においても検出下限値(<0.0015ppb_v; <0.0035 μg m⁻³)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 空気中濃度は、85.8–187ppb_v(104–227 μg m⁻³) 4.48–90.4ppb_v(7.94–106 μg m⁻³)および 3.54– 97.2ppb_v(8.30–228 μg m⁻³)であった。

サブテーマ(b)

(b-1) ラットを用いた PMMMP の反復投与毒性の 検討

投与期間中、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。 投与期間中の体重において、PMMMP 投与群に有 意な変化は認められなかった(図 22)。

投与終了後の最終体重において、PMMMP 投与 群と対照群の間に有意な差は認められなかった。 また、PMMMP 投与群における器官重量に関して、 雌雄何れにおいても有意な変化は認められなか った(表22、23)。

(b-2) マウスを用いた PMMMP の反復投与毒性の 検討

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(図23)。

投与終了後の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有意な変 化は認められなかった(表 24)。

血清生化学的検査の結果、300 mg/kg/day 以上の 投与群において、無機リンの有意な高値が認めら 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 ースも対照群に比して有意な高値を示した(表 25)。

病理組織学的検査の結果、対照群のハーダー腺 においてごく軽度の炎症細胞浸潤が1 例、1000 mg/kg/day 投与群の腎臓において嚢胞が1 例認め られたが、それぞれの発生率に有意な変化は認め られなかった。

(b-3) マウスを用いた PMMMP の骨髄小核誘発性の検討

骨髄小核試験の結果、陽性対照である EMS を 投与した群の小核出現頻度は、対照群に比較して 有意に上昇した。一方、PMMMP 投与群における 小核出現頻度は、何れの用量においても統計学的 に有意な差は認められなかった。また、何れの群 においても全赤血球に占める幼若赤血球の割合 の低下は認められなかった(図 24)。

血液学的検査の結果、1000 mg/kg/day 投与群にお いて、血小板数の有意な高値が認められた。(表 26)。

サブテーマ(c)

(c-1)室内化学物質のライブラリの情報更新と スクリーニング評価結果の確認

「室内環境中の化学物質リスト」の情報の拡充 のため、「17120の化学商品(化学工業日報)」な どの情報源を確認し、追加すべき物質がないかを 確認するとともに、毒性情報および物性情報の追加・更新を行った。新たな追加物質は確認されていないが、特に詳細用途情報を追加・更新することができた。

また、図 2 に示した 7 つの曝露経路における、 スクリーニング評価結果として、図 25 に高懸念 物質(有害性ランク,曝露性ランク)=(A,A) を、表 27 および表 28 には(有害性ランク,曝露 性ランク)=(A,B)および(B,A)(曝露経路 「製品 室内空気 吸入曝露」の例)を示した。

各曝露経路の詳細な結果は付録にまとめている。

ここで、特に(A,A)物質の中で、経路 にお いて、エチレンジアミンは接着剤成分という用途 から、(A,A)ランクとして選定していたが、詳 細用途の確認の結果、詳細な含有率情報は得られ なかったものの、常温硬化型防食塗料原料、エポ キシ樹脂硬化剤、接着剤樹脂の架橋剤など、塗料 中での主要成分ではなく原料であったり、エポキ シ樹脂の硬化剤では 10%程度の割合で用いられ るが、多くは反応して残存量はかなり少なくなる と考えられる。ここでは、使用後の製品中の含有 率を 0.1~1%程度と推定し、含有率ランクポイン トをdと変更したことで、曝露性ランクはAから Bに変更された。

最終的に、いずれかの曝露経路で(A,A)ラン クに分類された物質が図 25 に示されているが、 一定の毒性を有し、室内で各曝露経路において、 他の物質と比べて相対的に曝露されやすい物質 であり、どの程度のリスクとなるかの調査が求め られる。静岡県立大学では、グリオキサールなど 実態調査がなされている。

また、(A,A) ランクの物質に準じた物質とし て、(A,B)および(B,A)ランクとして、スクリーニン グされた物質で、曝露経路 (室内空気からの吸 入曝露)に関しては、製品中で多くの割合を構成 する溶剤成分や農薬原体成分であり、ある程度の 量が室内に存在するもしくは高い揮発性を有す る物質が多くなっている。室内濃度指針値が設定 されている物質と同程度のリスクが懸念される 化学物質は多数スクリーニングされ、詳細な調査 が必要と考えられる。

(c-2) スクリーニング評価ツール拡充・改良

「室内環境中の化学物質ライブラリ」を活用して、事業者らが自身の取り扱う製品中等の任意の 化学物質について、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 きるツールを開発した。昨年度検討、作成した吸 入経由以外の多様な曝露経路を考慮して評価で きるよう、プロトタイプのツールを拡充・改良す るとともに、ツール公開のための準備を行った。

Microsoft 社の Eccel のワークシート上で、図 26 の様に「化学物質情報入力シート」において、取 り扱う物質の有害性および曝露性に関する情報 を入力(数値入力の箇所と選択入力の箇所がある) する。それにより、各有害性ランクや各曝露性ラ ンクのポイントが自動計算されて表示される。ま た、有害性に関しては、大気や水質のガイドライ ン値や作業環境基準などが設定されていない物 質のために、「環境管理参考濃度算出シート」も作 成している。これらの入力値から、図27のように 「評価結果出力シート」において、7つの曝露経 路ごとに、有害性ランクや曝露性ランクが決定さ れて表示される。また、これまでランク分けした 物質と比較して、評価対象の物質の曝露がどの程 度懸念されるのか、これまでに評価した化学物質 群の中で、相対的に上位からどの程度の位置にあ るのか表示するようにした。 例えば、 図 27 に示し たのホルムアルデヒドは、(A,A)ランクであり、 上位2%以上に位置することが分かる。ホルムア ルデヒドの場合は、曝露経路 は「製品 室内空 気 吸入曝露」(A,A)上位 2%以上であるが、曝 露経路「製品 室内空気 経皮曝露」では(A, B)上位 6-9%、経路 「水分含有飲食物 経口」 では(A,B)上位 8-20%、経路 「水分含有飲食 物 経口」では(A,C)上位 30-45%、経路 「ダ ストの吸入曝露」では(A,E)上位 28-49%、経路

「ダストの Hand-to-mouth」では(A,E)上位 24-46%、経路 「製品直接接触の経皮曝露」(A, B)上位 0.3-9%という位置付けであることが分か る。また、現在指針値が設定されている物質との 関係も把握できるため、事業者らは当該物質の詳 細リスク評価の必要性を判断する際の有用な情 報となる。

本ツールは、大学ホームページからの公開を予 定している。

サブテーマ(d)

(d-1)室内ハウスダスト調査

調査結果は、サブテーマ(a-3)を参照する。

(d-2) QEESI 問診票によるシックハウスの自己

診断調査

QEESI 問診票の回答があった家庭中、室内ハウ スダストの有機リン系難燃剤測定が終了した14件 について、QEESI のスコア値と化学物質濃度の関 係について検討を行った。

QEESI 問診票では、Q1、Q3、Q5 のスコアで、 Q1:38 、Q3:22 、Q5:10 のカットオフ値よ リいずれか 2 つ以上に該当する人を化学物質過敏 症患者の可能性の判断に利用されることから、今 回 Q1、Q3、Q5 のスコア合計値を算出した結果、 14 名のスコア合計値は 0 から 78 でカットオフ値 を 2 つ以上に該当したのは 1 名 (スコア合計値 78 が該当)のみであった。

次に調査した有機リン系難燃剤19種類中、ハウ スダストには17種類が検出された(詳細は、サブ テーマ(a)曝露評価・リスク評価の欄参照)。

フロアーワックス剤用可塑剤として使用されて いるTBOEPやポリウレタンフォーム用難燃剤とし て使用されている TCPP、TCEP など高濃度に検出 された5種類(他に TDCPP、TPhP)の有機リン系 難燃剤の濃度と QEESI スコア(合計値)の関係に ついて図28 に示す。

今回の調査では、QEESI スコア値と化学物質 濃度値との間に明確な関連性は見られなかった。 このことは、検出された全 17 物質の合計値と QEESI のスコア値との関連性についても同様で あった。

D.考察

サブテーマ (a及びd)

(a-1) 化学構造が未知である難燃剤も含めた防 炎カーテン中の臭素系および有機リン系難燃剤 の分析

完全溶解法と精密質量数を用いた定性分析法 を組み合わせることにより、化学構造が未知の難 燃剤を同定することができた。新しい有機リン系 難燃剤である BzIDOPO、PMMMP、NDPhPを市販 の防炎カーテンから初めて検出した。これにより、 後加工のカーテン 24 種のうち、19 種類に使用さ れている難燃剤を定量的に確認することができ た。この手法により、室内に存在する多種多様な 化学物質の定性の可能性が広がったことは大き な成果と考えられる。

(a-2) 防炎カーテン中有機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 μg m⁻²h⁻¹)と比較し、カーテン No.8(0.17 μg m⁻²h⁻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 μg m⁻²h⁻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 μ g m⁻² h⁻¹)よりカーテン No.8 (12 μ g m⁻² h⁻¹)の方がよ り速い移行速度を示したが、これは防炎カーテン 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 μ g m⁻² h⁻¹)の移 行速度はカーテン No.8 からの TDCPP (12 μ g m⁻² h⁻¹)の移行速度と同程度であった。有機リン系難 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-3) ハウスダストに含まれる有機リン系難燃剤 の曝露・リスク評価

本研究で得られたリスク評価の結果(MOE)か ら、本研究で測定対象とした 19 種の有機リン系 難燃剤のうち毒性値が入手できた8種の有機リン 系難燃剤については、ハウスダストを介した経 ロ・経皮曝露量は、TBOEPを除いて、リスクが懸 念されるレベルではなかった。

(a-4) 室内空気中のグリオキサールおよびグルタ ルアルデヒド測定法の開発

パッシブサンプリング法を用いた室内空気中 のグリオキサールおよびグルタルアルデヒドの 分析法を開発した。本法は、室内空気中における 1 pptv 程度のグリオキサールおよびグルタルア ルデヒドが検出可能となる、高感度分析法を確立 することができた。

(a-5) 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

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 ppbv)(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(80ppbv) を超過していた。

サブテーマ(b)

(b-1) ラットを用いたPMMMPの反復投与毒性の 検討

ラットを用いたPMMMPの反復投与毒性試験を 実施するための用量設定試験を実施した結果、1週 間の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。さらに、投与終了 時の器官重量においてもPMMMP投与による顕著 な影響はみられなかった。このことから、今回の 実験条件の投与量はラットを用いた反復投与毒性 試験に供することができると考えられた。

しかしながら、本研究ではヒトで推定されるば く露量を基に用量設定を行ったため、より高用量 における生体影響に関しては不明である。従って、 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 実施する必要があると考えた。

(b-2) マウスを用いたPMMMPの反復投与毒性の 検討

マウスを用いたPMMMP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。 投与終了時の器官重量測定の結果、300 mg/kg/day 以上のPMMMP投与群において絶対及び相対副腎 重量の有意な高値が認められたものの、これらは 病理組織学的変化を伴うものではなく、程度も軽 度であったことから毒性学的意義の乏しい変化で あると考えた。

血清生化学的検査の結果、300 mg/kg/day以上の 投与群において無機リンの有意な高値が認められ た。しかしながら、この変化はカルシウムの変動 を伴う変化でなく、腎臓、骨、上皮小体などリン 代謝に関連する臓器において病理組織学的変化が 認められなかったことから、毒性学的に意義の乏 しい変化であると考えた。その他、100 mg/kg/day 投与群におけるグルコース及び300 mg/kg/day投与 群におけるアルブミン / グロブリン比の高値が認 められたが、それぞれ明確な用量相関性は認めら れなかったことから偶発的な変化であると考えら れた。

病理組織学的検査の結果、対照群のハーダー腺

におけるごく軽度の炎症細胞浸潤及び1000 mg/kg/day 投与群の腎臓における嚢胞が1ずつ例 認められたが、発生率に統計学的有意差はなく、 散発的な発生であったことから、被験物質投与に 起因する変化でないと考えた。

以上の結果から、雄性CD1マウスに1000 mg/kg/dayのPMMMPを4週間反復投与しても毒性 影響は観察されなかった。従って、本試験におけ るPMMMPのNOAELは雄で1000 mg/kg/day以上と 判断した。

(b-3) マウスを用いたPMMMPの骨髄小核誘発性 の検討

昨年度までに検討したPMMMPの一般毒性の検 討に加えて、本年度はより詳細な生体影響を検討 する目的で同一実験条件下における血液学的検査 及び骨髄小核試験を追加検討した。

骨髄小核試験を実施した結果、陽性対照である EMS投与群では小核出現頻度の上昇が認められた ものの、PMMMP投与群では何れの用量において も有意な変化は認められなかったことから、 PMMMPは小核誘発性を示さないこと可能性が示 された。

血液学的検査の結果、1000 mg/kg/day投与群にお いて、血小板数の有意な高値が認められた。しか しながら、同一実験条件における病理組織学的検 査では、骨髄などの造血器官において毒性変化は 認められておらず、出血等の変化も認められてい ないことから、この変化の毒性学的意義は低いも のと考えた。

サブテーマ(c)

「室内環境中の化学物質リスト」の情報を更 新するとともに、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に ついて、多様な曝露経路を考慮して評価できる よう拡充、改良とツール公開のための準備や確 認を行った。室内濃度指針値が設定されている 物質と同程度の化学物質は多数スクリーニング されており、詳細な調査が必要と考え得られ る。作成したスクリーニングツールを用いて、 事業者らが予防原則の観点から、既存の指針値 設定物質と同程度に高リスクが懸念される物質 については、その使用方法や曝露防止への配慮 がなされることが期待される。 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ったりなど、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。な お、環境科学会のシンポジウムは、平成26年から6 年間連続で本研究成果を中心に開催した。

F.研究発表

1. 論文発表

- 1) Masahiro Tokumura, Shiori Nitta, Tomomi Hayashi, Rina Yamaguchi, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Probabilistic Exposure Assessment of Aggregate Rates of Dermal Exposure of Japanese Women and Children to Parabens in Personal Care Products, *Chemosphere*, 239, 124704, 2020. (IF=5.108)
- Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Simultaneous determination of polycyclic aromatic hydrocarbons and their chlorinated derivatives in grilled foods, *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 178, 188-194, 2019. (IF=4.527)
- Masahiro Tokumura, Makiko Seo, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Dermal Exposure to Plasticizers in Nail Polishes: An Alternative Major Exposure Pathway of Phosphorus-Based Compounds, *Chemosphere*, 226, 316-320, 2019. (IF=5.108)
- 4) Masahiro Tokumura, Sayaka Ogo, Kazunari Kume, 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, *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 169, 464-469, 2019. (IF=4.527)
- 5) 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)

- 6) Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Qi Wan g, Hayato Nakayama, Takashi Amagai, Sayaka Ogo, Kazunari Kume, Takeshi Kobayashi, Sh inji 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, *Jour nal of Environmental Science and Health, Par* t A, 53, 475-481, 2018. (IF=1.425)
- Qi Wang, Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Takashi Amagai, Yuichi Horii, Kiyoshi Nojir i, Nobutoshi Ohtsuka, Effects of characteristics of waste incinerator on emission rate of halo genated polycyclic aromatic hydrocarbon into environments, *Science of the Total Environme nt*, 625, 633-639, 2018. (IF=5.102)
 - 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).
 - 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, Organohalogen Compounds, 549-552, 80 (2018).
- Cho, Y.M., Mizuta, Y., Akagi, J-I., Toyoda, T., Sone, M., Ogawa, K. Size-dependent acute toxicity of silver nanoparticles in mice. *J Toxicol Pathol.* 31(1): 73-80. 2018.
- Akagi, JI., Yokoi, M., Cho, YM., Toyoda, T., Ohmori, H., Hanaoka, F., Ogawa, K. Hypersensitivity of mouse embryonic fibroblast cells defective for DNA polymerases η, ι and κ to various genotoxic compounds: Its potential for application in chemical genotoxic screening. *DNA Repair* (Amst). 61:76-85, 2018.

