

令和元年度厚生労働科学研究費補助金
(健康安全・危機管理対策総合研究事業)
分担研究報告書

4. 建材からハウスダストへの SVOC 移行・吸脱着

分担研究者 篠原 直秀 国立研究開発法人産業技術総合研究所 主任研究員

研究要旨

近年、OECD での議題として大きく取り上げられるなど、フタル酸エステル類へのハウスダスト等を介した経口暴露や接触による経皮暴露について、国際的にも関心が高まっている。しかしながら、フタル酸エステル類が建材や生活用品から室内空気やハウスダストへどの程度移行するのか、そしてハウスダストから気中への放散がどの程度かなどについては分かっていないことが多い。そのため、本研究では、PVC シートからのフタル酸ジエチルヘキシル (DEHP) の気中への放散とハウスダストへの移行、吸着したハウスダストから気中への放散を測定した。

ダストへの移行量は、気中への放散量より数倍から数千倍高かった。また、ダストの種類によって DEHP の移行量は大きく異なる可能性が示唆された。ダストからの累積放散量 (累積脱着量) は、経時的に増加したが、ダストに吸着している量と比べるとはるかに少なく、ダストへ吸着した DEHP は 1~2 週間程度ではほとんどが吸着したままであることが確認された。これらの結果から、DEHP が吸着したハウスダストは、吸入曝露へ大きく寄与せず、経口曝露への寄与が大きいことが示唆された。

A. 研究目的

フタル酸エステル類の建材等からハウスダストへの移行や空気中から浮遊粒子・壁面等への吸脱着については分かっていないことが多く、暴露推定モデルの構築において不確実性が大きい。そのため、実験室のコントロールされた条件下における放散や吸脱着に関わるパラメータの取得と室内における挙動モデルの構築が求められている。実験室におけるフタル酸エステル類の建材等からの放散量測定法は、世界中で開発が試みられているが、既存の方法は、実際の室内環境中の濃度と合わないことや平衡に達するまでに数か月の時間を要するなど、問題点が多い。本研究では、実験室におけるパッシブフラックスサンプラー試験により、

建材中のフタル酸エステル類の暴露媒体 (室内空気・ハウスダスト) への移行メカニズム・吸脱着メカニズムを明らかにすることを目的とした。

B. 研究方法

B.1 PFS の概要と分析方法

表面を電解研磨したステンレス製パッシブフラックスサンプラー (PFS; 図 4-1) に、エムポアディスク C18 オクタデシル disk (3M, USA) もしくは ENVI-18 DSK SPE Disk (シグマアルドリッチ, USA) を吸着剤として用いた。

吸着剤中もしくはダスト中の DEHP は、DEHP-d4 の入った 3 mL のジクロロメタンで抽出し、GC-MS (Agilent 5973-6890,

Agilent technology Inc., USA)で分析した。

検量線は、9 種混合フタル酸標準液を DEHP-d4 の入ったジクロロメタンで希釈し、0.05~10 µg/mL の濃度範囲で作成した。濃度が範囲外となった場合には 10~20 倍に希釈して分析した。

B.2 気中への放散とハウスダストへの移行

PVC シートから気中への放散とハウスダストへの移行については、JIS 試験用粉体 1 (15 種) の標準ハウスダストを用いて試験を行った。PVC シート上の気相拡散距離 (PFS の厚さ) は、0.9, 1.85, 2.75, 3.8, 5.75 mm とし、ハウスダスト設置の 1,3,7,14 日後にダストを回収した。180 µm の篩を通して 0.3, 1.0, 3.0, 12 mg/cm² でハウスダストを塩ビシート上に均一に撒き、試験を行った。

異なる粒子への移行量の違いを評価するために、ポリエチレン粒子 (CPMS; 比重 0.96; 径 1-10, 45-53, 90-106 µm) とソーダライムガラス粒子 (SLGMS; 比重 2.5; 径 1-38, 45-53, 90-106 µm) とコットンリント (日本産、米国産、ブラジル産、インド産) を用いた試験も実施した。拡散距離は 5.75 mm とし、ダスト設置の 1,3,7,14 日後にダストを回収した。ダストの設置量は、0.3, 1.0, 3.0, 12 mg/cm² とし、それぞれ、 $N=3$ で試験を行った (コットンリントは 0.3, mg/cm² のみ)。

