

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

半揮発性有機化合物（SVOC）による
シックハウス症候群への影響評価及び
工学的対策の検証に関する研究

平成31年度～令和2年度 総括総合研究報告書

研究代表者 金 勲

平成31年度～令和2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)
総括総合研究報告書

半揮発性有機化合物 (SVOC) によるシックハウス症候群への影響評価及び
工学的対策の検証に関する研究

研究代表者 金 勲 国立保健医療科学院 上席主任研究官

研究要旨: 従来のシックハウス症候群は VOCs (揮発性有機化合物; Volatile Organic Compounds)、アルデヒド類が原因とされてきたが、近年それより沸点が高く吸着性の強い可塑剤・難燃剤成分の SVOC (半揮発性有機化合物; Semi Volatile Organic Compounds) の健康被害が懸念されている。特に、SVOC の中でもフタル酸エステルはプラスチックの製造工程で柔軟性や成形性を高める可塑剤の代表成分であり、リン酸エステルは難燃性を持たせた可塑剤であることから、建材や様々な生活用品の製造に幅広く使用され、蒸気圧が低い物性を持つことから、環境中では物体表面やダスト表面に付着して存在しているとされるものの、そのメカニズムは明らかでない。また、可塑剤として多く使われてきた DEHP、DBP、BBP のようなフタル酸エステル類は内分泌かく乱作用や喘息、アレルギー症状との関係が報告されており、リン酸系難燃剤についてはアレルギーとの関連性や発がん性を有する他、神経系への影響や生殖毒性を有することも報告されているため、特に小児への曝露が学習や行動への障害との関連性も危惧されている。本研究では、こうした健康影響との関連が懸念される SVOC に関する

- ・経口も含めた SVOC へのばく露によるシックハウス症候群の誘発可能性の定量的な評価
- ・上記の定量評価を踏まえた工学的対策の検討

を目的として、医学、分析化学、建築工学、環境工学、衛生学、疫学、リスク科学などの観点から以下に示す 6 項目の研究を進めた。

- 1) ハウスダストにおける SVOC (フタル酸及びリン酸系) 成分に関する分析法の確立及び室内汚染実態の調査 (稲葉、戸次)
- 2) 空気中 SVOC 濃度と建築・居住環境の調査 (林、樺田、金)
- 3) ダスト及び尿中 SVOC 濃度分析による室内からの児童曝露推定と健康影響 (荒木、アイツバマイ、研究協力者: 岸玲子)
- 4) 建材からハウスダストへの SVOC 移行・吸脱着に関するメカニズム解明 (篠原)
- 5) SVOC の多経路多媒体曝露を考慮した居住者の健康リスク評価 (東)
- 6) 建築・生活環境を考慮した工学的・衛生的対策の検討 (金、樺田)

上記の課題において、ダスト中のフタル酸類 20 成分及びリン系化合物 14 成分の分析方法を確立し全国の一般家庭 162 軒からの採取したハウスダストにおける各成分の曝露レベルを調査した。また、北海道スタディに参加する児童から提供された尿中の代謝物濃度やハウスダスト中 SVOC 成分の解析や、健康影響に関するデータを収集することで曝露推定と健康影響評価を実施し、室内の SVOC 曝露評価における基礎データを蓄積している。また、これら SVOC の分析データと建築・居住環境アンケート結果との相関分析を行った。ハウスダストを介した曝露評価のみでなく本研究では、壁面や床面における SVOC の吸着量を調査し、吸脱着メカニズムを明らかにすることで建材から室内への SVOC 汚染を算出・予測するための基礎データを蓄積した。

SVOC の定量評価を始めとする調査結果を基にシックハウスに関わる建材、換気、空調、生活リテラシーなどを考慮した対策検討と保健衛生面から対策検討を行うことで、工学的・保健衛生的観点から、ヒトと環境を総合的に考慮した対策の提案に繋げていく。

研究分担者 所属機関名・職名

荒木 敦子 北海道大学環境健康科学研究教育センター 准教授

アイツバマイ ゆふ 北海道大学環境健康科学研究教育センター 特任講師

稲葉 洋平 国立保健医療科学院生活環境研究部・特命上席主任研究官

戸次 加奈江 国立保健医療科学院生活環境研究部・主任研究官

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

東 賢 一 近畿大学医学部環境医学 准教授

林 基 哉 国立保健医療科学院生活環境研究部統括研究官

櫻田 尚樹 産業医科大学産業保健学部 教授

研究協力者 所属機関名・職名

岸 玲子 北海道大学環境健康科学研究協力センター特別招聘教授

Rahel Mesfin Ketema 北海道大学大学院保健科学院

A. 研究目的

本研究では、可塑剤・難燃剤成分として幅広く使われている SVOC（半揮発性有機化合物；Semi Volatile Organic Compounds）の健康影響を評価すると共にリスク低減のための工学的・保健衛生学的対策の提案を目標とする。