- 12) Toyoda, T., Totsuka, Y., Matsushita, K., Morikawa, T., Miyoshi, N., Wakabayashi, K., Ogawa, K. γ-H2AX formation in the urinary bladder of rats treated with two norharman derivatives obtained from o-toluidine and aniline. *J Appl Toxicol.* 38(4):537-543, 2018.
- 13) Nomura, Y., Lee, M., Fukui, C., Watanabe, K., Olsen, D., Turley, A., Morishita, Y., Kawakami, T., Yuba, T., Fujimaki, H., Inoue, K., Yoshida, M., Ogawa, K., Haishima, Y. Proof of concept testing of a positive reference material for in vivo and in vitro skin irritation testing. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater*. 106(8):2807-2814, 2018.
- 14) Morishita, Y., Nomura, Y., Fukui, C., Fujisawa, A., Watanabe, K., Fujimaki, H., Kumada, H., Inoue, K., Morikawa, T., Takahashi, M., Kawakami, T., Sakoda, H., Mukai, T., Yuba, T., Inamura, K-I., Tanoue, A., Miyazaki, K-I., Chung, U-I., Ogawa, K., Yoshida, M., and Haishima, Y. Alternative plasticizer, 4-cyclohexene-1,2-dicarboxylic acid dinonyl ester, for blood containers with protective effects on red blood cells and improved cold resistance. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater.*, 106(3):1052-1063, 2018.
- 15) 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 Method. Science of the Extraction total Environment, 601-602, 1333-1339 (2017).IF=5.102
- 16) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Zhiwei Wang, Takashi Amagai: Comparison of Volatile Organic Compound Recovery Rates of Commercial Active Samplers for Evaluatio n of Indoor Air Quality in Work Environment s. Air Quality, Atmosphere & Health, 10(6), 7 37-746 (2017). DOI: 10.1007/s11869-017-0465-0. IF=3.102
 - 17) Takasu, S., Ishii, Y., Yokoo, Y., Tsuchiya, T., Kijima, A., Kodama, Y., Ogawa, K., Ume mura, T. In vivo reporter gene mutation and micronucleus assays in gpt delta mice treated

with a flame retardant decabromodiphenyl eth er. *Mutat Res Genet Toxicol Environ Mutagen*. 816-817:7-11, 2017.

- 18) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Takashi Amagai, Yuichi Horii, Kurunthachala m Kannan: Mechanism of Formation of Chlor inated Pyrene during Combustion of Polyvinyl Chloride. *Environmental Science & Technolo* gy, 51, 14100–14106, (2017). IF=6.198
- 19) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Takashi Amagai, Yuichi Horii, Rate of Hexa bromocyclododecane Decomposition and Produ ction of Brominated Polycyclic Aromatic Hydr ocarbons During Combustion in a Pilot-scale I ncinerator, *Journal of Environmental Sciences*, 61, 91-96, (2017). IF=3.243
- 20) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Yuta Iw azaki, Qi Wang, Takashi Amagai, Yuichi Hori i; Hideyuki Otsuka, Noboru Tanikawa, Takesh i Kobayashi, Masahiro Oguchi: Determination of Hexavalent Chromium Concentration in Ind ustrial Waste Incinerator Stack Gas by using a Modified Ion Chromatography with Post-col umn Derivatization Method. *Journal of Chrom atography A*, 1502, 24-29 (2017). IF=4.150
- 21) Makoto Sekine, Masahiro Tokumura, Moham mad Raknuzzaman, Md. Habibullah Al Mamu n, Md. Kawser Ahmed, Muhammad Rafiqul I slam, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Shigek i Masunaga: Effect of Cooking on Arsenic Re duction in Two Rainfed Rice Varieties of Ba ngladesh and Their Health Risk Assessment. *Chemical Science International Journal*, 21(1), 1-7, (2017).
- 22) Suzuki, I., Cho, Y-M., Hirata, T., Toyoda, T., Akagi, J., Nakamura, Y., Sasaki, A., Nakamura, T., Okamoto, S., Shirota, K., Suetome, N., Nishikawa, A., Ogawa, K. Toxic effects of 4-methylthio-3-butenyl isothiocyanate (Raphasatin) in the rat urinary bladder without genotoxicity. *J Appl Toxicol* 37(4): 485-494. 2017.
- 23) Matsushita, K., Toyoda, T., Inoue, K., Morikawa, T., Sone, M., Ogawa, K. Spontaneous infarcted adenoma of the mammary gland in a Wistar Hannover GALAS rat. *J Toxicol Pathol.* 30(1): 57-62. 2017.

- 24) Hirata, T., Cho, Y-M., Toyoda, T., Akagi, J., Suzuki, I., Nishikawa, A. and Ogawa, K. Lack of in vivo mutagenicity of 1,2-dichloropropane and dichloromethane in the livers of gpt delta rats administered singly or in combination. *J. Appl. Toxicol.* 37(6): 683-691. 2017.
- 25) Toyoda, T., Cho, Y-M., Akagi, J., Mizuta, Y., Matsushita, K., Nishikawa, A., Imaida, K. and Ogawa, K. Altered susceptibility of an obese rat model to 13-week subchronic toxicity induced by 3-monochloropropane-1,2-diol. *J Toxicol. Sci.* 42: 1-11, 2017.
- 26) Cho, Y-M., Hasumura, M., Imai, T., Takami S., Nishikawa A. and Ogawa, K. Horseradish extract promotes urinary bladder carcinogenesi s when administered to F344 rats in drinking water. *J Appl Toxicol.* 37(7): 853-862. 2017.
- 27) Nonaka, M., Amakasu, K., Saegusa, Y., Naot a, M., Nishimura, T., Ogawa, K. and Nishika wa, A., Non-neoplastic lesions found only in the two-year bioassays but not in shorter toxi city studies of rats. *Regul Toxicol Pharmacol.*, 86 : 199–204, 2017.
- 28) Hirata, T., Cho, YM., Suzuki, I., Toyoda, T., Akagi, JI., Nakamura, Y., Numazawa, S., Oga wa, K. 4-Methylthio-3-butenyl isothiocyanate mediates nuclear factor (erythroid-derived 2)-li ke 2 activation by regulating reactive oxygen species production in human esophageal epithe lial cells. *Food Chem Toxicol.* 111: 295-301, 2017.
- 29) Ishii, Y., Kuroda, K., Matsushita, K., Yokoo, Y., Takasu, S., Kijima, A., Nohmi, T., Ogaw a, K., Umemura, T. Phosphorylation of protei n phosphatase 2A facilitated an early stage of chemical carcinogenesis. *Toxicol Appl Pharm* acol. 336:75-83. 2017.

2. 学会発表

 Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Kazu e Mizuta, Mitsuyasu Yabe, Masakazu Makino, Treatments of coloured effluent from methan e fermentation plants by photo-Fenton process, THE 24th Shizuoka Forum on Health and L ongevity, Shizuoka, Japan. (November, 2019)

- 2) Jumpei Miyazaki, Masahiro Tokumura, Muha mmad Rafiqul Islam, Qi Wang, Yuichi Miyak e, Masahiro Sakata, Shigeki Masunaga, Takas hi Amagai, Masakazu Makino, Probablic risk assessment and reduction measures of rice con sumption in Bangladesh, THE 24th Shizuoka Forum on Health and Longevity, Shizuoka, Ja pan. (November, 2019)
- 3) Kento Sei, Misato Masuda, Qi Wang, Masahir o Tokumura, Yuichi Miyake, Tsuyoshi Takagi, Sinji Suzuki, Kazutoshi Okamoto, Takashi A magai, A reduction method of PAH concentra tion in dried bonito, THE 24th Shizuoka Foru m on Health and Longevity, Shizuoka, Japan. (November, 2019)
- 4) Mai Shindo, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu M akino, Estimation of potential dermal exposure rate of organophosphorus flame retardants via direct contact with product, THE 24th Shizu oka Forum on Health and Longevity, Shizuok a, Japan. (November, 2019)
- 5) Masahiro Tokumura, Asato Sugawara, Shigeki Masunaga, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Comparison of T hree Different Kinds of Advanced Oxidation Processes in Removal of Pharmaceuticals with Co-existing Substances, the IWA-ASPIRE Co nference 2019, Hong Kong. (November, 2019)
- 6) Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Kazu e Mizuta, Mitsuyasu Yabe, Masakazu Makino, Treatments of Colored Effluents from Metha ne Fermentation Plants by Photo-Fenton Proce ss, the IWA-ASPIRE Conference 2019, Hong Kong. (November, 2019)
- 7) Masahiro Oguchi, Hideyuki Otsuka, Yuichi H orii, Yuichi Miyake, Noboru Tanikawa, Masah iro Tokumura, Shinya Urano, Yoichi, Watanab e, Environmental emission of chemicals associ ated with industrial waste treatment in Japan, SETAC North America 40th Annual Meeting, Toronto, Canada. (November, 2019)
- Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumur a, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Yuichi H orii, Accumulation Profiles of Chlorinated Pol

ycyclic Aromatic Hydrocarbons in Tokyo Bay in Japan, 39th International Symposium on Ha logenated Persistent Organic Pollutants (DIOXI N 2019), Kyoto, Japan. (August, 2019).

- TomohikoTada, Asuka Amano, Kento Sei, Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, T akashi Amagai, Masakazu Makino, Synthesis and hAhRα Activity Assay of Metabolites of Chlorinated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, 39th International Symposium on Halogenate d Persistent Organic Pollutants (DIOXIN 201 9), Kyoto, Japan. (August, 2019).
- 10) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Kotone Terao, Haruki Miwa, Qi Wang, Takashi Ama gai, Simultaneous and Exposure Assessment o f Alternative Retardants in Car Seats, 39th Int ernational Symposium on Halogenated Persiste nt Organic Pollutants (DIOXIN 2019), Kyoto, Japan. (August, 2019).
- Masahiro Tokumura, Makiko Seo, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu M akino, Dermal Exposure to Phosphorus Compo unds in Nail Polishes, 39th International Sym posium on Halogenated Persistent Organic Pol lutants (DIOXIN 2019), Kyoto, Japan. (Augus t, 2019).
- 12) Kento Sei, Qi Wang, Misato Masuda, Masahir o Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Development of a Comprehensive Analytical Method for Regulated Polucyclic Aromtic Hyd rocarbons, 39th International Symposium on H alogenated Persistent Organic Pollutants (DIO XIN 2019), Kyoto, Japan. (August, 2019).
- 13) Mai Shindo, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu M akino, Evaluation of Dermal Exposure Rate of Organophosphorus Flame Retardants via Dire ct Contact with Products, 39th International S ymposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (DIOXIN 2019), Kyoto, Japan. (Au gust, 2019).
- 14) Qi Wang, Minori Furukawa, Masahiro Tokum ura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masaka zu Makino, Novel Brominated and Organopho sphate Flame Retardants Detected in House D ust, 39th International Symposium on Halogen

ated Persistent Organic Pollutants (DIOXIN 20 19), Kyoto, Japan. (August, 2019).

- 15) Mana Oishi, Mai Shindo, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Improvement of Devise to Estimate Dermal Exposure Rate of Phosphorus Flame Retardants in Indoor Products, 39th In ternational Symposium on Halogenated Persist ent Organic Pollutants (DIOXIN 2019), Kyoto, Japan. (August, 2019).
- 16) Madoka Wanikawa, Kosuke Muramatsu, Masa hiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Ta kashi Amagai, Masakazu Makino, Developmen t of Analytical Method for Degradation of PP CPs by Photo-Fenton Reaction, 39th Internatio nal Symposium on Halogenated Persistent Org anic Pollutants (DIOXIN 2019), Kyoto, Japan. (August, 2019).
- 17) Masahiro Tokumura, Kotone Terao, Haruki M iwa, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amag ai, Masakazu Makino, Simultaneous Determina tion of Alternative Flame Retardants in Car S eats and Implications for Dermal Exposure, th e International Society of Exposure Science (I SES) and the International Society of Indoor Air Quality and Climate (ISIAQ) 2019, Kauna s, Lithuania. (August, 2019)
- 18) Yuichi Miyake, Minori Furukawa, Qi Wang, Masahiro Tokumura, Takashi Amagai, Yukari Takahashi, Simultaneous determination and ex posure assessment of novel alternative flame r etardants in indoor dust, the International Soci ety of Exposure Science (ISES) and the Inter national Society of Indoor Air Quality and Cl imate (ISIAQ) 2019, Kaunas, Lithuania. (Aug ust, 2019)
- 19) Junna Ohishi, Haruna Nishio, Qi Wang, Masa hiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Ama gai, Yasuhiro Fukushima, Yoshihiro Suzuki, T akanori Enomoto, Evaluation of Porous Tube-t ype Passive Samplers for Volatile Organic Co mpounds according to the ISO 16107, the Int ernational Society of Exposure Science (ISES) and the International Society of Indoor Air Quality and Climate (ISIAQ) 2019, Kaunas, L ithuania. (August, 2019)

- 20) Miasato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumu ra, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Risk Ass essment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and their Chlorinated Derivatives Unintentional ly Produced During Cooking via Exhaust Gas, the International Society of Exposure Science (ISES) and the International Society of Indoo r Air Quality and Climate (ISIAQ) 2019, Kau nas, Lithuania. (August, 2019)
- 21) Mai Shindo, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masakazu M akino, Development of Simple Devise to Esti mate Potential Dermal Exposure to Organopho sphorus Flame Retardants via Direct Contact with Products, the International Society of Ex posure Science (ISES) and the International S ociety of Indoor Air Quality and Climate (ISI AQ) 2019, Kaunas, Lithuania. (August, 2019)
- 22) Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Ryutaro Ishibashi, Takanori Ambo, Ma sakazu Minagawa, Yuichi Miyake, Takashi A magai, Masakazu Makino, Effects of Light Irr adiation on Inhibition of Fenton Type Wastew ater Treatment Processes by Co-Existing Subst ances, The Water and Environment Technolog y Conference 2019 (WET 2019), Osaka, Japa n. (July, 2019).
- 23) Miasato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumu ra, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Accumul ation Profiles of Chlorinated Polycyclic Aroma tic Hydrocarbons in Tokyo Bay, Japan, The Water and Environment Technology Conferenc e 2019 (WET 2019), Osaka, Japan. (July, 201 9).
- 24) Madoka Wanikawa, Kosuke Muramatsu, Masa hiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miyake, Ta kashi Amagai, Masakazu Makino, Degradation of Pharmaceuticals and Personal Care Products by PhotoFenton Reaction, The Water and En vironment Technology Conference 2019 (WET 2019), Osaka, Japan. (July, 2019).
- 25) Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumur a, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Generatio n of polycyclic aromatic hydrocarbons and the ir derivatives during cooking, The 4th Internat ional Conference on Pharma and Food (ICPF2)

018), Shizuoka, Japan. (November, 2018)

- 26) Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Saya ka Ogo, Kazunari Kume, Qi Wang, Yuichi M iyake, Takasi Amagai, Masakazu Makino, Nov el effective method to evaluate risks of phosp horus flame retardant, The 4th International C onference on Pharma and Food (ICPF2018), S hizuoka, Japan. (November, 2018)
- 27) Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumur a, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Risk asse ssment of polycyclic aromatic hydrocarbons an d their chlorinated derivativesproduced by coo king, THE 23rd Shizuoka Forum on Health a nd Longevity, Shizuoka, Japan. (November, 20 18)
- 28) Kosuke Muramatsu, Masahiro Tokumura, Saya ka Ogo, Kazunari Kume, Qi Wang, Yuichi M iyake, Takasi Amagai, Masakazu Makino, Dev elopment of screening method to evaluate resk s of flame retardants in indoor envrionments, THE 23rd Shizuoka Forum on Health and Lo ngevity, Shizuoka, Japan. (November, 2018)
- 29) Kento Sei, Qi Wang, Misato Masuda, Masahir o Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, An Analytical Method for Chlorinated Polycy clic Aromatic Hydrocarbons in Particles by T hermal Desorption-GC/MS, the 38th Internatio nal Symposium on Halogenated Persistent Org anic Pollutants (POPs) & 10th International P CB Workshop (Dioxin 2018), Kraków, Poland. (August 2018)
- 30) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Takashi Amagai, Sayaka Ogo, Kazunari Kum e, Takeshi Kobayashi, Shinji Takasu, Kumiko Ogawa, Kurunthachalam Kannan, Identification of Novel Phosphorus Flame Retardants in Cu rtains Using Orbitrap Mass Spectrometry, the 38th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs) & 10th I nternational PCB Workshop (Dioxin 2018), Kr aków, Poland. (August 2018)
- 31) Masahiro Tokumura, Kosuke Muramatsu, Qi Wang, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Masa kazu Makino, Comparison of Rates of Direct and Indirect Migration of Phosphorus Flame Retardants from Flame-Retardant-Treated Polye

ster Curtains to Indoor Dust, the 38th Internat ional Symposium on Halogenated Persistent O rganic Pollutants (POPs) & 10th International PCB Workshop (Dioxin 2018), Kraków, Polan d. (August 2018)