B.3 吸着したハウスダストから気中への放散

PVC シートから JIS 試験用粉体 1 (15 種) の標準ハウスダストへ DEHP を移行

させた後、PVC シートを取り除き、ハウスダストから気中への放散 (ハウスダストからの脱着) を測定した。PVC シート上の気相拡散距離 (PFS の厚さ) は 5.75 mm (コットンリントについてのみ、静電気で付着することから拡散距離を倍程度に設定) とし、PVC シートを取り除いてから 1,3,7,14, 28 日後にダスト及び吸着 disk を回収した。それぞれ、 $N=2$ で試験を行った。

C. 研究結果および考察

C.1 気中への放散とハウスダストへの移行

PVC シートからハウスダストへの DEHP の移行量は、経時的に増加していたが、徐々に吸着が飽和に近づいて増加量は減少していた。また、PVC シート表面のダスト量が少ないほど、重量当たりのダストへの DEHP の移行量が大きかった。ダスト上の空気層の厚さによる違いはみられなかった。PVC シートの面積当たりの移行量は、粒子量が多いほど大きかったが、14 日後で 20~40 µg/cm² と、倍程度の違いしか見られなかった。

気中への放散量は、PVC シート上のダスト量が 3, 12 mg/cm² の場合には、ダストへの吸着のために 7 日後や 14 日後まで放散量が非常に小さかったが、ダスト量が 1, 0.3 mg/cm² の場合には、ダストがない場合と同様に線形の経時的な増加を示した。

ダストへの移行量は、ダスト設置後 1 日から 3 日では気中への放散量の数倍から数千倍高く、その後経過時間と共に差が小さくなった。これは、ダストへの吸着が飽和に近づき、気中への放散がダストのない時

に近づいたことによる。JIS15 ダストでダスト移行量/気中放散量の刑事的な減衰の傾向がみられていないのは、初期の気中放散量が定量限界以下であり定量下限の 1/2 で計算しているために過小評価となっているためと考えられる。

また、JIS 標準ハウスダストと比べて、ポリエチレン粒子及びソーダライムガラス粒子への重量当たりの DEHP 移行量は小さく、単位重量当たりの表面積が小さいことや材質による吸着しやすさなどに起因すると考えられる。

C.2 吸着したハウスダストから気中への放散

PVC シートを除いた後のハウスダスト中の DEHP 量は、28 日後までほとんど経時的な傾向は見られなかった。ばらつきが大きいのは、N=2 であることと、ダストの回収と再度の PFS 中への設置の際のロスや揮発によると思われる。また、ダスト上の拡散境界膜の厚さによる違いは見られなかった。気中放散量は、経時的な増加がみられた。また、拡散距離が長くなるに従い、放散量は小さくなっていた。ダストへの DEHP 吸着量と比べて、気中への放散量は 1% 程度と小さく、ダストに吸着した DEHP はほとんど気相へ出てこないことが確認された。

これらのことから、ダストへ吸着した DEHP からの再放散は小さく、吸入曝露への寄与は経口曝露への寄与と比べて大きくないことが示唆された。

D. まとめ

本研究では、PVC シートからダストへの DEHP の移行量や気中への放散量を測定した。また、PVC シートから DEHP が移行したダストからの DEHP 放散量 (DEHP 脱着量) について測定した。ダストへの移行量は、気中への放散量より数倍から数千倍高かった。また、ダストの種類によって DEHP の移行量は大きく異なる可能性が示唆された。ダストからの累積放散量 (累積脱着量) は、経時的に増加したが、ダストに吸着している量と比べるとはるかに少なく、ダストへ吸着した DEHP は吸入曝露へは大きく寄与せず、経口曝露への寄与が大きいことが示唆された。