本研究は2年課題として全体内容は以下の通りである。

- ①SVOC（フタル酸及びリン酸系）成分に関する分析法の確立
- ②室内ダスト及び空気中 SVOC 濃度の実態調査
- ③ダスト及び尿中 SVOC 濃度分析による室内からの児童曝露推定と健康影響
- ④建材からハウスダストへの SVOC 移行・吸脱着メカニズム解明
- ⑤多経路多媒体曝露を考慮した健康リスク評価
- ⑥建築・生活環境を考慮した工学的・衛生学

的対策の検討

2年間の研究成果は以下内容としてまとめた。

- 1) ハウスダスト採取住宅の建築及び居住環境
- 2) 一般住宅のハウスダスト中フタル酸エステル類及びフタル酸エステル代替物質分析
- 3) 一般住宅のハウスダスト中リン酸エステル類の分析
- 4) 室内空気中 SVOC 濃度の実態
- 5) 居住環境とハウスダスト中 SVOC 濃度の相関分析
- 6) SVOC の多経路多媒体曝露を考慮した居住者の健康リスク評価
- 7) 7歳児のフタル酸エステル類および代替化合物の曝露実態および児のアレルギーとの関連の解明ーフタル酸エステル類および代替化合物の尿中代謝物分析
- 8) ハウスダスト中リン酸トリエステル類濃度を用いた摂取量およびアレルギーとの関連
- 9) ハウスダスト中 SVOC とシックハウス症候群に関するデータ解析
- 10) 建材から放散する SVOC の移行と吸脱着

A.1. ハウスダスト採取住宅の建築及び居住環境

本研究は、室内のハウスダストと室内空気中のフタル酸エステル類とリン酸エステル類の実態調査を行い居住者の健康リスク評価を行うと共に、建築・生活環境を考慮した工学的・衛生学的対策の検討と提案を目的としている。SVOC に対して、居住者は多経路・多媒体曝露を複合的に受けていることから、住宅内で高い濃度を有しているとされているダスト中 SVOC 濃度の実態調査を行うとともに、建築・居住環境及び健康に関するアンケート調査を実施し、建築・住環境アンケート 161 軒分に対して設問項目を選別し集計してまとめた。

A.2. 国内ハウスダストのフタル酸エステル類およびフタル酸エステル代替物質分析

本研究では、ハウスダストのフタル酸エステル類の分析を実施してきた。最近では、フタル酸エステルの規制が実施されており、代替物質への移行が進んでいる。既に代替物質として報告のあるアジピン酸ジイソノニル、1,2-シクロヘキサジカルボン酸ジイソノニルエステルなどを測定対象に追加し、フタル酸エステル類 20 成分を同時に分析可能にした。その中から、本報告書には分析結果として 16 成分を提示している。100 μm 以下のダストは、hand-to-mouth で経口曝露が懸念されていることから、ハウスダスト試料を篩で分粒し、100 μm 以下と 100-250 μm のダストに分けてから分析を行なっている。

本年度は 2019 年度の 72 家屋と 2020 年度の 90 家屋から採取した実住宅のハウスダストについて分析を行った。

A.3. 一般住宅のハウスダスト中リン酸エステル類の分析

リン酸エステル系難燃剤 (PFR) は、ハロゲン系難燃剤である有機臭素系難燃剤 (BFR) の代替として近年急速に需要が急増しているが、揮発性が高いことから環境中へ排出され室内汚染の要因となることが指摘されている。実際に、室内環境中の PFRs の曝露レベルとアレルギーや喘息などの健康影響に関連があることがこれまでの調査から示されていることから、今後 PFRs による室内汚染低減のための対策が必要と考えられる。

本研究では、室内環境中の PFRs について、一般家庭のハウスダストを対象とした汚染実態調査を行った。分析対象は、2019 年度の 72 家屋と 2020 年度の 90 家屋から採取した、計 162 軒のハウスダストである。

A.4. 室内空気中 SVOC 濃度の実態

SVOC は蒸気圧が低く吸着性が強いいため、空気中でガス状としては微量しか存在せず、ほとんどが室内の表面やダストの表面に吸着して存在するとされている。SVOC の摂取経路を評価するためには、吸入・経口・経皮曝露量を把握しなければならない。本研究では、住宅内での曝露経路としてダストによる経口摂取、空気からの吸入摂取を評価してい

る。そのため、実住宅を対象に室内空気中 SVOC 濃度の測定を行う。

A.5. 居住環境とハウスダスト中 SVOC 濃度の相関分析

本研究では、建築・居住環境のアンケート調査の結果とハウスダスト中 SVOC 濃度との相関解析を行った。

建築及び居住環境は室内空気質に大きく影響する因子を多く有している。そこで、ハウスダストの収集と同時に建築・居住環境及び健康に関するアンケート調査を行っており、アンケートでは周辺環境、家族構成員の属性、住宅の建築年数、在住年数、床面積、構造、階数、窓・ドアなど開口部の材料、改修や設備交換、床・壁の内装材、冷暖房換気設備、換気行動、湿度環境と結露、加湿器使用、ペット、除湿剤・防虫剤、芳香・消臭剤の使用に加え、家族構成員のアレルギーなど健康状態を設問した。