- 32) Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumur a, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Unintentio nal Generation of Chlorinated Polycyclic Aro matic Hydrocarbons during Cooking, the 38th International Symposium on Halogenated Persi stent Organic Pollutants (POPs) & 10th Intern ational PCB Workshop (Dioxin 2018), Krakó w, Poland. (August 2018)
- 33) Mai Shindo, Kotone Terao, Kosuke Muramats u, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miy ake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Esti mating Potential Dermal Exposure to Organop hosphorus Flame Retardants via Direct Contac t with Products, the 38th International Sympos ium on Halogenated Persistent Organic Polluta nts (POPs) & 10th International PCB Worksh op (Dioxin 2018), Kraków, Poland. (August 2 018)
- 34) Haruna Nishio, Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Yasuhiro F ukushima, Yoshihiro Suzuki, Takanori Enomot o, Effects of Environmental Factors on Sampli ng Rates of VOCs with Porous Tube-Type Pa ssive Samplers, The Joint Annual Meeting of the International Society of Exposure Science and the International Society for Environmenta l Epidemiology (ISES-ISEE 2018), Ottawa, Ca nada. (August 2018)
- 35) Kosuke Muramatsu, Hiroshi Aiuchi, Yuta Gor o, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Takanori A mbo, Masakazu Minagawa, Ryutaro Ishibashi, Yuichi Miyake, Takashi Amagai,Masakazu Ma kino, Decolorization of Colored Effluent from Textile Manufacturing Industry in Bangladesh by Photo-Fenton Reaction Coupled with Catal yst, The 12th Asia Impact Assessment Confer ence (AIC 2018), Shizuoka, Japan. (August 2 018)
- 36) Qi Wang, Masahiro Tokumura, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Environmental impact of ha logenated polycyclic aromatic hydrocarbons e

mitted from E-waste recycling activities in Vi etnam, The 12th Asia Impact Assessment Con ference (AIC 2018), Shizuoka, Japan. (August 2018)

- 37) Mai Shindo, Kotone Terao, Kosuke Muramats u, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Yuichi Miy ake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Devi ce for Measuring Dermal Exposure Rate of Fl ame Retardants via Direct Contact with Produ cts, The 12th Asia Impact Assessment Confer ence (AIC 2018), Shizuoka, Japan. (August 2 018)
- 38) Jumpei Miyazaki, Kosuke Muramatsu, Masahir o Tokumura, Muhammad Rafiqul Islam, Qi Wang, Yuichi Miyake, Masahiro Sakata, Shige ki Masunaga, Takashi Amagai, Masakazu Mak ino, Arsenic and Heavy Metal Contaminations of Rice Grown in Bangladesh, The 12th Asia Impact Assessment Conference (AIC 2018), S hizuoka, Japan. (August 2018)
- 39) Masahiro Tokumura, Makoto Sekine, Moham mad Raknuzzaman, Md Habibullah Al Mamun, Md Kawser Ahmed, Muhammad Rafiqul Isla m, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Shigeki Masunaga, Masakazu Makino, Feasibility of Q uantitative Image Analysis Method to Improve Performances of Arsenic Field Test Kit for Screening of Tube Well Waters in Bangladesh, The 12th Asia Impact Assessment Conferenc e (AIC 2018), Shizuoka, Japan. (August 2018)
- 40) Masahiro Tokumura, Sayaka Ogo, Kazunari K ume, Kosuke Muramatsu, Qi Wang, Yuichi M iyake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Mi gration Mechanism of Phosphorus Flame Reta rdants from Flame-Retardant-Treated Polyester Curtains to Indoor Dust, the 15th Conference of the International Society of Indoor Air Qua lity & amp; Climate (ISIAQ) (Indoor Air 201 8), Philadelphia, PA, USA. (July 2018)
- 41) Yuichi Miyake, Masahiro Tokumura, Qi Wang, Takashi Amagai, Novel Phosphorus Flame R etardants Found from Flame-Retardant Curtain s Purchased from Japanese Market, the 15th Conference of the International Society of Ind oor Air Quality & amp; Climate (ISIAQ) (Indo or Air 2018), Philadelphia, PA, USA. (July 2

018)

- 42) Misato Masuda, Qi Wang, Masahiro Tokumur a, Yuichi Miyake, Takashi Amagai, Determina tion of Chlorinated Polycyclic Aromatic Hydro carbons in Sediments, The Water and Environ ment Technology Conference 2018 (WET 201 8), Ehime, Japan. (July, 2018). 【The WET E xcellent Presentation Award受賞】
- 43) Kosuke Muramatsu, Hiroshi Aiuchi, Yuta Gor o, Masahiro Tokumura, Takanori Ambo, Masa kazu Minagawa, Ryutaro Ishibashi, Yuichi Mi yake, Takashi Amagai, Masakazu Makino, Me chanism of Photo-Fenton Reaction Coupled wi th Catalyst Investigated by Kinetic Model, Th e Water and Environment Technology Confere nce 2018 (WET 2018), Ehime, Japan. (July, 2 018).
- 44) Miyake Y., Wang Q., Tokumura M., Amagai T.: An analytical method for unidentified flam e retardant in curtain, Healthy Buildings Euro pe 2017 (Lublin, Poland, July 2017).
- 45) Tokumura M., Miyake Y., Wang Q., Kai Y., Amagai T., Ogo S., Kume K., Kobayashi T., Takasu S., Ogawa K.: Risk assessment of nov el brominated and phosphorus flame retardants in indoor dust, Healthy Buildings Europe 20 17 (Lublin, Poland, July 2017).
- 46) Miyake Y., Nakayama H., Amagai T., Ogo S., Kume K., Kobayashi T., Takasu S., Ogawa K., Kannan K.: Determination of Novel Brom inated and Phosphorus Flame Retardants in Fl ame-Retarded Curtains, 37th International Sym posium on Halogenated Persistent Organic Pol lutants (Dioxin2017) (Vancouver, Canada, Aug ust 2017).
- 47) Tokumura M., Wang Q., Miyake Y., Amagai T.: Development of Qualitative Analytical Met hod for Unidentified Flame Retardants in Fla me-Retardant Curtains Purchased from Japanes e Market, 37th International Symposium on H alogenated Persistent Organic Pollutants (Dioxi n2017) (Vancouver, Canada, August 2017).
- 48) Terao K., Wang Q., Tokumura M., Miyake Y., Amagai T., Tatsu K.: An Analytical Meth od for Alternative Flame Retardants in Chairs and Car Seats to Evaluate Direct Dermal Exp

osure from Interior Consumer Products, 37th I nternational Symposium on Halogenated Persis tent Organic Pollutants (Dioxin2017) (Vancouv er, Canada, August 2017).

- 49) Furukawa M., Wang Q., Tokumura M., Miya ke Y., Amagai T., Takahashi Y.: Alternative Flame Retardants in House Dust Collected from Residential Houses and Kindergartens in Ja pan, 37th International Symposium on Haloge nated Persistent Organic Pollutants (Dioxin2017) (Vancouver, Canada, August 2017).
- 50) Masuda M., Wang Q., Tokumura M., Miyake Y., Amagai T.: An Analytical Method for Pol ycyclic Aromatic Hydrocarbons and their Deri vatives in Fish Oil Derived from Grilled Fish, 37th International Symposium on Halogenate d Persistent Organic Pollutants (Dioxin2017) (Vancouver, Canada, August 2017).
- 51) Muramatsu K., Tokumura M., Ogo S., Kume K., Goro Y., Wang Q., Miyake Y., Amagai T., Makino M.: Estimation of transfer amount of flame retardant from curtain to house dust, The 22nd Shizuoka Forum on Health and Lo ngevity (Shizuoka, Japan, November 2017).
- 52) Aiuchi H., Tokumura M., Goro Y., Wang Q., Miyake Y., Amagai T., Makino M.: Synthesis of Analytical Standards of Chlorinated Polycy clic Aromatic Hydrocarbons Unintentionally Pr oduced during Cooking, The 22nd Shizuoka F orum on Health and Longevity (Shizuoka, Jap an, November 2017).
- 53) 王 斉, 久米 一成, 清 健人, 増田 美里, 三輪 春樹, 甲斐 葉子, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨 谷 敬史, 一般住宅におけるハウスダスト中 のリン系難燃剤の濃度と組成実態調査, 2019 年室内環境学会学術大会, 沖縄. (2019年12月) 【優秀発表賞受賞】
- 54) 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 化水素類のリスク評価と削減策の検討, 2019 年室内環境学会学術大会, 沖縄. (2019年12月)
- 55) 三輪 春樹, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨 谷 敬史, カーシート中に含まれる難燃剤の 製造年代別網羅的調査, 2019年室内環境学会 学術大会, 沖縄. (2019年12月)
- 56) 大石 純菜, 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,拡散型サンプラーにおけるサン プリングレート算出のための物性値推算法の 検討,2019年室内環境学会学術大会,沖縄. (2019年12月)

- 57) 大石 真菜,新堂 真生,徳村 雅弘,王 斉,三 宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和,経皮曝露量 測定デバイスを用いた難燃剤の曝露量推定に 及ぼす影響要因調査,2019年室内環境学会学 術大会,沖縄.(2019年12月)【優秀発表賞受賞】
- 58) 深澤 英, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 一般住宅における室内空気中のイソシ アネートの汚染実態調査, 2019年室内環境学 会学術大会, 沖縄. (2019年12月)
- 59)新堂 真生,徳村 雅弘,王 斉,三宅 祐一,雨 谷 敬史,牧野 正和,人工皮膚を用いた製品 中リン系難燃剤の経皮曝露量測定法の検討, 2019年室内環境学会学術大会,沖縄.(2019年 12月)<u>【優秀発表賞受賞】</u>
- 60)清健人,久米一成,王斉,甲斐葉子,徳村 雅弘,三宅祐一,雨谷敬史,ハウスダスト 中の多環芳香族炭化水素類及びそのハロゲン 誘導体の網羅的実態調査,2019年室内環境学 会学術大会,沖縄.(2019年12月)【優秀発表賞 受賞】
- 61) 村松 孝亮, 徳村 雅弘, 王 斉, 三宅 祐一, 雨 谷 敬史, 水田 一枝, 矢部 光保, 牧野 正和, バイオガス発電施設の普及に向けた低コスト な排水処理技術の開発, 富士山麓A&Sフェア 2019, 沼津. (2019年11月)
- 62) 鰐川 雅花,村松 孝亮,徳村 雅弘,王 斉,三 宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和,排水中医薬 品成分の促進酸化法による効率的な処理技術 の開発,富士山麓A&Sフェア2019,沼津. (2019年11月)
- 63) 三輪 春樹, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨 谷 敬史, カーシートに接触して曝露される 可能性がある未規制有害物質の調査, 富士山 麓A&Sフェア2019, 沼津. (2019年11月)
- 64) 大石 真菜,新堂 真生,徳村 雅弘,王 斉,三 宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和,経皮曝露量 測定デバイスの性状が測定精度に及ぼす影響 評価,富士山麓A&Sフェア2019,沼津.(2019 年11月)
- 65) 大石 純菜, 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,

事故・災害時における、有害物質における簡 易測定法の検討,富士山麓A&Sフェア2019, 沼津.(2019年11月)

- 66) 多田 智彦, 天野 あすか, 清 健人, 王 斉, 徳 村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正和, 生体内での代謝を考慮した有害物質の新規合 成と生態毒性評価, 富士山麓A&Sフェア2019, 沼津. (2019年11月)
- 67) 深澤 英, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 一般家庭の室内空気におけるイソシア ネートの汚染実態調査, 富士山麓A&Sフェア 2019, 沼津. (2019年11月)
- 68) 宮崎 淳平, 徳村 雅弘, イスラム ラフクール 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2019, 沼津. (2019年11月)
- 69) 新堂 真生, 徳村 雅弘, 王 斉, 三宅 祐一, 雨 谷 敬史, 牧野 正和, 経皮曝露は製品中の化 学物質のヒトへの主要な曝露経路となり得る か, 富士山麓A&Sフェア2019, 沼津. (2019年 11月)
- 70) 清健人,王斉,増田美里,徳村雅弘,三宅 祐一,高木毅,鈴木進二,岡本一利,雨谷 敬史,健康に考慮したかつお節製造法の検討, 富士山麓A&Sフェア2019,沼津.(2019年11月)
- 71) 増田 美里,王 斉,徳村 雅弘,三宅 祐一,雨
 谷 敬史,肉の加熱調理による発がん性物質
 (多環芳香族炭化水素類)の生成,富士山麓
 A&Sフェア2019,沼津.(2019年11月)
- 72) 徳村 雅弘, 宮崎 淳平, イスラム ラフクール 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 デシュにおけるコメ消費に伴うリスク評価に 基づいた低減策の検討, 第25回ヒ素シンポジ ウム, 板倉. (2019年11月)
- 73) 鰐川 雅花,村松 孝亮,徳村 雅弘,王 斉,三
 宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和,排水中の生
 活由来化学物質の環境負荷低減対策技術の開
 発,環境科学会2019年会,名古屋.(2019年9月)
- 74) 三輪 春樹, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨 谷 敬史, カーシート中主要難燃剤の網羅的 調査および直接接触による経皮曝露評価, 環 境科学会2019年会, 名古屋. (2019年9月)
- 75) 大石 純菜, 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,拡散型サンプラーにおける揮発 性有機化合物のサンプリングレートの実測と 理論的推算法の検討,環境科学会2019年会, 名古屋.(2019年9月)

- 76) 大石 真菜,新堂 真生,徳村 雅弘,王 斉,三 宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和,経皮曝露量 測定デバイスを用いた室内製品との直接接触 に伴う難燃剤曝露量の推定,環境科学会2019 年会,名古屋.(2019年9月)
- 77) 村松 孝亮, 徳村 雅弘, 王 斉, 三宅 祐一, 雨 谷 敬史, 水田 一枝, 矢部 光保, 牧野 正和, バイオガス発電施設からの着色排水の効率的 な排水処理技術の開発, 環境科学会2019年会, 名古屋. (2019年9月)
- 78) 宮崎 淳平,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 るコメ消費に伴う確率論的リスク評価と低減 対策の検討,環境科学会2019年会,名古屋. (2019年9月)【優秀発表賞受賞】
- 79) 新堂 真生, 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の精緻化と 主要曝露経路の推定, 環境科学会2019年会, 名古屋. (2019年9月)
- 80) 多田 智彦, 天野 あすか, 清 健人, 王 斉, 徳 村 雅弘, 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の代謝を考慮し た有害性評価, 環境科学会2019年会, 名古屋. (2019年9月)
- 81)清健人,王斉,増田美里,徳村雅弘,三宅 祐一,雨谷敬史,髙木毅,鈴木進二,岡本 一利,かつお節中の多環芳香族炭化水素 (PAH)濃度低減に向けた製造法の提案,環境 科学会2019年会,名古屋.(2019年9月)
- 82) 増田 美里,王 斉,徳村 雅弘,三宅 祐一,雨 谷 敬史,食品の加熱調理による多環芳香族 炭化水素とその塩素化体の生成と曝露評価, 環境科学会2019年会,名古屋.(2019年9月) <u>【優秀発表賞受賞】</u>
- 83) 深澤 英, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, イソシアネート測定のためのジブチル アミン含浸シリカゲルサンプラーの開発と汚 染実態調査, 環境科学会2019年会, 名古屋. (2019年9月)

- 84) 徳村 雅弘,新堂 真生,王 斉,三宅 祐一,雨 谷 敬史,牧野 正和,カーシートに含まれる リン系難燃剤の経皮曝露量の推定とリスク評 価,第28回 日本臨床環境医学会 学術集会, 東京.(2019年6月)
- 85) 鰐川 雅花,村松 孝亮,徳村 雅弘,王 斉,三 宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和,促進酸化法 を用いた排水中PPCPsの分解除去実験におけ る分析法の検討,第28回環境化学討論会,埼 玉.(2019年6月)
- 86) 三輪 春樹, 寺尾 琴音, 王 斉, 徳村 雅弘, 三 宅 祐一, 雨谷 敬史, カーシート中に含まれ る主要代替難燃剤の実態調査 ~ 経皮曝露評 価を行うべき物質の検索~, 第28回環境化学 討論会, 埼玉.(2019年6月)
- 87) 大石 純菜, 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 プラーにおける揮発性有機化合物(VOCs)の サンプリングレートの検討, 第28回環境化学 討論会, 埼玉.(2019年6月) 【優秀発表賞受賞】
- 88) 大石 真菜,新堂 真生,徳村 雅弘,王 斉,三 宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和,室内製品中 に含まれるリン系難燃剤の経皮曝露量評価デ バイスの改良,第28回環境化学討論会,埼玉. (2019年6月)
- 89) 村松 孝亮, 徳村 雅弘, 王 斉, 三宅 祐一, 雨 谷 敬史, 水田 一枝, 矢部 光保, 牧野 正和, フォトフェントン反応によるメタン発酵廃液 の処理, 第28回環境化学討論会, 埼玉. (2019 年6月) 【優秀発表賞受賞】
- 90) 宮崎 淳平, 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 るコメ中ヒ素および重金属汚染低減策の提案 とその影響予測, 第28回環境化学討論会, 埼 玉. (2019年6月)
- 91) 新堂 真生, 徳村 雅弘, 王 斉, 三宅 祐一, 雨 谷 敬史, 牧野 正和, 三次元組織ヒト表皮モ デルを用いた製品との直接接触によるリン系 難燃剤の経皮曝露量評価, 第28回環境化学討 論会, 埼玉.(2019年6月)
- 92) 多田 智彦, 天野 あすか, 清 健人, 王 斉, 徳 村 雅弘, 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の代謝生成物の 新規合成とhAhR 活性評価, 第28回環境化