E. 知的財産権の出願・登録状況 (予定含む)

予定なし

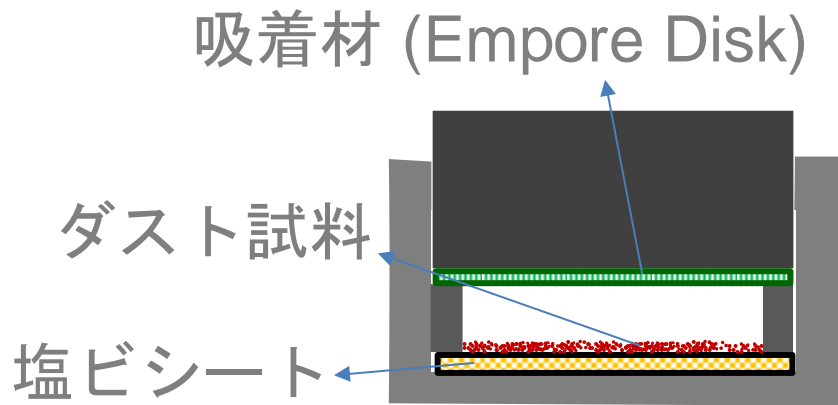
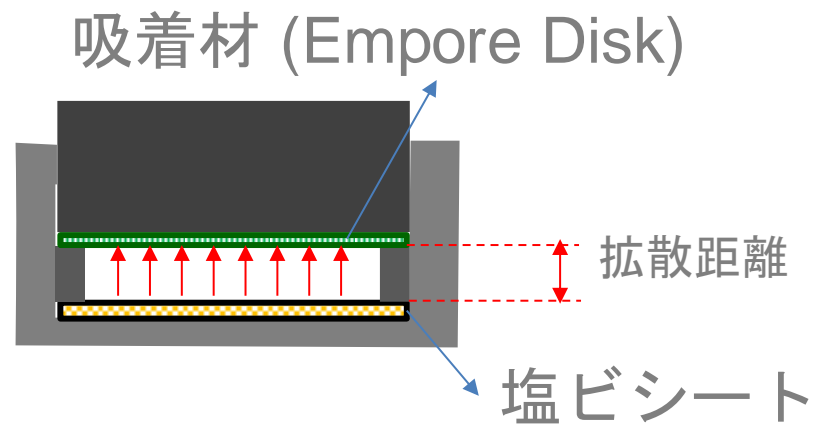


図 4-1 PFS の外観 (上図： 模式図 (ダストなし), 中図： 模式図 (ダストあり), 下図： 写真 (ダストなし))