A.6. SVOC の多経路多媒体曝露を考慮した居住者の健康リスク評価

これまでシックハウス症候群は、揮発性有機化合物 (Volatile Organic Compounds: VOCs) やアルデヒド類が原因とされてきており、室内空気中濃度の指針値策定等の対策が行われてきた。しかし近年、VOCs よりも揮発性が低く吸着性の高い準揮発性有機化合物 (SVOC) による健康影響が懸念されている。

SVOC は、VOCs に比べて蒸気圧が低いいため、室内環境中では空気中のみならず、物体表面やダスト表面にも付着して存在している。従って、室内に居住する居住者の体内への侵入経路としては、室内空気中から吸入曝露する経路、室内ダストをマウシング等で経口摂取する経路、飲食物や食器に付着または混入したダストや SVOC を経口摂取する経路、室内空気中から経皮吸収する経路、室内ダストや SVOC 含有製品に接触して経皮吸収する経路が存在し、室内環境で居住者は多経路多媒体曝露を複合的に受けている。そこで本研究では、SVOC の中でもフタル酸エステル類とリン酸エステル類に着目し、日本の家屋における室内ダストと室内空気中におけるフタル酸エステル類とリン酸エステル

類の実態調査を行い、居住者の健康リスク評価を行うことを目的とした。

A.7. 7歳児のフタル酸エステル類および代替化合物の曝露実態および児のアレルギーとの関連の解明—フタル酸エステル類および代替化合物の尿中代謝物分析

フタル酸エステル類の代表的な化合物として DEHP(di-2ethylhexyl phthalate)、DiNP(di-isononyl phthalate)、DBP(Dibutyl phthalate)、BBzP(Butylbenzyl phthalate)などがある。これまで、日本の可塑剤製造量および使用量は DEHP が大部分を占め、次いで DiNP であった。しかし、DBP、BBzP、DEHP によるヒトへの内分泌かく乱作用やアレルギーのアジュバント作用が懸念され、日本では 2010 年に乳幼児の育児玩具、食品包装・容器など一部の製品への使用が規制された。それに伴い代替としての DiNP の使用量が増加したが、欧州や諸外国での DiNP の使用制限により近年は減少傾向である。このような世界動向を受け、フタル酸系可塑剤の代替化合物として、テレフタル酸系、アジピン酸系可塑剤および DINCH(1,2-Cyclohexane dicarboxylic acid diisononyl ester)の製造量、使用量の増加およびヒトの曝露実態が欧米より報告されているが、日本の曝露実態は報告がない。

そこで、本研究では、2002 年にスタートした北海道の出生コホート研究『北海道スタディ』の 7 歳児の尿を用い、①フタル酸エステル類およびその代替化合物の曝露実態を把握すること、②同じ 7 歳対象児の住居より採取したハウスダスト中フタル酸エステル類および代替化合物濃度と児の尿中代謝物濃度から一日摂取量を推定し、③室内環境から個人曝露量への寄与およびアレルギーとの関連を検討することを目的とした。

A.8. ハウスダスト中リン酸トリエステル類濃度を用いた摂取量およびアレルギーとの関連

リン酸トリエステル類は難燃性可塑剤として、火災や燃焼予防のために建材や家具、カーテンやじゅうたん、壁紙などの内装材

として様々な製品に添加されるほか、床のワックスや光沢剤に用いられる。沸点が 240-260°C~380-400°Cの準揮発性有機化合物(Semi-Volatile Organic Compounds: SVOC)であり、製品とは化学的には結合していないため、徐々に染み出して空气中に拡散する。揮発性が低いいため、ホコリに吸着することで室内に存在する。過去に日本の住宅では、そのダスト中濃度は諸外国よりもわが国で高い、また、アレルギー症状のリスクを上げることが分担研究者らは報告した。本研究では掃除機で収集したダスト中濃度と、部屋に堆積したダスト中濃度から、子どもの摂取量を推定計算し、曝露評価に用いて、アレルギーとの関連を明らかにすることを目的とした。

A.9. ハウスダスト中 SVOC とシックハウス症候群に関するデータ解析

研究分担者・研究協力者らは、過去に日本の 6 地域の新築戸建て住宅とその居住者を対象にシックハウス症候群に関する疫学研究を推進してきた。ハウスダストを収集し、含有する準揮発性有機化合物(SVOC)であるフタル酸エステル類と有機リン酸トリエステル類を測定、SHS(シックハウス症候群)の有訴に関する情報を得た。そこで、本研究ではこれら既存の全国データを用いて、SHS 有訴とダスト中フタル酸エステル類、およびリン酸トリエステル類濃度との関連を明らかにすることを目的とした。