学討論会, 埼玉. (2019年6月)

- 93) 王 斉, 増田 美里, 天野 あすか, 清 健人, 多 田 智彦, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 魚試料中のPAHsおよびハロゲン化PAHsのヒ ドロキシ誘導体の分析方法に関する検討, 第 28回環境化学討論会, 埼玉. (2019年6月)
- 94) 清健人,王斉,増田美里,徳村雅弘,三宅 祐一,雨谷敬史,規制対象の多環芳香族炭化 水素類 (PAHs) に対応した網羅的分析法の開 発,第28回環境化学討論会,埼玉.(2019年6月)
- 95) 増田 美里,王 斉,徳村 雅弘,三宅 祐一,雨 谷 敬史,LC-APPI-MS/MSを用いた環境サン プル中臭素化多環芳香族炭化水素の分析法の 検討,第28回環境化学討論会,埼玉.(2019年6 月)
- 96) 深澤 英, 王 斉, 徳村 雅弘, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, ジブチルアミン含浸シリカゲルを用 いたイソシアネートの測定法の開発, 第28回 環境化学討論会, 埼玉. (2019年6月)
- 97) 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 リカゲルチュープ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)
- 98) 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)
- 99) 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)
- 100)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】
- 101)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

<u>スター賞受賞】</u>

- 102) 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)
- 103)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)
- 104) 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. (2 018年11月)
- 105) 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20 18,富士.(2018年11月)
- 106)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)
- 107) 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. (2 018年11月)
- 108) 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)
- 109) 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)
- 110) 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)
- 111) 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】

- 112) 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. (20 18年9月)
- 113)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)
- 114)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)
- 115) 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】
- 116) 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)
- 117) 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)
- 118) 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)
- 119) 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)

120)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. (2 018年5月)

- 121)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(CIPAHs)分析法の 開発,第27回環境化学討論会,那覇.(2018年5 月)
- 122)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) <u>【RSC賞受賞】</u>
- 123) 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)
- 124) 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)
- 125) 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)
- 126) 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. (2 018年4月)
- 127) 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)
- 128) 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)

- 129)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 (CIPAHs) 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)
- 130) 徳村 雅弘,王 斉,三宅 祐一,甲斐 葉子,雨
 谷 敬史:防炎カーテンに含まれる化学構造が
 未知である難燃剤の定性分析,平成29年室内
 環境学会学術大会(佐賀),A21,2017年12月.
- 131) 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 した代替難燃剤の曝露・リスク評価 –成人と 幼稚園児の比較–,平成29年室内環境学会学術 大会(佐賀),P14,2017年12月.
- 132)寺尾琴音,王斉,徳村雅弘,三宅祐一,雨谷敬史,達晃一:車室内における代替難燃剤の汚染調査とリスク評価,平成29年室内環境学会学術大会(佐賀),P15,2017年12月.
- 133) 増田 美里,王 斉,徳村 雅弘,三宅 祐一,雨 谷 敬史:調理中に発生する多環芳香族炭化水 素およびその誘導体の検討,平成29年室内環 境学会学術大会(佐賀),P40,2017年12月.
- 134) 王 斉,徳村 雅弘,三宅 祐一,雨谷 敬史:パ ッシブサンプラーを用いた室内空気中のグル タルアルデヒドおよびグリオキサール測定法 の開発,平成29年室内環境学会学術大会(佐 賀),P42,2017年12月.
- 135) 瀬尾 真紀子,徳村 雅弘,王 斉,五老 祐大, 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, 平成29年室内環境学会学術大会(佐賀),P66, 2017年12月.【優秀ポスター賞受賞】
- 136) 寺尾 琴音,王 斉,徳村 雅弘,三宅 祐一,雨 谷 敬史,達 晃一:車室内における代替難燃 剤の汚染調査とリスク評価,富士山麓アカデ ミック&サイエンスフェア2017,2017年11月. 【優秀発表賞受賞】
- 137) 増田 美里,王 斉,徳村 雅弘,三宅 祐一,雨 谷 敬史:調理中に発生する多環芳香族炭化水 素およびその誘導体に関する研究,富士山麓 アカデミック&サイエンスフェア2017,2017 年11月.【優秀発表賞受賞】
- 138) 瀬尾 真紀子, 徳村 雅弘, 王 斉, 五老 祐大,甲斐 葉子, 三宅 祐一, 雨谷 敬史, 牧野 正

和:マニキュア液中の可塑剤のリスク評価, 富士山麓アカデミック&サイエンスフェア20 17,2017年11月.

- 139) 村松 孝亮,徳村 雅弘,小郷 沙矢香,久米 一成,王 斉,五老 祐大,甲斐 葉子,三宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和:室内環境中の難 燃剤の挙動調査,富士山麓アカデミック&サ イエンスフェア2017,2017年11月.
- 140)相内 博,五老 祐大,徳村 雅弘,王 斉,甲斐 葉子,三宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和:環 境中のハロゲン化多環芳香族炭化水素類の調 査,富士山麓アカデミック&サイエンスフェ ア2017,2017年11月.
- 141)徳村 雅弘,達 晃一,内藤 敏幸,益永 茂樹, 三宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和:車室内空 気中の揮発性有機化合物とアルデヒド類の 実態調査とリスク評価,自動車技術会2017年 秋季大会学術講演会(大阪),2017年10月.
- 142) 古川美乃里,王斉,徳村雅弘,三宅祐一, 雨谷敬史,高橋ゆかり:一般住宅と幼稚園 におけるハウスダスト中の代替難燃剤の実態 調査およびリスク評価,環境科学会2017年会 (北九州),2C-1345,P-27,2017年9月. 【最 優秀発表賞受賞】
- 143) 寺尾琴音,王斉,徳村雅弘,三宅祐一,雨谷敬史,達晃一:カーシート中難燃剤の経皮曝露量の推定,環境科学会2017年会(北九州), 2C-1415, P-31, 2017年9月.
- 144) 増田美里,王斉,徳村雅弘,三宅祐一,雨谷敬史:食品中の多環芳香族炭化水素およびその誘導体の分析,環境科学会2017年会(北九州),1C-1000, P-29,2017年9月.
- 145) 瀬尾真紀子,徳村雅弘,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リスクトレードオフ解 析,環境科学会2017年会(北九州),P-33,2 017年9月.【優秀発表賞受賞】
- 146)雨谷敬史、三宅祐一:室内環境中の代替難燃 剤に対するリスク評価と今後の展開,環境科 学会2017年会(北九州)(2017年9月)【シン ポジウム講演】
- 147)雨谷敬史: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,環境 科学会2017年会(北九州)(2017年9月)【シンポジウム講演】
- 148)小林剛・富澤茉佑香:室内環境中で使用され

る高リスク懸念物質のスクリーニング,環境 科学会2017年会(北九州)(2017年9月)【シ ンポジウム講演】

- 149) 久米一成,小郷沙矢香:家庭用品から室内環 境中への化学物質のエミッション評価,環境 科学会2017年会(北九州)(2017年9月)【シ ンポジウム講演】
- 150) 三宅祐一,徳村雅弘,雨谷敬史:ハウスダス ト中のリン系・臭素系難燃剤の汚染実態調査 と曝露・リスク評価,環境科学会2017年会(北 九州)(2017年9月)【シンポジウム講演】
- 151) 小川久美子・高須伸二:新規臭素系難燃剤の 毒性影響について,環境科学会2017年会(北 九州)(2017年9月)【シンポジウム講演】
- 152)小郷沙矢香、久米一成:難燃剤の発生源探索
 手法の開発:第26回環境化学討論会(静岡)(2 017年6月)
- 153)久米一成,小郷沙矢香:防炎カーテン中の難
 燃剤の挙動に関する研究(その2):平成29
 年室内環境学会学術大会(佐賀市)(2017年
 12月)
- 154) 徳村 雅弘,王 斉,三宅 祐一,甲斐 葉子,雨 谷 敬史,小郷 沙矢香,久米 一成,小林 剛, 高須 伸二,小川 久美子:化学構造が未知で ある難燃剤を含めた防炎カーテン中の臭素系 およびリン系難燃剤の実態調査,第26回環境 化学討論会(静岡),1A-09,2017年6月.
- 155)寺尾琴音,王斉,徳村雅弘,三宅祐一,雨谷敬史,達晃一:直接曝露評価のための室内製品における代替難燃剤の分析法開発と実態調査,第26回環境化学討論会(静岡),3A -03,2017年6月.
- 156) 古川 美乃里,王 斉,徳村 雅弘,三宅 祐一,
 雨谷 敬史,高橋 ゆかり:一般住宅と幼稚園
 におけるハウスダスト中の代替難燃剤の実態
 調査,第26回環境化学討論会(静岡),3A-0
 4,2017年6月.
 【Royal Society of Chemistry
 賞受賞】
- 157) 瀬尾 真紀子,徳村 雅弘,王 斉,甲斐 葉子,
 三宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和:経皮曝露 量の推算のためのマニキュア液中リン系化合 物の実態調査,第26回環境化学討論会(静岡),
 3A-05,2017年6月.【優秀発表賞受賞】
- 158)王 斉,三宅 祐一,徳村 雅弘,雨谷 敬史,堀 井 勇一:実験炉を用いたヘキサブロモシクロ ドデカンの燃焼に伴う非意図的な臭素化多環

芳香族炭化水素類の生成,第26回環境化学討 論会(静岡),1A-13,2017年6月.<u>【優秀発</u> 表賞受賞】

- 159) 王 志偉,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:市 販の捕集剤による作業環境及び一般環境にお ける揮発性有機化合物(VOC)の回収率に関 する検討,第26回環境化学討論会(静岡),1 B-06,2017年6月.
- 160) 鈴木 進二, 倉石 祐, 三宅 祐一, 雨谷 敬史: くん煙材の発煙温度と発煙量および多環芳香 族炭化水素(PAHs)の生成量, 第26回環境化学 討論会(静岡), 1B-11, 2017年6月.
- 161) 増田 美里,王 斉,徳村 雅弘,三宅 祐一,雨 谷 敬史:魚油を含む食品中の多環芳香族炭化 水素とその誘導体の分析法の検討,第26回環 境化学討論会(静岡),1B-12,2017年6月.
- 162) 三宅 祐一,徳村 雅弘,岩崎 悠太,王 斉,雨 谷 敬史,小林 剛,小口 正弘:廃棄物焼却排 ガス中六価クロムの測定法開発と排出濃度調 査,第26回環境化学討論会(静岡),1D-16, 2017年6月.
- 163) 甲斐 葉子,三宅 祐一,雨谷 敬史:ETS曝露
 量評価用ニコチンパッシブサンプラーの捕集
 時間の検討,第26回環境化学討論会(静岡),
 P-056,2017年6月.
- 164)新田しおり,山口里奈,徳村雅弘,三宅祐一,雨谷敬史,牧野正和:パーソナルケア 製品中のパラベン類の複合曝露量の推算,第 26回環境化学討論会(静岡),P-219,2017年 6月.
- 165) 徳村 雅弘,三宅祐一,岩崎 悠太,王斉,雨 谷 敬史,堀井 勇一,大塚 英幸,谷川 昇,小 林 剛,小口 正弘:産業廃棄物焼却施設から の排ガス中の六価クロム濃度の測定 - IC-DP C法の改良による高感度化 -,平成29年度 廃 棄物資源循環学会春の研究発表会(神奈川), P-019,2017年6月.
- 166) 徳村 雅弘,新田 しおり,山口 里奈,三宅 祐一,雨谷 敬史,牧野 正和:パーソナルケ ア製品に含まれる防腐剤の複合曝露評価-成人女性と幼児の複合曝露量の比較-,第26 回日本臨床環境医学会学術集会(東京),O-2 6,2017年6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
- 実用新案登録
 なし
- 3. その他 なし

表1 実験に用いた防炎カーテン

Sample ID	Make	Туре	Material	Flame resisting method
1	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
2	Japan	Net curtain	Polyester 100%	Post processing
3	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
4	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
5	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
6	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
7	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
8	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
9	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
10	Japan	Net curtain	Polyester 100%	Post processing
11	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
12	Japan	Curtain	Polyester 97%, Nylon 3%	Post processing
13	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
14	Japan	Net curtain	Polyester 100%	Post processing
15	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
16	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
17	Japan	Net curtain	Polyester 100%	Post processing
18	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
19	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
20	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing
			Warp: Polyester 100%	
21	Ionon	Not ourtoin	Weft: Acryl 1%,	Doct processing
21	Japan	Inet curtain	Nylon 1%,	Post processing
			Polyester 98%	
22	Japan	Net curtain	Polyester 100%	Post processing
23	Japan	Net curtain	Polyester 100%	Post processing
24	Korea	Net curtain	Polyester 100%	Post processing
25	Vietnam	Curtain	Polyester 100%	Flame resistant fabrics
26	China	Curtain	Polyester 100%	Flame resistant fabrics
27	Japan	Net curtain	Polyester 100%	Flame resistant fabrics
28	Japan	Net curtain	Polyester 100%	Flame resistant fabrics
29	Japan	Net curtain	Polyester 100%	Flame resistant fabrics

30	Germany	Curtain	Polyester 100%	Flame resistant fabrics
31	Japan	Curtain	Acryl 61%, Polyester 39%	Flame resistant fabrics
32	Japan	Net curtain	Polyester 100%	Flame resistant fabrics
33	Japan	Curtain	Polyester 100%	Flame resistant fabrics
			Warp: Polyester 100%	
34	Japan	Curtain	Weft: Acryl 97%, Rayon 2%,	Flame resistant fabrics
			Polyester 1%	
35	Japan	Curtain	Polyester 52%, Acryl 48%	Flame resistant fabrics
36	Japan	Curtain	Warp Polyester 100% Weft: Acry 100%	Flame resistant fabrics
37	Japan	Curtain	Warp Polyester 100% Weft: Acryl 98%, Polyester 2%	Flame resistant fabrics
			Warp: Polyester 100%	
38	Japan	Curtain	Weft: Acryl 84%,	Flame resistant fabrics
			Polyester 16%	
39	Japan	Net curtain	Polyester 63%, Acryl 37%	Flame resistant fabrics
			Warp Acryl 97%,	
40	Japan	Net curtain	Polyester 3%	Flame resistant fabrics
			Weft: Acryl 100%	

Instrument	TSQ Endura		
Ionization mode	APCI		
Sheath gas (arbitrary unit)	25		
Auxiliary gas (arbitrary unit)	5		
Sweep gas (arbitrary unit)	0		
Ion transfer tube temperature	250 °C		
Vaporizer temperature	300 °C		
Positive ion discharge current	4 μΑ		
Negative ion discharge current	4 μΑ		

表2 防炎カーテン中の難燃剤の分析における LC-MS/MS の分析パラメーター

表3防炎カーテン中の難燃剤の分析におけるLC-MS/MSのMSパラメーター

	Mode	Precursor ion	Product ion 1	Collision energy 1	Product ion 2	Collision energy 2
		[m/z]	[m/z]	[V]	[m/z]	[V]
PMMMP	APCI positive	287.3	177.0	16.0	97.1	26.4
BzlDOPO	APCI positive	307.0	91.2	30.7	199.0	25.0
NDPhP	APCI positive	377.2	202.0	34.4	127.1	41.9