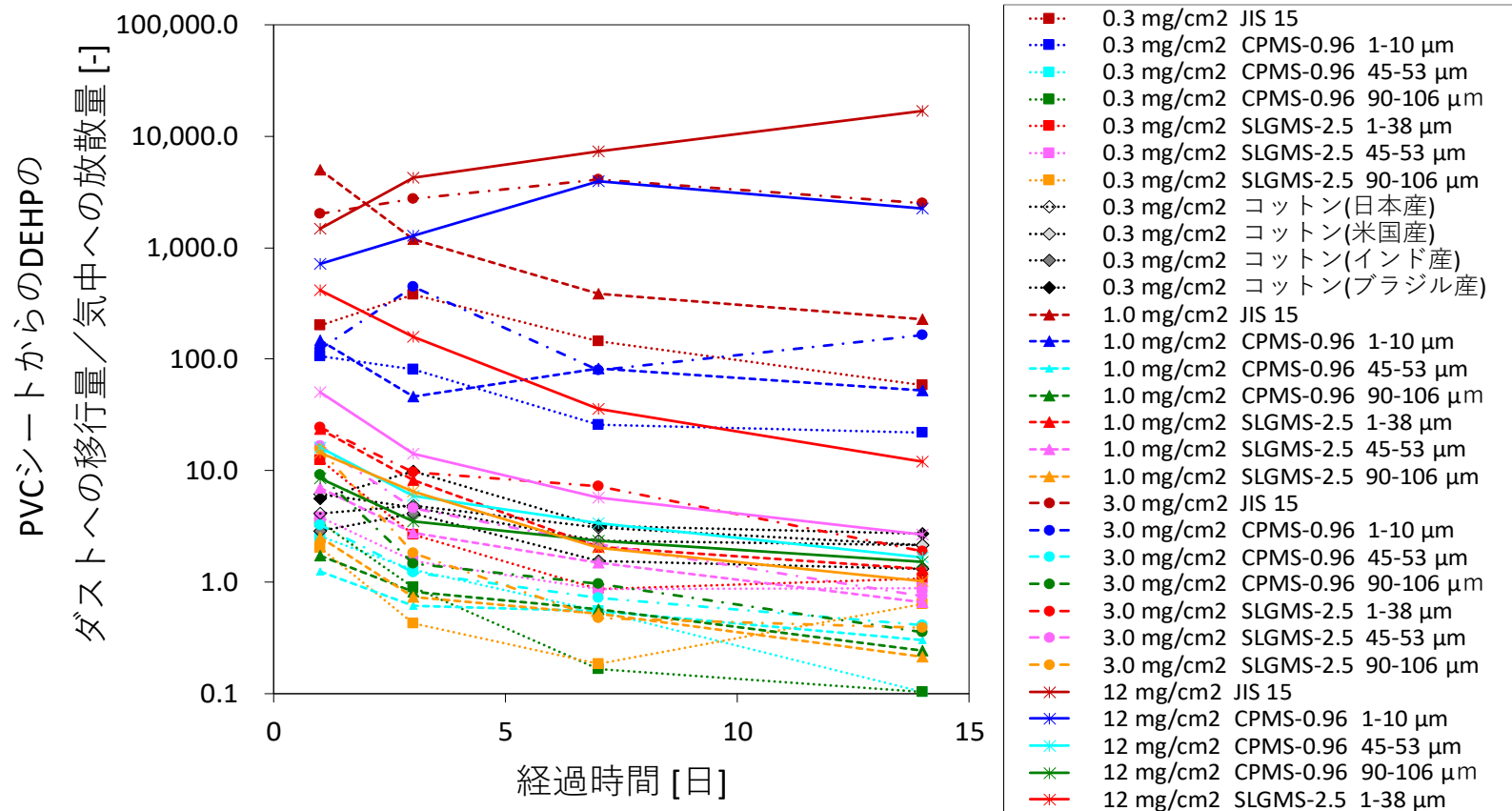


図 4-2 PVC シートからの気中への放散量とダストへの移行量の比

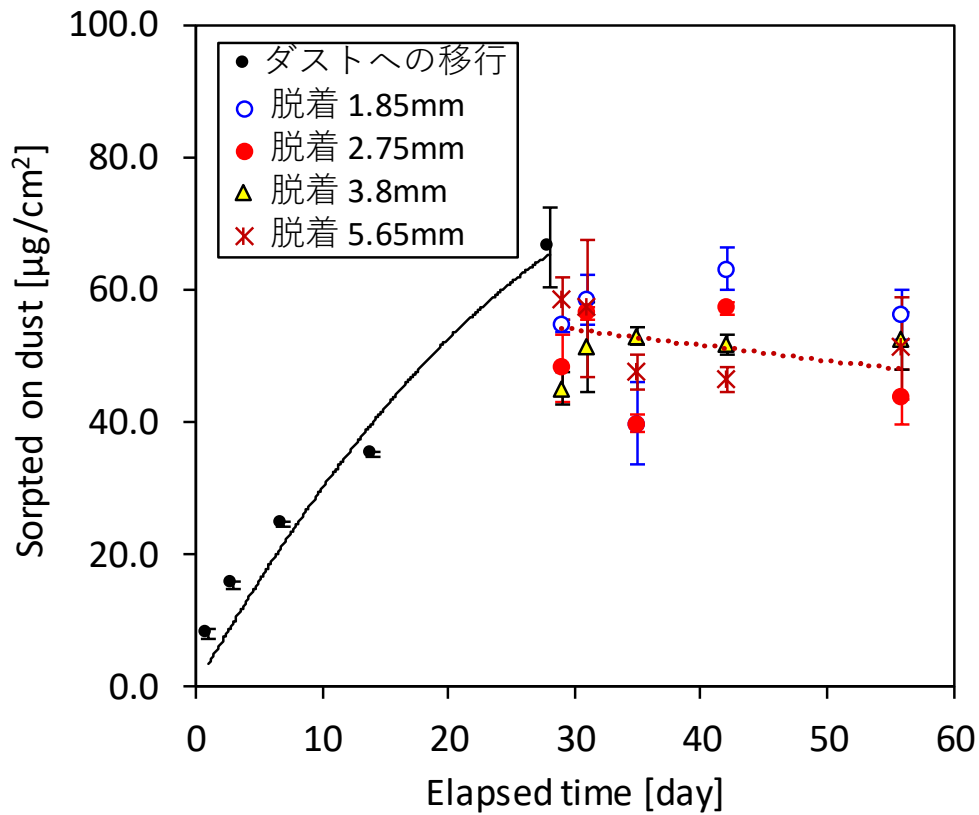