A.10. 建材から放散する SVOC の移行と吸脱着

プラスチック製品の可塑剤として広く使用されているフタル酸エステル類は、その蒸気圧の低さと吸着性の高さから、粒子や室内の壁面への吸着が非常に多いことが知られている。ハウスダストへ吸着した DEHP の経口曝露について評価することが必要と考えられる。本研究では、PFS(パッシブフラックスサンプラー)を用いて塩ビシートからの DEHP の放散及び粒子への移行に関するパラメーターを取得した。また、吸着した粒子からの脱着についても測定した。

更に、住宅室内の床面からのフタル酸エステル類、リン酸エステル類、2-エチル-1-ヘキサノール等の放散量の実測を行い、室内濃度や居住者の曝露評価や対策の検討につなげることを目的とした。

B. 研究方法

B.1. ハウスダスト採取住宅の建築及び居住環境

全国の一般住宅を対象にハウスダストの採取と建築・居住環境及び健康に関するアンケート調査を行った。本研究は、人体から採取された試料を用いない観察研究である。

アンケートでは、周辺環境、家族構成員の属性、住宅の建築年数、在住年数、床面積、構造、階数、窓・ドアなど開口部の材料、改修や設備交換、床・壁の内装材、冷暖房換気設備、換気行動、湿度環境と結露、加湿器使用、ペット、除湿剤・防虫剤、芳香・消臭剤、家族構成員のアレルギーなど健康状態を設問した。

2019年度収集分 70 軒＋7 軒(別途手配分)、2020年度 84 軒分の計 161 件のアンケートに対して集計と解析を行った結果をまとめた。

B.2. 国内ハウスダストのフタル酸エステル類およびフタル酸エステル代替物質分析

本研究の 1 年目 (2019 年度) に確立した「フタル酸エステル類およびフタル酸エステル代替物質分析法」を使用して、2019 年度の 72 家屋と 2020 年度の 90 家屋から採取した実住宅のハウスダストについて分析を行った。

ダストはふるいにかける粒子径が 100 μm 以下 (<100 μm) 及び 100-150 μm のものを 20 mg 分析に用いた。溶媒抽出-LC/MS/MS 分析法を用いて 16 成分について定性定量を行った。

B.3. 一般住宅のハウスダスト中リン酸エステル類の分析

ダストはふるいにかける粒子径が 100 μm 以下 (<100 μm) 及び 100~150 μm のものを 20 mg 取り、分析に用いた。分析に用いたハウスダストは 162 軒のサンプルである。各サンプルは、2019 年度報告書「1-2 リン酸エステル

類の分析法」で確立した LC-MS/MS による分析手法に従い分析した。抽出操作は、試料 20 mg を 3 ml のアセトニトリルで超音波抽出した後、1ml 分取したものをフィルター (孔径 0.2 μm 、Millipore) で処理し、溶媒を乾固させた。その後、200 μl のアセトニトリルに再溶解させ LC-MS/MS (Waters) で分析した。

対象物質はこれまでに同時分析法を開発してきた 14 成分 (TMP、TEP、TPP、TIBP、TBOEP、TCEP、TEHP、TCEP、TCIPP、TDCIPP、TPHP、TCsP、EHDPHP、CsDHP) とした。

B.4. 室内空气中 SVOC 濃度の実態

SVOC は空气中濃度が低いため、空気捕集は大流量で長時間サンプリング (1 日~1 週間程度) がよく使われてきた。しかし、現場測定の合理性や利便性を考え、まず現場サンプリング時間の比較検討からサンプリング時間を 2 時間 (空気吸引量 12L) と決定し、23 家屋 (居間及び寝室を合わせ 46 ヶ所) に対する空气中濃度測定を行った。

B.5. 居住環境とハウスダスト中 SVOC 濃度の相関分析

建築・居住環境を説明変数、SVOC 成分濃度を目的変数として相関を調べた。有意水準 5%、SAS-JMP11 を用いて変数間の有意差検定を行った。

解析対象とした SVOC 成分は平均濃度が高い、もしくは検出頻度が高い物質として、フタル酸エステル類からは「DBP、DEHP、DIDP、DINP、DINCH、TOTM」の 6 成分、リン酸エステル類からは「TCPP、TDCPP、TBOEP」の 3 成分を選んだ。説明変数としては、地域、建築年数、居住年数、構造、改修や設備交換、床・壁の内装材、冷暖房・換気設備、換気行動、芳香剤・防虫剤など用品の使用、などである。

B.6. SVOC の多経路多媒体曝露を考慮した居住者の健康リスク評価

フタル酸エステル類 10 物質およびアジピン酸エステル類 2 物質とその代替物質 5 物質の合計 17 物質、リン酸エステル類 14 物質に関する有害性情報を収集し、健康リスク評価に必要な耐容一日摂取量を取りまとめた。また、一般家屋 162 世帯から採取したダスト中