Compound	Abbreviation	CAS number	The limit of quantification (ng mL ⁻¹)	$\begin{array}{c} MQL\\ (ng \ g^{-1}) \end{array}$
6-Benzylbenzo[c][2,1]benzoxaphosphinine 6-oxide	BzlDOPO	113504-81-7	0.00036	0.00083-0.017
Cresyl diphenyl phosphate	CsDPhP	26444-49-5	0.00036	0.00083-0.017
2-Ethylhexyl diphenyl phosphate	EHDPhP	1241-94-7	0.00083	0.0019-0.040
Naphthalen-2-yl diphenyl phosphate	NDPhP	18872-49-6	0.00036	0.00083-0.017
(5-Ethyl-2-methyl-2-oxido-1,3,2-dioxaphosphorinan-5- yl)methyl methyl methylphosphonate	PMMMP	41203-81-0	0.00036	0.00083-0.017
Bis[(5-ethyl-2-methyl-2-oxido-1,3,2-dioxaphosphi nan-5- yl)methyl] methylphosphonate	di-PMMMP	42595-45-9	0.00036	0.00083-0.017
Tris(butoxyethyl) phosphate	TBOEP	78-51-3	0.00089	0.0021-0.043
Tributyl phosphate	TBP	126-73-8	0.000020	0.000046-0.0010
Tris(2-chloroethyl) phosphate	TCEP	115-96-8	0.00046	0.0011-0.022
Tris(2-chloroisopropyl) phosphate	TCPP	13674-84-5	0.00029	0.00067-0.014
Tricresyl phosphate	TCsP	1330-78-5	0.000061	0.00014-0.0030
Tris(1,3-dichloro-2-propyl) phosphate	TDCPP	13674-87-8	0.00047	0.0011-0.023
Triethyl phosphate	TEP	78-40-0	0.000055	0.00013-0.0027
Tris(2-ethylhexyl) phosphate	TEHP	78-42-2	0.00010	0.00023-0.0048
Tris(isobutyl) phosphate	TIBP	126-71-6	0.000048	0.00011-0.0023
Trimethyl phosphate	TMP	512-56-1	0.000071	0.00016-0.0034
Triphenyl phosphate	TPhP	115-86-6	0.000034	0.000078-0.0016
Triphenylphosphine oxide	TPhPO	791-28-6	0.000019	0.000044-0.00092
Tripropyl phosphate	TPP	513-08-6	0.000048	0.00011-0.0023

表4 測定対象の有機リン系難燃剤

有害性 ランク	大気環境基準値、 WHOガイドライン値、 室内濃度指針値、 環境管理参考濃度(大気) [mg/m ³]	発がん性確度 (IARC他)	変異原性 確度 (EU他* ⁶)	生殖毒性 確度 (EU他* ⁶)	感作性 確度 (EU他* ^{1,4,6,7})
Α	$C_a \le 1.0 \times 10^{-3}$	Group 1		H360	H334
В	$1.0 \times 10^{-3} < C_a \le 1.0 \times 10^{-2}$	Group 2A, 2B	H340	H361	H317
С	$1.0 \times 10^{-2} < C_a \le 1.0 \times 10^{-1}$	-	H341	H362	
D	$1.0 \times 10^{-1} < C_a \le 1.0$	Group 3			
E	1.0 < <i>C</i> _a	Group 4			

表5 有害性ランク(吸入曝露)の決定方法

*1ACGIH,*2OSHA,*3NIOSH,*4DFG,*5AIHA,*6EUCLP,*7**産衛会**

No	锢杏佃斫	春期	夏期	秋期	冬期
NO	问旦 [凹[7]	調査	調査	調査	調査
1	白索,V		2018		2018
1	日王:K		0613		1212
2	白云 足明		2018		2019
2	日至、店间		0621		0121
2	白安淳安		2018		2018
3	日至侵至		0625		1218
4	日月		2018		2018
4	「四日」		0703		1222
5	日月		2018		2018
5	「「」」「「」」「」「」」「」」「」」「」」「」」「」」「」」「」」「」」「」		0708		1218
,	尺明 ,V		2019		2019
0			0127		0127
7		2018	2018	2018	2019
/	店间 DK	0520	0725	1010	0201

表 6-1 室内ハウスダスト調査概要(2018)

_____ 注)K:キッチン DK:ダイニングキッチン

表6-2 室内ハウスダスト調査概要(2019)

No	調查個所 春期調查		夏期調査	秋期調査	冬期調査
1	寝室		20190609		20191115
2	居間、和室		20190604		20191202
3	寝室		20190610		20191219
4	居間		20190622		20191216
5	居間、寝室		20190726		20200110
6	居間、台所		20190720		20191207
7	居間、和室		20190709		20191212
8	居間、台所				20200108
9	居間、DK	20190525	20190820	20191010	20200217

注)DK:ダイニングキッチン

表 7 QEESI 問診票の概要

質	問票	反応・症状の強さ
Q1	化学物質暴露による反応	まったく反応なし(0)~動けなくなる程の症状(10)
Q2	その他物質に対する反応	まったく反応なし(0)~動けなくなる程の症状(10)
Q3	症状	まったく症状なし(0)~動けなくなる程の症状(10)
Q4	マスキング	当てはまるものを選択
Q5	日常生活の支障の程度	まったく支障なし(0)~動けなくなる程の症状(10)

注)Q1、Q2、Q3、Q5は、反応なし等の0点から最も重い症状の10点までの項目をそれ ぞれの設問について選択する

No	調査場所	夏期調査	冬期調査
1	カーテン	2018年07月06日	2019年01月28日
2	テレビ下	2018年07月06日	2019年01月28日
3	ソファタオルケット	2018年07月06日	2019年01月28日
4	フローリング	2018年07月06日	2019年01月28日
5	カーペット	2018年07月06日	2019年01月28日
6	テレビ下カーペット	2018年07月06日	2019年01月28日
7	上向き(セル)	2018年07月06日	2019年01月28日

表8 化学物質放散源の実態調査概要

表9 MAGMaオンラインデータベースを用いたライブラリ検索の結果.

	Score	Formula	Mass	Δ mass (ppm)	IUPAC name
a (cur	tain 15)				
1	1.108201	$C_9H_{20}O_6P_2$	286.073512	-0.65637	5-dimethoxyphosphoryl-2-methoxy-3,3,5-trimethyl-1,2-oxaphospholane 2-oxide
2	1.182484	$C_9H_{20}O_6P_2$	286.073512	-0.65637	5-ethyl-5-[[methoxy(methyl)phosphoryl]oxymethyl]-2-methyl-1,3,2-dioxaphosphinane 2-oxide
3	1.182484	$C_9H_{20}O_6P_2$	286.073512	-0.65637	[(5-ethyl-2-methyl-2-oxo-1,3,2-dioxaphosphinan-5-yl)methoxy-methylphosphoryl]methanol
4	1.337656	$C_9 H_{21} O_6 P_2{}^+$	287.081337	-0.65626	5-ethyl-2-hydroxy-5-[[methoxy(methyl)phosphoryl]oxymethyl]-2-methyl-1,3,2-dioxaphosphinan-2-ium
5	1.337656	$C_{9}H_{21}O_{6}P_{2}{}^{+}$	287.081337	-0.65626	5-(dimethoxyphosphorylmethyl)-5-ethyl-2-hydroxy-2-methyl-1,3,2-dioxaphosphinan-2-ium
6	1.34239	$C_9H_{20}O_6P_2$	286.073512	-0.65637	[(1R,3R)-2-[hydroxy(methyl)phosphoryl]oxy-3-methylcyclopentyl]methoxy-methylphosphinic acid
7	1.34239	$C_9H_{20}O_6P_2$	286.073512	-0.65637	[2-[hydroxy(methyl)phosphoryl]oxycyclohexyl]methoxy-methylphosphinic acid
8	1.809343	$C_9H_{20}O_6P_2$	286.073512	-0.65637	(E)-1,4-bis(dimethoxyphosphoryl)pent-2-ene
9	1.809343	$C_9H_{20}O_6P_2$	286.073512	-0.65637	2,5-bis(dimethoxyphosphoryl)pent-2-ene
10	1.883627	$C_9H_{20}O_6P_2$	286.073512	-0.65637	1,4-bis(dimethoxyphosphoryl)-2-methylbut-2-ene
<u>b (cu</u>	<u>tain 17)</u>				
1	2.494634	$C_{22}H_{17}O_4P$	376.086446	-0.58986	naphthalen-2-yl diphenyl phosphate
2	2.494634	$C_{22}H_{17}O_4P$	376.086446	-0.58986	naphthalen-1-yl diphenyl phosphate
3	3.276926	$C_{22}H_{17}O_4P$	376.086446	-0.58986	1-dinaphthalen-1-yloxyphosphorylethanone
4	3.390609	$C_{13}H_{20}N_4O_5S_2\\$	376.087512	-3.41674	N-[2-[furan-2-y]methyl(methylsulfonyl)amino]ethyl]-3,5-dimethyl-1H-pyrazole-4-sulfonamide
5	3.563979	$C_{17}H_{12}N_8OS$	376.085478	1.97714	2-(4-amino-5-cyanopyrimidin-2-yl)sulfanyl-N-(4-cyano-2-phenylpyrazol-3-yl)acetamide
6	3.589437	$C_{17}H_{12}N_8OS$	376.085478	1.97714	5-[(2E)-2-[2-(diisocyanomethyl)-5-phenylimidazol-4-ylidene] hydrazinyl]-3-methyl-1,2-thiazole-4-carboxamide and the second sec
7	3.809829	$C_{17}H_{12}N_8OS$	376.085478	1.97714	N-(4-cyano-2-phenylpyrazol-3-yl)-2-([1,2,4]triazolo[1,5- a]pyrimidin-2-ylsulfanyl)acetamide
8	3.838671	$C_{17}H_{12}N_8OS$	376.085478	1.97714	5-[(2E)-2-[2-(dicyanomethyl)-5-phenylimidazol-4-ylidene]hydrazinyl]-3-methyl-1,2-thiazole-4-carboxamide
9	3.840129	$C_{14}H_{21}N_2O_6PS$	376.085794	1.13915	2-[3-(aminomethyl)phenyl]-3-[hydroxy-[2-methyl-1-(sulfonylamino)propyl]phosphoryl]propanoic acid
----------------	----------	---------------------------	------------	----------	--
10	2 059025	a u voa	276 007512	-3.41674	1-[(4aR,7aS)-1-(2-hydroxyethyl)-6,6-dioxo-2,3,4a,5,7,7a-hexahydrothieno[3,4-b]pyrazin-4-yl]-2-(2-hydroxyethyl)-6,6-dioxo-2,3,4a,5,7,7a-hexahydrothieno[3,4-b]pyrazin-4-yl]-2-(2-hydroxyethyl)-6,6-dioxo-2,3,4a,5,7,7a-hexahydrothieno[3,4-b]pyrazin-4-yl]-2-(2-hydroxyethyl)-6,6-dioxo-2,3,4a,5,7,7a-hexahydrothieno[3,4-b]pyrazin-4-yl]-2-(2-hydroxyethyl)-6,6-dioxo-2,3,4a,5,7,7a-hexahydrothieno[3,4-b]pyrazin-4-yl]-2-(2-hydroxyethyl)-6,6-dioxo-2,3,4a,5,7,7a-hexahydrothieno[3,4-b]pyrazin-4-yl]-2-(2-hydroxyethyl)-6,6-dioxo-2,3,4a,5,7,7a-hexahydrothieno[3,4-b]pyrazin-4-yl]-2-(2-hydroxyethyl)-6,6-dioxo-2,3,4a,5,7,7a-hexahydrothieno[3,4-b]pyrazin-4-yl]-2-(2-hydroxyethyl)-2-(2-hydroxy
10	5.958055	$C_{13}\Pi_{20}N_4O_5S_2$	570.087512		[(5-methyl-1,3,4-oxadiazol-2-yl)sulfanyl]ethanone
<u>c (curt</u>	ain 21)				
1	0.941704	$C_{19}H_{15}O_2P$	306.080966	-0.13818	6-phenylmethoxybenzo[c][2,1]benzoxaphosphinine
2	0.941704	$C_{19}H_{15}O_2P$	306.080966	-0.13818	6-(2-methylphenoxy)benzo[c][2,1]benzoxaphosphinine
3	1.014865	$C_{19}H_{16}O_2P+$	307.088791	-0.13807	6-benzyl-6-hydroxybenzo[c][2,1]benzoxaphosphinin-6-ium
4	1.088025	$C_{19}H_{15}O_2P$	306.080966	-0.13818	6-benzylbenzo[c][2,1]benzoxaphosphinine 6-oxide
5	1.373614	$C_{19}H_{15}O_2P$	306.080966	-0.13818	4-benzyl-6-hydroxybenzo[c][1,2]benzoxaphosphinine
6	1.373614	$C_{19}H_{15}O_2P$	306.080966	-0.13818	8-benzyl-6-hydroxybenzo[c][1,2]benzoxaphosphinine
7	1.373614	$C_{19}H_{15}O_2P$	306.080966	-0.13818	2-benzyl-6-hydroxybenzo[c][2,1]benzoxaphosphinine
8	1.380666	$C_{19}H_{15}O_2P$	306.080966	-0.13818	6-(2-methylphenyl)benzo[d][1,3,2]benzodioxaphosphepine
9	1.659202	$C_{19}H_{15}O_2P$	306.080966	-0.13818	2-diphenylphosphorylbenzaldehyde
10	1.659202	$C_{19}H_{15}O_2P$	306.080966	-0.13818	4-diphenylphosphanyloxybenzaldehyde

IUPAC名 CAS No.	6-benzylbenzo[c][2,1]be nzoxaphosphinine 6-oxi de 113504-81-7	(5-ethyl-2-methyl-2-oxido-1,3,2-dioxa p hosphorinan-5-yl)methyl methyl methyl phosphonate 41203-81-0	naphthalen-2-yl diphenyl phosph ate 18872-49-6
化学構造			

表10 新規に発見した難燃剤.

Sample ID	Make	Туре	Material	Flame resisting method	Phosphorus Flame Retardant detected
5	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing	3,900 μg- TDCPP*1 g-1
8	Japan	Curtain	Polyester 100%	Post processing	4,310 μg- TDCPP*1 g ⁻¹
12	Japan	Curtain	Polyester 97%, Nylon 3%	Post processing	4,840 μg- TCsP*2 g ⁻¹

表 11	Information on curtain samples (Miyake et al., 2017).	

*1 tris(1,3-dichloroisopropyl) phosphate (TDCPP), *2 tricresyl phosphate (TCsP)

Time (h)	Area-specific amount of PFR emitted (μ g m ⁻²) (average ± standard deviation)									
11me (n) —	TDCPP ^{*1} (Curtain 5)	TDCPP ^{*1} (Curtain 8)	TCsP*2 (Curtain 12)							
0	0	0	0							
24	_	6.2 ±0.66	_							
48	2.3±0.25	7.2 ±1.4	2.8 ± 0.77							
72	4.1 ±0.39	12±2.3	4.8 ±0.28							
120	_	19 ±2.6	_							
168	6.9 ±0.54	3 1±1.3	9.9±2.3							

表 12 Emission rates of phosphorus flame retardants (PFRs) from treated polyester

curtains.

*1 tris(1,3-dichloroisopropyl) phosphate (TDCPP), *2 tricresyl phosphate (TCsP)

ardants from treated polyester curtains to	indoor dust
	$k' \ (\mu g \ m^{-2} \ h^{-1})$
TDCPP, Curtain 5	0.044
TDCPP, Curtain 8	0.17
TCsP, Curtain 12	0.060

表 13 Pseudo-zero-order rate constants for indirect migration of phosphorus flame

* TDCPP: tris(1,3-dichloroisopropyl) phosphate; TCsP: tricresyl phosphate.

Time (h) —	Area-specific amount of PFR e de	mitted (µg m-2) (average ± standard viation)
Time (II)	20°C	tted (μ g m ⁻²) (average ± standard tion) 60°C 0 180±9.6 - 500±63 850±160 - -
0	0	0
6	_	180±9.6
24	6.2 ±0.66	_
48	7.2±1.4	500 ± 63
72	12±2.3	850 ±160
120	19 ±2.6	_
168	3 1±1.3	_

表 14 Effects of temperature on emission rates of tris(1,3-dichloroisopropyl) phosphate

	PFR concentration	on dust ($\mu g g^{-1}$) (average	st (μ g g ⁻¹) (average ± standard deviation)	
Time (h) —	TDCPP ^{*1} (Curtain 5)	TDCPP ^{*1} (Curtain 8)	TCsP*2 (Curtain 12)	
0	0	0	0	
6	6 .4±0.60	14±2.5	10±0.79	
24	10±2.0	27±2.8	17±3.1	
48	16±1.7	62±9.0	36 ± 5.0	
72	23±1.1	70±23	91±3.2	
120	27±6.0	_	140±24	

表 15 Temporal dependence of phosphorus flame retardants (PFRs) in indoor dust.