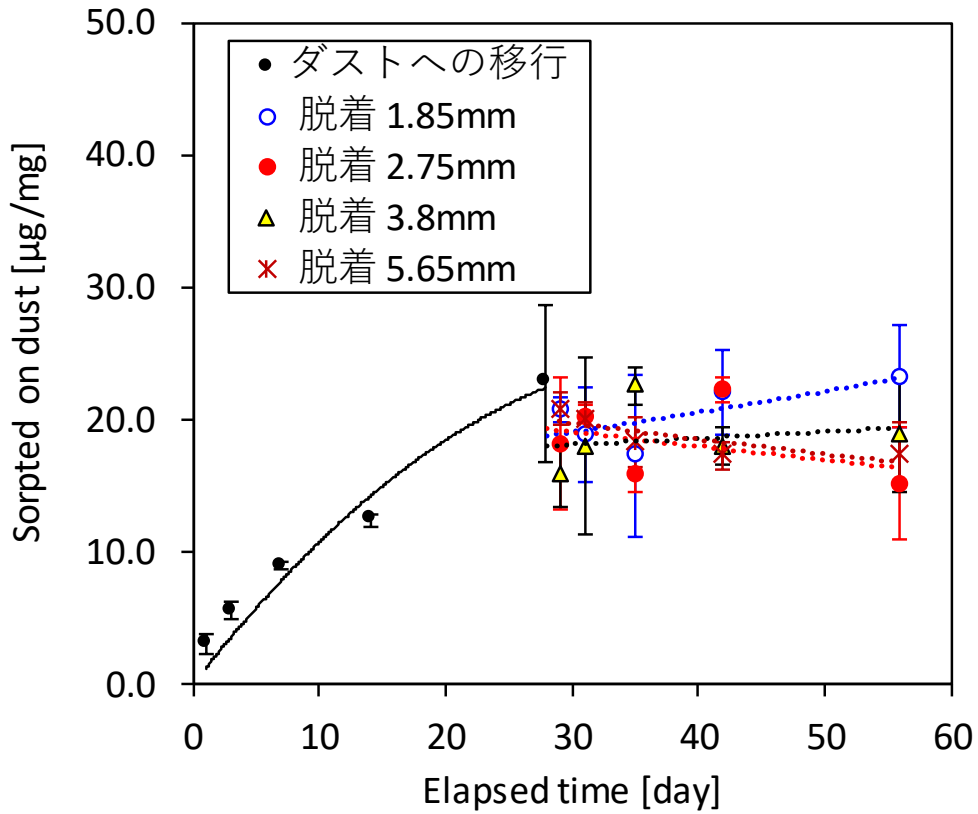


図 4-3 塩ビシートからハウスダストへの 28 日間の DEHP の移行とその後 28 日間のハウスダストから気中への放散（ハウスダストからの脱着）
 （上図： 単位ダスト重量当たり， 下図： 単位面積当たり）