のこれらの物質の濃度に基づき、健康リスク評価を行った。

B.7. 7歳児のフタル酸エステル類および代替化合物の曝露実態および児のアレルギーとの関連の解明—フタル酸エステル類および代替化合物の尿中代謝物分析

北海道スタディの7歳児の尿中フタル酸エステル類の曝露実態を把握する目的に加え、DiNPの定量法に関する検討を行った。

北海道スタディ7歳児のフタル酸エステル類およびその代替化合物の尿中代謝物濃度を測定し、児の曝露実態、1日摂取量、アレルギーとの関連を検討した。フタル酸エステル類および代替化合物の尿中代謝物濃度の測定は分担研究者が確立した分析法を用い、高速液体クロマトグラフィー/タンデム質量分析装置で測定した。

B.8. ハウスダスト中リン酸トリエステル類濃度を用いた摂取量およびアレルギーとの関連

生コーホート「環境と子どもの健康に関する北海道研究」に参加する7歳児に自宅の環境訪問調査への協力を依頼し、91軒の兄弟姉妹及び双子を含む96人の協力を得た。小学校入学時検診時の身長と体重に加えて、喘息・アレルギーに関する情報をISAAC調査票から定義した。ダストサンプルは、居間および子どもの寝室の「床ダスト」と「棚ダスト」に加えて、居間に6か月間設置した「堆積ダスト」の3種類を収集した。リン酸トリエステル類14化合物の各ダスト中濃度を、LC-MSMSを用いて国立保健医療科学院で分析した。それぞれのダスト中濃度を用いて、経口摂取量(Daily Intake (DI)_{ingestm})、経皮摂取量(DI_{dermal})および総摂取量(DI_{total dust})を計算した。最後に、アレルギー症状の有無による摂取量の違いを検討した。

B.9. ハウスダスト中SVOCとシックハウス症候群に関するデータ解析

既に収集済みのSHSおよびSVOC濃度を用いた。以下に、簡単にデータ収取およびSVOCの分析について示す。

2003年にベースライン調査を札幌、福島、

名古屋、大阪、岡山、北九州の全国6地域で実施した。築6年未満の戸建て住宅を「建築確認申請」から無作為に6,080軒抽出し、質問紙調査票を郵送した。このうち調査票が回収できた2,282軒に、翌2004年、2005年、2006年と連続する3年間訪問による住宅環境調査を実施した。2006年の調査件数は186軒でその居住者は624人であった。本報告は2006年の調査で収集したデータを用いた。

SHSは、MM040EA調査票を用いて粘膜への刺激症状、および12症状のうちのいずれか一つ以上あるSHSとした。ダスト中に含まれるSVOCは、床および棚ダスト中濃度それぞれ14化合物の値を用いた。SHSと個々の化合物曝露の関連を検討するロジスティック回帰分析に加えて、混合曝露として14化合物を同時にモデルに投入するWeighted quintile Sum (WQS) regressionを用いてPositive modelとNegative modelを検討し、quintile g-computation (qg-computation)を用いて各化合物によるSHSの寄与(Weight)とその方向を求めた。

B.10. 建材から放散するSVOCの移行と吸脱着

PFSを用いて、塩ビシートから気中へのDEHPの放散とハウスダストへの移行及び脱着について試験した。標準ダスト(JIS15 dust)、ポリエチレン粒子(CPMS-0.96 1-10, 45-53, 90-106 μm)、ソーダライムガラス粒子(SLGMS-2.5 1-38, 45-53, 90-106 μm)、コットンリント(日本産、アメリカ産、ブラジル産、インド産)を用い、ダスト量は3 mg/cm²で行った。

また、住宅室内の床面からのフタル酸エステル類、リン酸エステル類、2-エチル-1-ヘキサノール等の放散量の実測を行った。

C. 結果及び考察

C.1. ハウスダスト採取住宅の建築及び居住環境

対象住宅の所在地域は九州から北海道まで顕著な偏りがないよう選定できた。周辺環境は住宅地が85%と最も多く、次いで交通量

の多い幹線道路、田・畑などの農地や緑地の順であった。建築年度は1960年代から2020年までと幅広いが、建築基準法が改定された2003年度以降の住宅は55%であった。居住年数10年以内が62%、住居形態は戸建てが52%、集合住宅が48%であった。木造47%、鉄骨造30%、コンクリート35%と木造が半分近くを占めていた。

内装材としては、壁装では壁紙(ビニールクロス32%、壁紙57%)が最も多く、床材は居間・寝室ともに木材・フローリングが最も多かった。壁装に居間と寝室の違いは見られなかったが、居間ではカーペットが多い反面、寝室ではたたみの割合が増えていた。塩ビシートは居間で4%、寝室で1%存在していた。