^{*1} tris(1,3-dichloroisopropyl) phosphate (TDCPP), ^{*2} tricresyl phosphate (TCsP)

	$k_{\rm d}$ (h ⁻¹)	$C_{\rm d}*(\mu { m g}~{ m g}^{-1})$
TDCPP, Curtain 5	0.017	31
TDCPP, Curtain 8	0.016	110
TCsP, Curtain 12	0.0087	200

表 16 Kinetic parameters of our model for direct migration of phosphorus flame retardants from treated polyester curtains to indoor dust.

* TDCPP: tris(1,3-dichloroisopropyl) phosphate; TCsP: tricresyl phosphate.

Temperature (°C)	Direct migration rate ($\mu g \ m^{-2} \ h^{-1}$)
10	5.5
20	12
40	26

表 17 Temperature dependence of direct migration rate of tris(1,3-dichloroisopropyl) phosphate (TDCPP) from treated polyester curtain (Curtain 8) to indoor dust.

To do an anni an anna an t	Concentrat	ion ($\mu g g^{-1}$)	Deference				
Indoor environment -	TDCPP	TCsP	Kelelelle				
Dwellings in United States	<0.09–56	_	Stapleton et al. (2009)				
Dwellings in California	0.49–140	0.18–10	Dodson et al. (2014)				
Dwellings in Japan	5.8–130	<4–100	Kanazawa et al. (2010)				
Dwellings in Belgium	<0.08-6.6	<0.04-5.1	Van den Eede et al. (2011)				
Dwellings in Kuwait	0.06–1.6	0.075–11					
Dwellings in Pakistan	<0.005-0.26	<0.002-0.36	A1: -+ -1 (2012)				
Car cabin in Kuwait	0.6–170	_	All et al. (2013)				
Car cabin in Pakistan	<0.005-1.2	-					
Dwellings in Germany	<0.08-0.11	<0.04-0.24	December et al. (2012)				
Car cabin in Germany	<0.08-620	< 0.04 - 150	Brommer et al. (2012)				
Car cabin (car seats) in Japan	1.4–190	_	T-1				
Car cabin (floor mats) in Japan	0.81-2.1	_	Tokumura et al. (2017)				

表 18 Previously reported concentrations of phosphorus flame retardants on indoor dust collected from indoor environments.

* TDCPP: tris(1,3-dichloroisopropyl) phosphate; TCsP: tricresyl phosphate.

	BzlDOPO	CsDPhP	EHDPhP	NDPhP	PMMMP	di-PMMMP	TBOEP	TBP, TIBP	ТСЕР	ТСРР	TCsP	TDCPP	TEP	TEHP	TMP	TPhP	TPhPO	TPP
DI	<1.8	66	440	<1.8	<1.8	<1.8	17000	270	480	1600	450	1300	31	580	<0.36	1400	370	3.5
DI	(-)	(0.28%)	(1.8%)	(-)	(-)	(-)	(71%)	(1.1%)	(2.0%)	(6.7%)	(1.9%)	(5.4%)	(0.13%)	(2.4%)	(-)	(5.8%)	(1.5%)	(0.015%)
D2	<1.8	620	810	<1.8	310	79	7400	42	4200	9100	420	11000	30	920	< 0.36	510	42	< 0.24
D2	(-)	(1.7%)	(2.3%)	(-)	(0.87%)	(0.22%)	(21%)	(0.12%)	(12%)	(26%)	(1.2%)	(31%)	(0.085%)	(2.6%)	(-)	(1.4%)	(0.12%)	(-)
	<1.8	970	820	<1.8	<1.8	<1.8	34000	58	6300	810	1700	63000	5.2	330	< 0.36	7800	23	< 0.24
13	(-)	(0.84%)	(0.71%)	(-)	(-)	(-)	(29%)	(0.050%)	(5.4%)	(0.70%)	(1.5%)	(54%)	(0.0045%)	(0.28%)	(-)	(6.7%)	(0.020%)	(-)
D	<1.8	82	240	<1.8	48	34	30000	34	73	5000	110	28000	1.6	320	< 0.36	610	5.8	<0.24
D4	(-)	(0.13%)	(0.37%)	(-)	(0.074%)	(0.053%)	(46%)	(0.053%)	(0.11%)	(7.7%)	(0.17%)	(43%)	(0.0025%)	(0.50%)	(-)	(0.94%)	(0.0090%)	(-)
D5	<1.8	170	320	<1.8	<1.8	<1.8	3500	49	760	710	730	590	2.6	180	< 0.36	780	16	<0.24
D5	(-)	(2.2%)	(4.1%)	(-)	(-)	(-)	(45%)	(0.63%)	(9.7%)	(9.1%)	(9.3%)	(7.6%)	(0.033%)	(2.3%)	(-)	(10%)	(0.20%)	(-)
D/	<1.8	32	78	<1.8	31	56	3300	42	170	1000	1600	660	11	420	< 0.36	260	32	<0.24
Do	(-)	(0.42%)	(1.0%)	(-)	(0.40%)	(0.73%)	(43%)	(0.55%)	(2.2%)	(13%)	(21%)	(8.6%)	(0.14%)	(5.5%)	(-)	(3.4%)	(0.42%)	(-)
107	25	130	130	<1.8	<1.8	94	8300	40	150	1600	87	4500	7.4	400	< 0.36	860	29	<0.24
D/	(0.15%)	(0.79%)	(0.79%)	(-)	(-)	(0.57%)	(51%)	(0.24%)	(0.92%)	(9.8%)	(0.53%)	(28%)	(0.045%)	(2.4%)	(-)	(5.3%)	(0.18%)	(-)
100	<1.8	61	280	<1.8	<1.8	<1.8	33000	420	2700	2100	160	440	< 0.28	1100	<0.36	560	98	<0.24
Do	(-)	(0.15%)	(0.68%)	(-)	(-)	(-)	(81%)	(1.0%)	(6.6%)	(5.1%)	(0.39%)	(1.1%)	(-)	(2.7%)	(-)	(1.4%)	(0.24%)	(-)
D0	<1.8	160	280	<1.8	100	13	310000	34	17000	790	460	560	7.7	890	<0.36	630	27	<0.24
9	(-)	(0.048%)	(0.085%)	(-)	(0.030%)	(0.0039%)	(94%)	(0.010%)	(5.1%)	(0.24%)	(0.14%)	(0.17%)	(0.0023%)	(0.27%)	(-)	(0.19%)	(0.0082%)	(-)
D10	<1.8	86	200	<1.8	<1.8	16	1800000	28	550	740	510	4300	29	210	<0.36	820	19	<0.24
D10	(-)	(0.0048%)	(0.011%)	(-)	(-)	(0.00089%)	(100%)	(0.0015%)	(0.030%)	(0.041%)	(0.028%)	(0.24%)	(0.0016%)	(0.012%)	(-)	(0.045%)	(0.0011%)	(-)

表 19 Concentrations (ng g⁻¹) and composition (%) of phosphate flame retardants in indoor dust collected from Japanese dwellings in 2015-2019.

D11	<0.8	64	480	<2.1	17	28	32000	70	910	91000	680	730	83	280	<7.7	3300	<26	< 0.8
ы	(-)	(0.049%)	(0.37%)	(-)	(0.013%)	(0.022%)	(25%)	(0.054%)	(0.70%)	(70%)	(0.52%)	(0.56%)	(0.064%)	(0.22%)	(-)	(2.5%)	(-)	(-)
D12	<2.3	330	530	<6.3	380	590	390000	32	20000	3600	1900	3300	42	150	<23	3900	79	<2.3
D12	(-)	(0.078%)	(0.12%)	(-)	(0.089%)	(0.14%)	(92%)	(0.0075%)	(4.7%)	(0.85%)	(0.45%)	(0.78%)	(0.010%)	(0.035%)	(-)	(0.92%)	(0.019%)	(-)
D12	<0.7	120	740	<1.9	47	68	55000	35	12000	1300	6700	220	11	460	<7	2700	37	<0.7
D13	(-)	(0.15%)	(0.93%)	(-)	(0.059%)	(0.086%)	(69%)	(0.044%)	(15%)	(1.6%)	(8.4%)	(0.28%)	(0.014%)	(0.58%)	(-)	(3.4%)	(0.047%)	(-)
D14	<12	510	280	<33	<98	<82	170000	73	1500	740	5100	5100	<41	330	<120	1000	<410	<12
D14	(-)	(0.28%)	(0.15%)	(-)	(-)	(-)	(92%)	(0.040%)	(0.81%)	(0.40%)	(2.8%)	(2.8%)	(-)	(0.18%)	(-)	(0.54%)	(-)	(-)
D15	<2.6	120	400	10	52	100	450000	89	370	6500	260	290	26	1000	<26	2600	530	<2.6
D15	(-)	(0.026%)	(0.087%)	(0.0022%)	(0.011%)	(0.022%)	(97%)	(0.019%)	(0.080%)	(1.4%)	(0.056%)	(0.063%)	(0.0056%)	(0.22%)	(-)	(0.56%)	(0.11%)	(-)
DIC	<2.9	2200	580	<7.9	<23	29	12000	45	14000	1800	1900	190000	80	380	<29	33000	<97	<2.9
D16	(-)	(0.86%)	(0.23%)	(-)	(-)	(0.011%)	(4.7%)	(0.018%)	(5.5%)	(0.70%)	(0.74%)	(74%)	(0.031%)	(0.15%)	(-)	(13%)	(-)	(-)
D17	<5.2	200	1600	<14	160	37	91000	49	2200	3900	770	5400	30	350	<52	1500	<170	<5.2
D17	(-)	(0.19%)	(1.5%)	(-)	(0.15%)	(0.035%)	(85%)	(0.046%)	(2.1%)	(3.6%)	(0.72%)	(5.0%)	(0.028%)	(0.33%)	(-)	(1.4%)	(-)	(-)
D10	<3.9	1200	2000	<8.9	<31	56	240000	840	2900	4200	1800	1900	120	710	<39	2400	2900	<3.9
D18	(-)	(0.46%)	(0.77%)	(-)	(-)	(0.021%)	(92%)	(0.32%)	(1.1%)	(1.6%)	(0.69%)	(0.73%)	(0.046%)	(0.27%)	(-)	(0.92%)	(1.1%)	(-)
D10	<5	91	1100	<11	<40	100	6400	230	540	7700	290	5600	96	550	<50	1300	<170	<5
DI9	(-)	(0.38%)	(4.6%)	(-)	(-)	(0.42%)	(27%)	(0.96%)	(2.3%)	(32%)	(1.2%)	(23%)	(0.40%)	(2.3%)	(-)	(5.4%)	(-)	(-)
D20	15	45	1300	<5.2	84	62	24000	160	340	580	640	640	50	3300	<23	960	830	<2.3
D20	(0.045%)	(0.14%)	(3.9%)	(-)	(0.25%)	(0.19%)	(73%)	(0.48%)	(1.0%)	(1.8%)	(1.9%)	(1.9%)	(0.15%)	(10%)	(-)	(2.9%)	(2.5%)	(-)
DAI	<1.5	320	310	<3.3	100	92	12000	44	950	13000	710	<15	49	180	<15	2400	<49	<1.5
D21	(-)	(1.1%)	(1.0%)	(-)	(0.33%)	(0.31%)	(40%)	(0.15%)	(3.2%)	(43%)	(2.4%)	(-)	(0.16%)	(0.60%)	(-)	(8.0%)	(-)	(-)
D22	<3.7	1700	1100	<8.3	<29	<24	14000	71	13000	2700	2000	240000	40	430	<37	36000	<120	<3.7

	(-)	(0.55%)	(0.35%)	(-)	(-)	(-)	(4.5%)	(0.023%)	(4.2%)	(0.87%)	(0.64%)	(77%)	(0.013%)	(0.14%)	(-)	(12%)	(-)	(-)
D22	<2.2	55	900	<4.9	31	65	75000	74	5700	1000	22000	<22	45	420	<22	5000	<73	<2.2
D25	(-)	(0.050%)	(0.82%)	(-)	(0.028%)	(0.059%)	(68%)	(0.067%)	(5.2%)	(0.91%)	(20%)	(-)	(0.041%)	(0.38%)	(-)	(4.5%)	(-)	(-)
D24	<2.1	59	770	<7.1	59	68	13000	66	90000	160000	180	800	37	140	<21	1100	<21	<7.1
D24	(-)	(0.022%)	(0.29%)	(-)	(0.022%)	(0.026%)	(4.9%)	(0.025%)	(34%)	(60%)	(0.068%)	(0.30%)	(0.014%)	(0.053%)	(-)	(0.41%)	(-)	(-)
D25	<6.3	170	350	<21	56	66	46000	290	540	11000	390	1500	<21	240	<63	920	<63	<21
D25	(-)	(0.28%)	(0.57%)	(-)	(0.091%)	(0.11%)	(75%)	(0.47%)	(0.88%)	(18%)	(0.63%)	(2.4%)	(-)	(0.39%)	(-)	(1.5%)	(-)	(-)
D26	<4	81	980	<13	<32	<27	2600	200	310	1800	560	440	31	580	<40	790	1800	<13
1020	(-)	(0.80%)	(9.6%)	(-)	(-)	(-)	(26%)	(2.0%)	(3.0%)	(18%)	(5.5%)	(4.3%)	(0.30%)	(5.7%)	(-)	(7.8%)	(18%)	(-)
D27	<14	280	740	<48	400	<96	80000	1600	5700	3900	730	950	110	180	<140	930	850	<48
D27	(-)	(0.29%)	(0.77%)	(-)	(0.42%)	(-)	(83%)	(1.7%)	(5.9%)	(4.0%)	(0.76%)	(0.99%)	(0.11%)	(0.19%)	(-)	(0.97%)	(0.88%)	(-)
D28	<6.6	890	310	<22	<52	<44	480000	340	2000	1700	390	520	150	110	<66	730	190	<22
D28	(-)	(0.18%)	(0.064%)	(-)	(-)	(-)	(98%)	(0.070%)	(0.41%)	(0.35%)	(0.080%)	(0.11%)	(0.031%)	(0.023%)	(-)	(0.15%)	(0.039%)	(-)
D29	<2.6	310	210	<8.8	<21	<18	73000	130	1100	2300	1100	2000	17	270	<26	1600	170	<8.8
D27	(-)	(0.38%)	(0.26%)	(-)	(-)	(-)	(89%)	(0.16%)	(1.3%)	(2.8%)	(1.3%)	(2.4%)	(0.021%)	(0.33%)	(-)	(1.9%)	(0.21%)	(-)

						201	1, (115,5	<i>.</i>						
	D1	1	D	12	D1	3	D	14	D	15	D	16	D	17
	Summer	Winter	Summer	Winter	Summer	Winter	Summer	Winter	Summer	Winter	Summer	Winter	Summer	Winter
BzlDOPO	< 0.8	<1.1	<2.3	<1.6	< 0.7	< 0.8	<12	<5.6	<2.6	<14	<2.9	< 0.8	<5.2	16
CsDPhP	64	180	330	310	120	190	510	840	120	<48	2200	3900	200	330
EHDPhP	480	400	530	510	740	660	280	790	400	170	580	1300	1600	1400
NDPhP	<2.1	<4.3	<6.3	<6.4	<1.9	<3.2	<33	<23	10	<59	<7.9	<3.2	<14	<20
PMMMP	17	85	380	420	47	39	<98	92	52	<120	<23	21	160	110
di-PMMMP	28	120	590	490	68	57	<82	180	100	<96	29	33	37	170
TBOEP	32,000	33,000	390,000	340,000	55,000	71,000	170,000	28,000	450,000	280,000	12,000	13,000	91,000	130,000
TBP, TIBP	70	98	32	86	35	38	73	99	89	<50	45	33	49	52
TCEP	910	1200	20,000	25,000	12,000	30,000	1500	48,000	370	<140	14,000	16,000	2200	4600
TCPP	91,000	53,000	3600	10,000	1300	1500	740	2500	6500	2800	1800	2900	3900	3100
TCsP	680	910	1900	900	6700	5400	5100	5900	260	1300	1900	2300	770	1100
TDCPP	730	2000	3300	3300	220	760	5100	620,000	290	1700	190,000	340,000	5400	8900
TEP	83	73	42	110	11	22	<41	100	26	<48	80	20	30	34
TEHP	280	270	150	380	460	410	330	1500	1000	1800	380	650	350	460
TMP	<7.7	<11	<23	<16	<7	<7.9	<120	<56	<26	<140	<29	<7.7	<52	<49
TPhP	3300	5100	3900	2800	2700	6500	1000	1900	2600	1700	33,000	50,000	1500	1900
TPhPO	<26	86	79	<53	37	36	<410	<190	530	<480	<97	47	<170	<160
TPP	< 0.8	<1.1	<2.3	<1.6	<0.7	< 0.8	<12	<5.6	<2.6	<14	<2.9	< 0.8	<5.2	<4.9

表 20 Concentrations of phosphate flame retardants in indoor dust collected from Japanese dwellings in summer and winter seasons of $2017 (ng g^{-1})$.