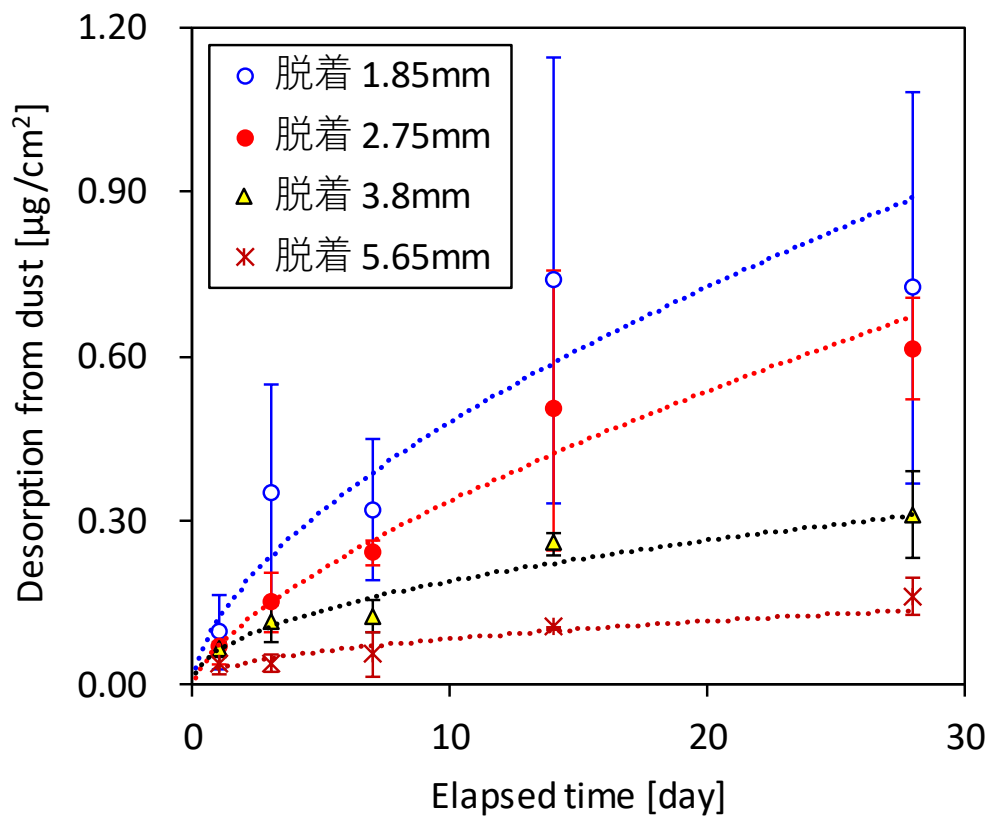
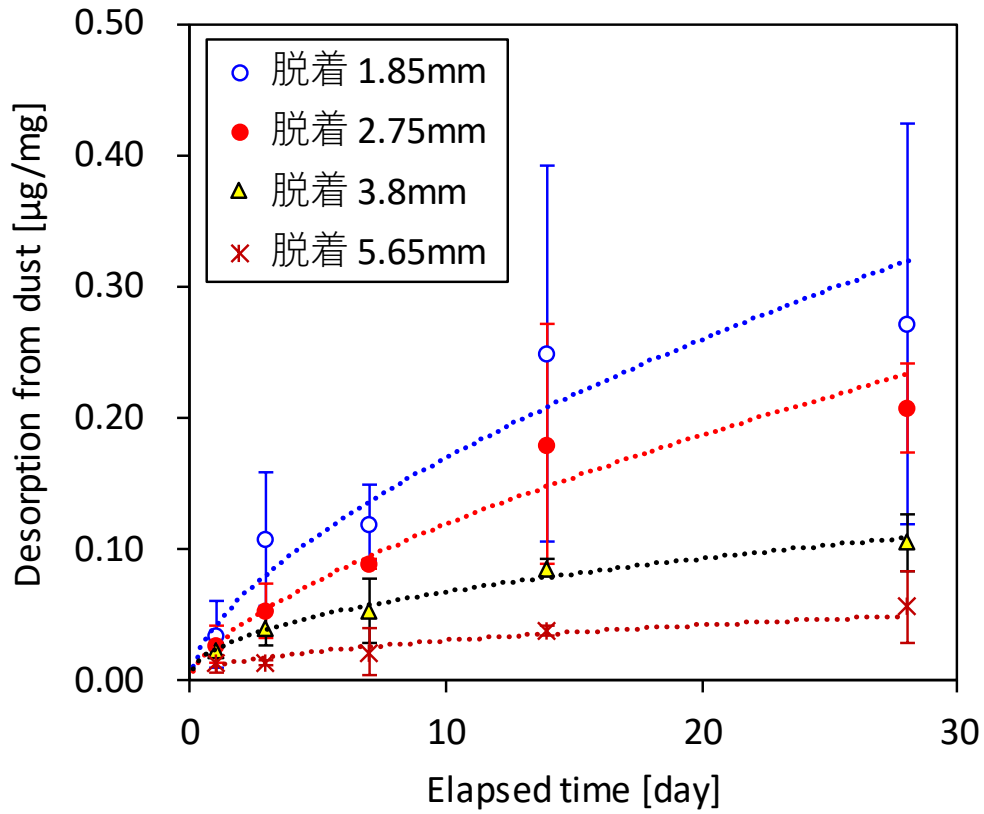


図 4-4 塩ビシートからハウスダストへ28日間DEHPを移行させたハウスダストから気中への放散量
 (上図：単位ダスト重量当たり，下図：単位面積当たり)