換気装置としては、排気のみが機械式33%、給気・排気共に機械式15%、給気のみ機械式3%、機械換気無しが39%であり、換気形態としては半数程度が「常に運転(24時間換気)」、3割程度は「必要な時」に換気を行っていた。

冷房としては居間、寝室共にエアコンが最も多かった一方、暖房は居間ではエアコンが61%と最も多かった。石油・ガスといった燃焼式器具も依然とかなりの割合を占めていた。寝室はエアコンが50%だったが、暖房器具無しも28%あった。暖房にエアコンを使うことを好まない家庭がかなり存在することがわかった。

加湿器は冬季及び居間を中心に半数程度の家庭で使っていた。芳香剤、防虫剤などの製品を使用しているという回答は各製品に対して3割程度存在した。

C.2. 国内ハウスダストのフタル酸エステル類およびフタル酸エステル代替物質分析

フタル酸エステル及び代替物質の分析は、高速液体クロマトグラフ質量分析計(LCMSMS)で実施した。分離カラムにFluoro Phenylカラムを採用することで、分離度が向上し分析感度が向上した。しかし、DEHPとその異性体であるDEHTのピークが重なってしまうため、この2成分はガスクロマトグラフ質量分析計によって分析を行うことに決定した。フタル酸エステルの分析では、最も多い成分は、DEHP(100 μ m以下、100-250 μ mの2区分)であった。次に、多い成分がDINPとなった。この分析結果は、これまでの日本における先行研究と同等の結果となった。

おもちゃの規制のフタル酸エステル6成分に関しては、ハウスダストにおいてDBP、DEHP、DIBP、DINPの検出率が高かった。本研究と国内のハウスダスト中のフタル酸エステル濃度および先行研究との比較を行ったところ、日本国内のフタル酸エステルの成分量に大きな変化が認められず、ハウスダストにはDEHPとDINPの含有量が高い傾向が示された。

C.3. 一般住宅のハウスダスト中リン酸エステル類の分析

ハウスダストからはPFRs14成分が検出され、特に床材の難燃剤として使用されるTBOEPがダストから高濃度で確認された。続いてTDCPP(30 \pm 00 μ g/g) > TCPP(9.2 \pm 23 μ g/g) > TCEP(4.8 \pm 8 μ g/g) > TPHP(1.0 \pm 1.8 μ g/g)が比較的高濃度であった。

これらは、家具や家電などの生活用品にも多く使用されるものであり、これまでに実施された国内の調査結果と比較してTDCPPが高濃度である傾向が見られた。

今後、アンケート調査に基づいた健康影響や住環境との関連性についても解析を進めることで、ダスト中のPFRsとの関連性を明らかにし、さらにPFRsによるダストを介したリスクを明確にすることで、PFRsの室内環境汚染低減に向けた対策の提案を行う。

C.4. 室内空気中SVOC濃度の実態

結果、定性定量した9成分のうち、実住宅の空気からはDEP、DnPP、DIBP、DBP、DEHPの5成分が検出された。濃度平均として最も高く検出されたのはDIBPであり、次いでDEHP、DBP、DEP、DnPPの順となった。DEHP及びDBPは全住宅で満遍なく検出され、両物質ともに偏差が小さく比較的均一な濃度分布を示していた。DEHPは空気中濃度が低いとされ、今回の対象住宅では0.5 μ g/m³未満の濃度が多かったが、6ヶ所からは1 μ g/m³前後の濃度が観察された。同一住宅におけるリビングと寝室間の濃度差は大きくなかった。

TDIに対する摂取割合としてはDIBP及びDBPが最も高く、DIBPに対する1歳乳児の空気からの平均摂取割合は4.7%、DBPは3.6%であった。他の物質はTDIが高いため摂取割合としては小さく、DEHPはTDIに対して0.7%となった。しかし、最大値から試算するとDIBP28.0%、DBP14.3%、DEHP2.0%と

DIBP 及び DBP は高くなる。

環境中 VOCs に比べると、いずれの SVOC 成分も空气中濃度は低いレベルであるが、乳児の場合は成人に比べ空気から摂取する割合が多くなることには注意が必要である。

C.5. 居住環境とハウスダスト中 SVOC 濃度の相関分析

有意差は得られなかったが DIDP 以外のフタル酸類は築年数が古くなるほど濃度が高くなる傾向が見られた。リン酸系では TBOEP が同様な傾向で正の相関が認められた。居住年数と DINP 濃度に有意な正の相関が認められた。居住形式とフタル酸・リン酸類には有意な濃度相関が得られなかった。構造では、TBOEP 濃度がコンクリート造>鉄骨造と有意差が認められた。