		住宅1	住宅 2	住宅3	住宅4
ゲルタルマルジレド	ppb_{v}	0.0881	0.0835	0.0503	0.0325
	$\mu g/m^3$	0.355	0.337	0.203	0.132
グリオキサール	ppb_{v}	< 0.00150	< 0.00150	< 0.00150	< 0.00150
	$\mu g/m^3$	< 0.00351	< 0.00351	< 0.00351	< 0.00351
ホルムマルデヒド	ppb_{v}	177	85.8	187	138
	$\mu g/m^3$	214	104	227	168
マセトマルディド	ppb_{v}	90.4	10.1	4.48	9.92
	$\mu g/m^3$	160	17.9	7.94	17.6
775	$ppb_{v} \\$	97.2	5.86	3.54	4.02
	$\mu g/m^3$	228	13.7	8.30	9.39

表 21 4ヶ所の住宅における測定対象物質の濃度

	Control 230 ± 14				mg	g/kg	1	mg/	ƙg	10 mg/kg		/kg
Final body weights (g)	230	±	14	228	±	6	227	±	10	230	±	6
Organ weights												
Absolute weights (g	g)											
Lungs	1.02	±	0.05	0.96	±	0.06	0.99	±	0.09	0.99	±	0.05
Heart	0.88	±	0.03	0.88	±	0.05	0.92	±	0.07	0.85	±	0.05
Spleen	0.52	±	0.08	0.51	±	0.05	0.56	±	0.10	0.48	±	0.03
Liver	7.44	±	0.40	7.62	±	0.60	7.53	±	0.63	7.83	±	0.53
Kidneys	1.77	±	0.11	1.80	±	0.06	1.78	±	0.08	1.77	±	0.05
Relative weights (g	/100g ł	o.w.)									
Lungs	0.44	±	0.01	0.42	±	0.03	0.43	±	0.02	0.43	±	0.02
Heart	0.38	±	0.02	0.39	±	0.02	0.40	±	0.01	0.37	±	0.03
Spleen	0.22	±	0.03	0.22	±	0.02	0.25	±	0.04	0.21	±	0.02
Liver	3.24	±	0.09	3.34	±	0.19	3.31	±	0.14	3.40	±	0.18
Kidneys	0.77	±	0.02	0.79	±	0.02	0.78	±	0.02	0.77	±	0.03

表22 Final body weight and organ weight data for male SD rats treated with PMMMP for 1 week.

	$\frac{\text{Control}}{154 \pm 5}$				mg	g/kg	1 r	ng/	kg	10 mg/kg		/kg
Final body weights (g)	154	±	5	163	±	10	155	±	7	159	±	13
Organ weights												
Absolute weights (g)												
Lungs	0.78	±	0.04	0.83	±	0.06	0.78	±	0.04	0.80	±	0.05
Heart	0.66	±	0.05	0.71	±	0.06	0.65	±	0.04	0.67	±	0.01
Spleen	0.32	±	0.01	0.38	±	0.03	0.34	±	0.03	0.37	±	0.02
Liver	4.65	±	0.34	5.22	±	0.46	4.71	±	0.13	4.91	±	0.43
Kidneys	1.21	±	0.05	1.29	±	0.10	1.24	±	0.06	1.20	±	0.10
Relative weights (g	/100g l	5.W.)									
Lungs	0.51	±	0.02	0.51	±	0.02	0.50	±	0.04	0.50	±	0.02
Heart	0.43	±	0.03	0.43	±	0.02	0.43	±	0.04	0.42	±	0.03
Spleen	0.21	±	0.01	0.23	±	0.02	0.22	±	0.03	0.24	±	0.03
Liver	3.03	±	0.21	3.19	±	0.21	3.04	±	0.08	3.09	±	0.14
Kidneys	0.79	±	0.01	0.79	±	0.03	0.80	±	0.05	0.75	±	0.05

表23 Final body weight and organ weight data for female SD rats treated with PMMMP for 1 week.

	Control) 35.8 ± 1.9			100	mg/	/kg/day	300 1	ng/l	kg/day	1000	mg	ng/kg/day	
Final body weights (g)	35.8	±	1.9	35.7	±	1.8	35.4	±	2.3	34.7	±	3.2	
Organ weights													
Absolute weigh	ts (g)												
Brain	0.49	±	0.03	0.50	±	0.01	0.48	±	0.02	0.48	±	0.03	
Lungs	0.18	±	0.03	0.17	±	0.02	0.19	±	0.03	0.19	±	0.02	
Heart	0.17	±	0.02	0.17	±	0.01	0.15	±	0.01	0.16	±	0.02	
Thymus	0.04	±	0.01	0.05	±	0.01	0.04	±	0.01	0.04	±	0.00	
Liver	1.39	±	0.14	1.48	±	0.07	1.34	±	0.11	1.30	±	0.15	
Kidneys	0.51	±	0.07	0.47	±	0.05	0.48	±	0.08	0.51	±	0.09	
Spleen	0.10	±	0.02	0.09	±	0.01	0.08	±	0.01	0.09	±	0.01	
Adrenals	0.0030	±	0.0005	0.0040	±	0.0009 *	0.0043	±	0.0006 *	0.0050	±	0.0004 **	
Testes	0.25	±	0.03	0.22	±	0.02	0.25	±	0.04	0.23	±	0.01	
				Relative	weig	ghts (g/100g	g b.w.)						
Brain	1.36	±	0.07	1.40	±	0.09	1.35	±	0.12	1.39	±	0.10	
Lungs	0.49	±	0.08	0.48	±	0.06	0.53	±	0.06	0.56	±	0.03	
Heart	0.47	±	0.05	0.49	±	0.03	0.44	±	0.02	0.45	±	0.03	
Thymus	0.12	±	0.02	0.13	±	0.02	0.13	±	0.02	0.10	±	0.02	
Liver	3.87	±	0.32	4.14	±	0.13	3.79	±	0.18	3.75	±	0.15	
Kidneys	1.41	±	0.16	1.32	±	0.18	1.36	±	0.20	1.46	±	0.14	
Spleen	0.27	±	0.04	0.25	±	0.03	0.23	±	0.03	0.25	±	0.02	
Adrenals	0.0084	±	0.0016	0.0113	±	0.003	0.0122	±	0.0019 *	0.0145	±	0.0011 **	
Testes	0.69	±	0.04	0.25	±	0.03	0.23	±	0.03	0.25	±	0.02	

表24 Final body weight and organ weight data for male CD1 mice treated with PMMMP for 4 weeks.

*, **: Values are significantly different from control at p < 0.05 and 0.01, respectively.

Item		Control	100 mg/kg	300 mg/kg	1000 mg/kg
TP	(g/dL)	4.7 ± 0.2	4.5 ± 0.2	4.7 ± 0.3	4.6 ± 0.1
A/G		1.5 ± 0.0	1.5 ± 0.2	$1.7 \pm 0.2 *$	1.6 ± 0.1
Alb	(g/dL)	2.8 ± 0.1	2.7 ± 0.2	3.0 ± 0.2	2.8 ± 0.1
T. Bil	(mg/dL)	0.132 ± 0.013	0.120 ± 0.016	0.122 ± 0.022	0.140 ± 0.014
Glu	(mg/dL)	111 ± 21	171 ± 31**	149 ± 33	134 ± 21
TG	(mg/dL)	54 ± 9	71 ± 24	78 ± 25	49 ± 12
T. Cho	(mg/dL)	146 ± 29	127 ± 12	148 ± 21	144 ± 16
PL	(mg/dL)	236 ± 32	204 ± 17	233 ± 31	219 ± 20
BUN	(mg/dL)	30.5 ± 4.6	31.2 ± 5.8	29.1 ± 4.8	28.8 ± 2.3
CRN	(mg/dL)	0.10 ± 0.02	0.09 ± 0.02	0.10 ± 0.02	0.08 ± 0.03
Ca	(mg/dL)	9.1 ± 0.1	9.1 ± 0.2	9.3 ± 0.2	9.2 ± 0.4
Р	(mg/dL)	5.7 ± 0.7	6.3 ± 0.5	$7.4 \pm 0.5^{**}$	$7.5 \pm 0.4^{**}$
Na	(mEq/dL)	152.6 ± 0.9	153.6 ± 0.9	151.2 ± 1.5	152.0 ± 0.7
K	(mEq/dL)	4.7 ± 0.1	4.2 ± 0.5	4.6 ± 0.4	5.1 ± 0.6
Cl	(mEq/dL)	110.6 ± 1.7	113.0 ± 1.6	110.0 ± 3.7	113.4 ± 1.8
AST	(IU/L)	51 ± 4	48 ± 5	48 ± 7	44 ± 3
ALT	(IU/L)	24 ± 5	22 ± 6	22 ± 5	23 ± 5
ALP	(IU/L)	216 ± 46	244 ± 38	260 ± 52	187 ± 29
γ-GT	(IU/L)	<3	<3	<3	<3

表25 Serum biochemistry for male CD1 mice treated with PMMMP for 4 weeks.

*, **: Values are significantly different from control at p < 0.05 and 0.01, respectively.

TP, total protein; A/G, albumin/globulin ratio; Alb, albumin; T. Bil, total bilirubin; Glu, glucose; TG, triglyceride; T. Cho, total cholesterol; PL, phospho lipid; BUN, blood urea nitrogen; CRN, creatinine; Ca, calcium; P, inorganic phosphorus; Na, sodium; K, potassium; Cl, chloride; AST, aspartate aminotransferase; ALT, alanine aminotransferase; ALP, alkaline phosphatase; γ-GT, γ-glutamyl aminotransferase.

Item		Control	100 mg/kg	300 mg/kg	1000 mg/kg
RBC	(10 ⁶ /µL)	8.69 ± 0.62	8.41 ± 0.34	9.10 ± 0.37	9.32 ± 0.12
HGB	(g/dL)	14.2 ± 1.3	13.2 ± 0.5	14.3 ± 0.5	14.8 ± 0.3
HCT	(%)	43.6 ± 3.9	40.8 ± 1.1	44.4 ± 1.4	45.3 ± 0.8
MCV	(fL)	50.0 ± 1.2	48.6 ± 1.5	48.8 ± 1.6	48.6 ± 1.3
MCH	(pg)	16.3 ± 0.6	15.7 ± 0.5	15.7 ± 0.5	15.8 ± 0.2
MCHC	(g/dL)	32.5 ± 0.6	32.4 ± 0.7	32.2 ± 0.7	32.6 ± 1.1
PLT	$(10^{3}/\mu L)$	1018.8 ± 86.7	1044.8 ± 105.1	1103.0 ± 56.9	1194.0 ± 45.9 *
WBC	$(10^{3}/\mu L)$	4.43 ± 1.85	3.57 ± 0.99	3.45 ± 0.81	3.04 ± 0.46
Differential c	ell counts				
Neutrophils	(%)	20.7 ± 3.2	25.1 ± 4.9	23.9 ± 9.0	24.4 ± 2.3
Eosinophils	(%)	3.8 ± 1.4	3.9 ± 1.3	3.1 ± 0.9	2.9 ± 1.0
Basophils	(%)	0.2 ± 0.3	0.3 ± 0.3	0.2 ± 0.2	0.1 ± 0.2
Lymphocytes	(%)	75.0 ± 3.6	70.4 ± 5.9	72.4 ± 8.3	72.3 ± 3.4
Monocytes	(%)	0.4 ± 0.1	0.3 ± 0.1	0.3 ± 0.2	0.3 ± 0.3

表26 Blood test for male CD1 mice treated with PMMMP for 4 weeks.

表27 曝露経路 (吸入曝露)スクリーニング評価結果(A,B)

			4	有害性ラン	ク			B	暴露性ラン・	ク		
CAS_RN	物質名	用途 文献情報	吸入 有害性 ランク	経口 有害性 ランク	経皮 有害性 ランク	①曝露性ラ ンク(室内空 気→吸入)	②曝露性ラ ンク(室内空 気→経皮)	③曝露性ラ ンク(水分含 有飲食物→ 経口)	 ④曝露性ランク(油含有 食品→経 口) 	⑤曝露性ランク(ダストの吸入曝露)	⑥曝露性ラ ンク(ダスト のHand-to- mouth)	 ⑦曝露性ランク(製品に 直接接触の 経皮曝露)
78-87-5	1.2-ジクロロプロパン	溶剂等	A	В	A	В	E	E	D	E	E	С
79-00-5	1.1.2-トリクロロエタン	油脂・ワックス・天然樹脂溶剤	A	A	A	В	E	D	В	E	E	D
80-62-6	メチル=メタクリラート	アクリルアミド、アクリル酸エステル、メタ クリル酸エステル、酢酸ビニル、スチレン など他のモノマーとの共重合物は、黄変 性の小ない、米沢、利益性、新生活体性に	A	С	A	В	E	D	D	E	E	с
91-08-7	2-メチル-1、3-フェニレン=ジイソシアナート	油変性ポリウレタン、湿気硬化ポリウレタ ン、ブロック型ポリウレタン、ウレタンブレ ポリマーなどの変性用原料およびポリイ ソシアネート硬化剤の原料に使用される。	A	A	A	в	D	D	в	E	E	E
101-68-8	ビス(4ーイソシアナトフェニル)メタン	油変性ポリウレタン、湿気硬化ポリウレタ ン、ブロック型ポリウレタン、ウレタンブレ ポリマーなどの変性用原料およびポリイ ソシアネート・使化剤の原料に使用され る。、接着剤・塗料・断熱材(ウレタン樹	A	в	A	в	С	С	В	E	E	с
103-11-7	アクリル酸2-エチルヘキシル	アクリル酸エステル、メタクリル酸エステ ル、酢酸ビニル、スチレンなど他のモノ マーとの共重合物はアクリル樹脂として、 光沢、硬度、密着性、耐候性、耐熱性に 優れる。、アクリル系接着剤・塗料、アクリ	A	D	A	В	E	E	С	E	E	с
106-89-8	2-(クロロメチル)オキシラン	エポキシ樹脂塗料、塗料・接着剤、床材 のコーティングなどに用いられるエポキシ 樹脂の原料、	A	A	A	В	E	С	D	E	E	С
106-93-4	1, 2-ジプロモエタン	燻蒸剤	A	A	A	В	E	E	В	C	E	E
107-02-8	アクロレイン	室内検出物質、アルテヒド	A	С	A	В	#VALUE!	D	E	#VALUE!	E	#VALUE!
107-15-3	エチレンジアミン	常温硬化型防食塗料原料、エポキシ樹脂 硬化剤など、接着剤樹脂の架橋剤	A	D	A	в	A	A	A	E	E	С
109-86-4	2-メトキシエタノール	樹脂溶解剤、ラッカー、水性塗料の可溶 化剤、粘土調整剤、シンナー、塗料、イン キ、ワックスの溶剤、溶剤形・エマルション 形接着剤	A	в	A	в	D	A	С	E	E	с
110-00-9	フラン	溶剤、プラスティック安定剤などの製造原 料	A	A	A	В	#VALUE!	В	в	E	E	С
110-85-0	ピペラジン	常温硬化型防食塗料原料	A	×	A	B	В	A	A	E	E	С
141-32-2	ブタンー1ーイル=アクリラート	アクリル酸エステル、メタクリル酸エステル、酢酸ビニル、スチレンなど他のモノマーとの共産合物はアクリル樹脂として、	A	D	A	в	E	D	С	E	E	С
1314-41-6	四酸化三鉛	防錆、塗料(堅練ペイント、さび止めペイ ント用)、管球ガラス(蛍光灯、真空管、TV ブラウン管などの放射性防止剤)、光学ガ ラス、一般ガラス、陶磁器、ほうろう、畜電 池、顔料、ゴム、合成樹脂、電子材料、	A	A	A	в	#VALUE!	#VALUE!	#VALUE!	E	E	#VALUE!
4098-71-9	3ーイソシアナトメチルー3, 5, 5ートリメチルシク ロヘキシル=イソシアナート	無黄変タイプの湿気硬化型ポリウレタン、 ブロック型ポリウレタン、ウレタンブレポリ マーなどの変性用原料および無黄変ポリ イソシアーネート硬化剤の原料に使用さ れる。接着剤樹脂の架構剤。	A	A	A	В	E	D	В	E	E	E
7782-50-5	二塩素	殺菌剤、防かび剤、防汚剤、漂白剤、農 薬などの合成中間体	A	D	A	В	#VALUE!	E	E	E	E	×
8001-58-9	石炭クレオソート	木材防腐剤、殺菌剤、防かび剤、防汚 剤、殺虫剤、防虫剤、合成中間体	A	A	А	В	#VALUE!	#VALUE!	#VALUE!	E	E	#VALUE!
26471-62-5	メチルー1、3ーフェニレン=ジイソシアナート	油変性ポリウレタン、湿気硬化ポリウレタ ン、ブロック型ポリウレタン、ウレタンブレ ポリマーなどの変性用原料およびポリイ ソシアネート硬化剤の原料に使用され る。、接着剤・塗料・断熱材(ウレタン樹 脂)の原料、硬化剤。	A	A	A	в	D	D	В	E	E	с