居間__床材では、コルク・ごぎ・P タイルを用いているところは DINP が高く、カーペットタイルは DEHP、ごぎ・P タイルでは DINCH が高かった。また、TOTM が P タイルの居間で高く、木材・フローリングでは TBOEP が高い結果となった。寝室__床材は、カーペットで TOTM が低く、塩ビシートでは高くなっている。カーペットタイルは DIDP が高く、ごぎがある室では DINCH が高くなっていた。難燃剤成分である TDCPP、TCPP は木材・フローリングが低い結果となっている反面、たたみがある室は TCPP が高くなった。

給気・排気共に機械式換気の住宅では DIDP が高く、熱交換器は TCPP が、全館空調は DINCH が高かった。換気形態とフタル酸及びリン酸エステル類濃度に有意差は認められなかったが、平均濃度は DBP 以外の全てのフタル酸類で「常時換気」>「必要な時に換気」であった。リン酸類では3成分ともに「常時換気<必要な時に換気」となっていた。除湿剤使用家庭では TBOEP、TCPP、TDCPP の難燃剤成分濃度が高く、芳香剤は TBOEP、消臭剤は TDCPP が高かった。防虫剤は DIDP が低くなっている一方、TDCPP、TBOEP は高くなっていた。

今回得られた建築・居住環境とハウスダスト中 SVOC 濃度との相関分析結果は、汚染源の探索と汚染物質の低減など対策の提案に資する。

C.6. SVOC の多経路多媒体曝露を考慮した居住者の健康リスク評価

DEHP と DnBP については、ダストのみでもリスクが懸念されるレベルにあると考えられ、飲食物等の他の摂取経路を考慮すると、総じて調査全体の数%程度はリスクが懸念されるレベルにある可能性が考えられた。その他の物質では、DIDP、DiBP、TCEP、TCIPP、TDCIPP、TCsP において、低年齢層での曝露マージンが小さくなっており、飲食物等の他の経路からの摂取量がダストと同程度以上ある場合は、リスクが懸念されるレベルと考えられた。ダスト、室内空気、飲食物等の摂取経路を同時に調査した包括的な SVOC の健康リスク評価研究が必要である。

C.7. 7歳児のフタル酸エステル類および代替化合物の曝露実態および児のアレルギーとの関連の解明—フタル酸エステル類および代替化合物の尿中代謝物分析

児の BBzP、DiNP、DEHP、DINCH、DPHP の尿中代謝物は、諸外国より報告されている曝露濃度よりも低かった。一方で DEHP 代謝物濃度は高く、未だ DEHP が含まれる多くの製品や食事を介しての曝露が示唆された。ハウスダスト中 DiBP、DnBP、BBzP、DEHP、DiNP、DINCH 濃度と対応する尿中代謝物濃度は有意な正の相関を示した。

分析対象化合物のうち、DEHP、DiNP、DINCH がハウスダストからの曝露の寄与が示唆された。中でもダストからの寄与は DINCH が最も大きかった。ハウスダストサンプルで分析対象とした化合物の全ての尿中代謝物の分析をしていないため、1日摂取量に対するハウスダストからの曝露の寄与の解釈には注意が必要である。アレルギーとの関連は鼻結膜炎と BBzP および皮膚炎と DiNP について過去の先行研究と一致した関連が認められたが、サンプルサイズが少ないため今後はサンプルサイズを拡充した解析が必要である。新規の化合物については今後さらなる知見の蓄積が求められる。

C.8. ハウスダスト中リン酸トリエステル類濃度を用いた摂取量およびアレルギーとの関連

全員が7歳で、身長と体重は平均±標準偏差がそれぞれ 119.3±5.44 cm、22.78±2.73 kg だった。喘鳴、鼻結膜炎および湿疹の有病はそれぞれ 26 人 (27.1%)、15 人 (15.6%)、23 人 (24.0%) だった。経口曝露最も高いのは床ダスト中 TBOEP が 0.3 (μg/kg/day)、最も高い床ダスト TDCIPP の最大値が 2.91 (μg/kg/day)、床ダスト TBOEP の最大値が 1.36 (μg/kg/day) だった。すべての種類のダストによる DI は RfD 以下だった。経口曝露濃度分布の違いが喘鳴と TBOEP および TCsP、鼻結膜炎の有無と TBOEP と TNBP、TCsP で認められた。湿疹と関連が認められたリン酸トリエステル類は無かった。

経口、経皮および総曝露量のいずれにおいても結果は一貫しており、喘鳴および鼻結膜炎ありの子どもから収集したダスト中 TBOEP と TCsP 濃度が、症状のない子どもから収集したダスト中濃度よりも高かった。

本研究の限界としては、横断研究であることから、因果関係については考慮できない。また、統計解析を繰り返し実施しているため、得られた結果は偶然である可能性がある。しかし、有意差が認められた化合物は TBOEP、TNBP および TCsP と一貫しており、結果は無視すべきではないと考える。