表28 曝露経路 (吸入曝露)スクリーニング評価結果(B,A)

			有害性ランク 吸入 経口 経皮					ß	暴露性ラン	ל		
CAS_RN	物質名	用途 文献情報	吸入 有害性 ランク	経口 有害性 ランク	経皮 有害性 ランク	①曝露性ランク(室内空気→吸入)	 ②曝露性ランク(室内空気→経皮) 	③曝露性ラ ンク(水分含 有飲食物→ 経口)	 ④曝露性ランク(油含有 食品→経 口) 	⑤曝露性ラ ンク(ダスト の吸入曝 露)	⑥曝露性ラ ンク(ダスト のHand-to- mouth)	 ⑦曝露性ランク(製品に 直接接触の 経皮曝露)
67-66-3	クロロホルム	水道水中のトリハロメタン、塗料・インキ の溶剤、ゴムやロウの溶剤、フッ素系溶 媒、	в	В	в	A	#VALUE!	A	A	D	E	с
71-43-2	マンゼン	塗料や農薬の溶剤、合成樹脂(ポリスチ レン、塩化ビニル樹脂、ポリエステル)・防 虫剤(パラジクロロベンゼン)の合成原料	В	A	A	A	E	D	с	D	E	с
75-09-2	ジクロロメタン	ペイント剥離剤、塗料の剥離剤、溶剤等、	В	В	В	A	D	С	С	С	E	в
79-01-6	1.1.2-トリクロロエテン	溶剤等、生ゴム、塗料、油脂の溶剤 皮 蒸の洗浄剤	В	в	в	A	E	E	С	D	E	С
84-74-2	ジブタンー1ーイル=フタラート	1 2001年初、 可塑剤、ラッカー、接着剤、レザー、殺虫 剤の製造など、壁紙、床材などに使用される軟質塩化ビニル樹脂系の可塑剤、接着剤・塗料・インとの可別剤	в	в	в	A	в	в	A	E	E	в
85-68-7	' ペンジル=ブタン-1-イル=フタラート	可塑剤、床壁用タイル、塗料用、ペースト 用、人口皮革・室内装飾品用、壁紙、床 材などに使用される軟質塩化ビニル樹脂 系の可塑剤、接着剤・塗料・インキの可塑 利	В	в	в	A	с	в	A	E	E	в
100-41-4	エチルベンゼン	接着剤、塗料、インキ、ワックス、防水剤 の溶剤	В	в	В	A	E	E	с	D	E	в
106-46-7	パラジクロロベンゼン	衣類等の防虫・トイレの芳香剤、衣類の 実中田	в	В	в	A	E	с	A	D	E	в
107-06-2	1,2-ジクロロエタン	塩化ビニルの合成原料、塗料、インキ、 ロックスの溶剤 漁料剥離剤 博義剤	в	А	A	A	D	D	в	D	E	в
107-13-1	アクリロニトリル	ビニル系、アクリル系の重合物の変性剤 として用いられ、塗膜の硬度、乾燥性、耐 薬品性の向上の効果がある。	в	A	A	A	E	с	D	D	E	с
108-05-4	ビニル=アセタート	乳化重合物は酢酸ビニル系のエマルショ ンペイントとして、比較的低コストの分野 で使用される。MMAとの溶液共重合物 は、瓦用塗料、コンクリート、建築用塗料 として広く用いられる。、木材、家具など、 接着剤(酢酸ビニル系、木工用ポンドな ドンの厚料	в	в	в	A	E	С	D	D	E	с
110-71-4	1, 2ージメトキシエタン	反応溶媒、テフロン等の樹脂溶解剤	В	В	В	A	С	А	В	D	E	С
115-86-6	トリフェニル=ホスファート	、可塑剤、難燃性可塑剤など、可塑剤、 難燃剤	В	С	в	A	С	в	A	E	E	в
117-81-7	ビス(2ーエチルヘキサンー1ーイル)=フタラート	可塑剤、シート、レザー、電線被覆材、 ペーストなど、壁紙、床材などに使用され る軟質塩化ビニル樹脂系の可塑剤、接着 剤・塗料・インキの可塑剤、接着剤の希釈 剤	В	в	в	A	D	С	A	D	E	в
126-73-8	リン酸トリーnーブチル	耐光性白色ラッカー、レザー用消泡剤な ど、接着剤・塗料・インキ・ワックスの添加 剤、	В	С	в	A	С	в	A	E	E	в
126-99-8	クロロプレン	クロロプレンゴム、ゴム系接着剤の原料	В	в	В	A	E	E	E	D	E	E
128-37-0	2, 6ージーtertープチルー4ーメチルフェノール	皮張り防止剤、ブラスチック酸化防止剤、 アルキルフェノール系防止剤で、天然ゴ ム、ジエン系合成ゴム、CR用。一般製 品、テラックス用として用いられる。有機ゴ ム華品(老化防止剤)	В	с	в	A	В	В	A	E	E	с
8003-34-7	ピレスリンおよびピレスロイド	防虫剤、防除剤、	В	Α	A	A	E	в	A	E	E	E
22248-79-9	リン酸(Z)-2-クロロ-1-(2, 4, 5-トリクロロ	シロアリ防除剤、防除剤、	В	А	A	A	#VALUE!	A	A	E	E	D
52645-53-1	3-フェノキシベンジル=3-(2,2-ジクロロビ	シロアリ防除剤、ダニ用燻蒸剤、防除剤、	В	В	A	A	С	С	А	D	E	D
64742-48-9	ナフテン系溶剤(芳香族含有ミネラルスプリット)	主として油性塗料、アルキド塗料、フェ ノール樹脂塗料及びシンナーなどに使用 する	В	В	В	А	#VALUE!	A	A	С	E	#VALUE!
80844-07-1	4-(4-エトキシフェニル)-4-メチル-1-(3	シロアリ駆除剤、防除剤、	В	В	В	A	A	A	A	D	E	D
116714-46-6	ノバルロン	シロアリ防除剤	В	×	В	A	#VALUE!	С	A	E	E	D
122453-73-0	4-フロモー2-(4-クロロフェニル)-1-エト	シロアリ駆除剤、シロアリ防除剤、	B	В	B	A	С	A	A	E	E	D
173584-44-6	メチル=(S)-7-クロロ-2-{(メトキシカルボ	コシロアリ防除剤、しろあり認定薬剤、	B	×	В	A	#VALUE!	A	A	E	E	×



図1 使用したパッシブサンプラー



図2 本研究で考慮している室内での曝露経路



図3 曝露性ランクの考え方



図4 曝露性ランクの決定方法の例(曝露経路 吸入曝露)



図 5 ハンディー掃除機を用いた ハウスダスト捕集





図6 エミッションセルの写真と概要図



図7 完全溶解法を用いた防炎カーテン抽出液のGC-MSのスキャン分析の結果

(a: curtain 15, b: curtain 17, c: curtain 21).



図 8a 完全溶解法を用いた防炎カーテン抽出液から検出された未知ピークの MS スペクトルライブラリ検索の結果

(curtain 15)



図 8b 完全溶解法を用いた防炎カーテン抽出液から検出された未知ピークの MS スペクトルライブラリ検索の結果

(curtain 17)



図 8c 完全溶解法を用いた防炎カーテン抽出液から検出された未知ピークの MS スペクトルライブラリ検索の結果

(curtain 21)



図9 完全溶解法を用いた防炎カーテン抽出液の LC-Orbitrap-MS による分析結果 (a: curtain 15, b: curtain 17, c: curtain 21).



図 10a 完全溶解法を用いた防炎カーテン抽出液の LC-Orbitrap-MS の

MS スペクトルデータ (curtain 15)



図 10b 完全溶解法を用いた防炎カーテン抽出液の LC-Orbitrap-MS の

MS スペクトルデータ (curtain 17)



図 10c 完全溶解法を用いた防炎カーテン抽出液の LC--Orbitrap-MS の

MS スペクトルデータ (curtain 21)





(a: PMMMP, b: NDPhP, c: BzlDOPO).




(PMMMP)



図 12b 候補物質の標準試薬の LC-Orbitrap-MS の MS スペクトルデータ

(NDPhP)



図 12c 候補物質の標準試薬の LC-Orbitrap-MS の MS スペクトルデータ

(BzlDOPO)





図14 防炎カーテン中有機リン系難燃剤(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 15 防炎カーテンからのリン酸トリス (1,3-ジクロロプロピル)の発生速度の 温度依存性 (カーテン 8)



図16 防炎カーテン中有機リン系難燃剤(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)



図 17 防炎カーテン中リン酸トリス(1,3-ジクロロ-2-プロピル)のハウスダスト への直接移行速度の温度依存性



図 18 日本の住宅のハウスダスト中の有機リン系難燃剤の濃度範囲

(2015-2019)



図 19 日本の住宅のハウスダスト中の有機リン系難燃剤濃度の夏期と冬期の比

較(2015-2019)

a) Adult



b) Toddler



図 20 ハウスダスト中の有機リン系難燃剤のリスク評価



図 21-2 住宅 2 における測定対象物質の濃度





🗵 22 Body weights of male and female SD rats treated with PMMMP for 1 week.



■23 Body weights (A), food consumption (B) and water consumption (C) of male CD1 mice treated with PMMMP for 4 weeks.



 $\boxtimes 24$ Bone marrow micronucleus assay in the mice treated with PMMMP or EMS. (A) Proportion
of micronucleated polychromatic erythrocytes (MNPCE). (B) Ratio of polychromatic erythrocytes.NCE, normochromatic erythrocytes. Data represent the mean \pm S.D. **, significantly different from
the control at p < 0.05.</td>



図25 本研究で高懸念(A,A)とスクリーニング評価された物質

化学物質情報入力シート

CAS_RN	50-00-0														
物質名	ホルムアルデヒド				入力箇所	選択箇所									
有害性情報															
吸入長期 基準值等 经口長期 基準值等															
[mg/m3]	出典	[mg/L]	出典												
0.01		0.1													
有害性情報															
発がん性確度分類(経路 ~)															70.10 / IIL
IARC	IARC ポイント	EU	EU ポイント	EPA	EPA ポイント	NTP	NTP ポイント	旧 労働省	旧 労働省 ポイント	ACGIH	ACGIH ポイント	産衛学会	産衛学会 ポイント	発がん性確 度 ポイント	光かん12 確度 有害ラン ク
なし	0	R45 Carc. Cat. 1	5	С	3	В	4	指定物質	3	A5	1	第2群B	4	5	A
大学社 编辑															
有者性情報	類(経路 ~))					生殖	書性確度(約	(路~)						
		CLP	CLP	変異原性	変異原性			CLP	CLP	生殖毒性	生殖毒性				
EU	EUポイント	ハザード 情報	ハザード 情報 ポイント	確度 ポイント	確度 有害ランク	EU	EU ポイント	ハザード 情報	ハザード 情報 ポイント	確度 ポイント	<u>確度</u> 有害ランク				
		なし	0	0	×			なし	0	0	×				
有害性情報															
		悉作性律度分别	朝(経路) CLP				愚作	性保度分别	(2월)晴,) CIP						
EU	EU ポイント	CLP ハザード 情報	ハザード 情報 ポイント	感作性 確度 ポイント	感作性 確度 有害ランク	EU	EU ポイント	CLP ハザード 情報	ハザード 情報 ポイント	感作性 確度 ポイント	感作性 確度 有害ランク				
		なし	0	0	×			なし	0	0	×				
有害性情報ラン・	7														
吸入確度	経口確度	経口確度	経口確度	経口確度	経口確度	経口確度									
情報ランク ポイン	(情報ランク ポイント	情報ランク ポイント	情報ランク ポイント	情報ランク ポイン	情報ランク ポイント	情報ランク ポイント									
ト(経路)	(経路)	(経路)	(経路)	ト(経路)	(経路)	(経路)									
5	5	5	5	5	5	5									
曝露性情報															
製品 使用量	含有率	蒸気圧	沸点	$\log P_{\rm OA}$	$\log P_{\rm OW}$	製品	皮膚透過 係数	無次元 ヘンリー 定数	土壌への 吸着係数	接触	分子量	主要用途	-		
[8]	[%]	[Torr]	[°C]	[-]	[-]	14.7137121824	log kp_b [m/h]	logH	logKd	7915					
kg以上	4		100	3	3.6	b	-1	-3	6	b	400	塗料			

図26 化学物質情報入力シート(入力例)

曝露経路 製品 室内空気 吸入曝露

評価結果出力	リシート			I									
CAS_RN 5	50-00-0												
物質名	ホルム	アルデヒト	*										
						1							
経路 有害性ラ	ンク(室内	空気、吸入)											
吸入 管理参考濃度 ランク	点数	吸入 確度情報 ランク	点数	吸入 有害性ランク ポイント	吸入 有害性 ランク								
В	4	Α	5	5	Α								
		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		制口店田	以能 ル	尚临岳昌	保众件	生 休山支	持				
経路 曝露性ラ	ンク(室内)	空気(吸入)		製品使用	形態 15	子初頁重 <u>ランク</u> +	揮先住 ランク	↔ 体内留 + 可能	性				
製品使用形態 ランク	点数	製品使用量 ランク	点数	含有率 ランク	点数	化学物質量 ランク	点数	揮発性等 ランク	点数	曝露経路移行 ランクポイント	体内蓄積 可能性	曝露 性 合計点	曝露性 ランク
b	2	b	2	с	3	b	2	b	2	6	2	8	Α
スクリーニ 経路 (室	ニング 許 内空気	平価結果 吸入)					経路 室内空気	(室P の吸入曝露の	内空気 ^{)結果}	、 吸入	()		
										有害性ランク			
:				-		Α	B	С	D	Е			
								Α	19	25	20	25	24
I				唱雷	В	18	20	20	22	26			
				◎◎ 性ラ	С	25	54	39	49	33			
-	上位		2 %				ンク	D	69	67	43	46	118
								Е	26	22	11	24	24

曝露経路 製品→室内空気→経皮曝露

経路 有害	性ランク	7(室内空気	経皮)													
吸入 管理参考濃度 ランク	点数	経口 管理参考濃度 ランク	点数	経口 確度情報 ランク	点数	経口 有害性ラ ンクポイ	経口 有害性 ランク									
В	4	В	4	Α	5	5	Α									
経路曝露	性ラング	7(室内空気	経皮)													
製品使用形態 ランク	点数	製品使用量 ランク	点数	含有率 ランク	点数	製品使用 量+含有 率ポイン	化学物質 量 ランク	点数	揮発性等 ランク	点数	皮膚透過 性 ランク	点数	曝露経路 移行ランク ポイント	体内蓄積可 能性ランクポ イント	暖露性合 計ポイント	● 加 ン
b	2	b	2	c	3	5	b	2	b	2	d	-1	5	1	6	F
入了了。 経路 (室内	空気絡	而未 【皮)							経路 室内空気	(室 の経皮曝露	内空 ^{の結果}	気経	译皮)		
	右害	性ランク	Α									А	B		D	F
										唱	Α	6	4	4	13	3.
	曝露	性ランク	В							露	В	21	6	14	10	3'
										性ラ	С	17	12	7	17	19
	上位		6%							シ	D	28	10	18	18	2'
										ク	Е	64	38	41	44	53

図27 評価結果の出力画面の例(ホルムアルデヒド、曝露経路)



図28 化学物質濃度とQEESIスコア(合計値)