C.9. ハウスダスト中 SVOC とシックハウス症候群に関するデータ解析

対象としたのは居住者全527人で、SHS粘膜刺激症状5.7%、いずれかの症状が家と関連しているというSHSは6.5%だった。フタル酸エステル類およびリン酸トリエステル類14化合物について、いずれの個々の化合物ともSHSとの関連は認められなかった。フタル酸エステル類およびリン酸トリエステル類14化合物の混合曝露は、床ダスト、棚ダストともSHS粘膜への刺激症状およびSHSにおいてWQS Positive Modelでリスクを上げる結果が認められた。一方、negative modelでは、いずれの関連も認められなかった。qg-computation

では、SHSと床ダスト中の混合曝露が1.94(1, 06, 3.56)で、 $p<0.05$ の有意な関連性が認められた。qg-computationでSHS症状と棚ダストでは、SHS粘膜への刺激症状のリスクを上げる寄与が大きい物質は床はTBPとTBEP、棚ではTEHPとTCDPだった。一方、床ダスト中のTEHPとDnBP、棚ダスト中のTPhPとDEHAはリスクを下げる方向への寄与が大きかった。SHSについては、床ダスト中のTBEP、TBP、棚ダストでは、TEHP、TCEPの順だった。一方、床ダスト中のTEHP、TCIPP、棚ダスト中のDEHA、TPhPはむしろリスクを下げる関連が認められた。本研究の利点は、比較的大きな対象者で、日本6地域でダスト中SVOC濃度を測定し、その混合曝露がSHSのリスクを上げる可能性を示しSHSのリスクが増加する関連が認められたが、寄与する化合物は同一の化合物が床ダストと棚ダストでは相反するなど、結果の解釈には注意を要する。

C.10. 建材から放散するSVOCの移行と吸脱着

実験室において塩ビシートからのダストへの移行量や空気中への放散量を調べた。重量当たりのダストへの移行量はダストの種類やサイズによって大きく異なっていた。吸着したDEHPの脱着量は28日後でも吸着量の1%程度であった。

また、一般家庭の住宅室内を対象として、床面から放散されるSVOCの放散量について調べた。対象物質としては、フタル酸エステル類、リン酸エステル類、2-エチル1-ヘキサノール、TXIB、テキサノールなどとした。DEP、DnBP、DiBP、DEHP、TBEP、TCEP、TCPP、2-エチル1-ヘキサノール、TXIB、テキサノールが多く住宅で検出されたが、物質間に明らかな相関はみられなかった。また、気中濃度との間にも相関はみられなかった。

D. まとめ

健康影響との関連が懸念されるSVOCに関して、①経口も含めたSVOCへのばく露に

よるシックハウス症候群の誘発可能性の定量的な評価、②上記の定量評価を踏まえた工学的対策の検討、を目的として、医学、分析化学、建築工学、環境工学、衛生学、疫学、リスク科学などの観点から研究を進めた。

本研究で行った実施内容は以下の 10 項目である。

- 1) ハウスダスト採取住宅の建築及び居住環境の調査
- 2) 一般住宅のハウスダスト中フタル酸エステル類及びフタル酸エステル代替物質分析
- 3) 一般住宅のハウスダスト中リン酸エステル類の分析
- 4) 室内空气中 SVOC 濃度の実態調査
- 5) 居住環境とハウスダスト中 SVOC 濃度の相関分析
- 6) SVOC の多経路多媒体曝露を考慮した居住者の健康リスク評価
- 7) 7 歳児のフタル酸エステル類および代替化合物の曝露実態および児のアレルギーとの関連の解明—フタル酸エステル類および代替化合物の尿中代謝物分析
- 8) ハウスダスト中リン酸トリエステル類濃度を用いた摂取量およびアレルギーとの関連
- 9) ハウスダスト中 SVOC とシックハウス症候群に関するデータ解析
- 10) 建材から放散する SVOC の移行と吸脱着

成果としては、ダスト中のフタル酸類 20 成分及びリン系化合物 14 成分の分析方法を確立し全国の一般家庭 162 軒から採取したハウスダストにおける各成分の濃度及び曝露レベルを調査した。

また、北海道スタディに参加する児童から提供された尿中の代謝物濃度やハウスダスト中 SVOC 成分の解析、健康影響に関するデータを収集することで曝露推定と健康影響評価を実施し、室内の SVOC 曝露評価における基礎データを蓄積した。

これら SVOC の分析データと建築・居住環境アンケート結果との相関分析を行った。本研究では、ハウスダストを介した曝露評価のみでなく、壁面や床面における SVOC の吸着

量を調査し、吸脱着メカニズムを明らかにすることで建材から室内への SVOC 汚染を算出・予測するための基礎データを蓄積した。

SVOC の定量評価を始めとする調査結果を基にシックハウスに関わる建材、換気、空調、生活リテラシーなどを考慮した対策検討と保健衛生面から対策検討を行うことで、工学的・保健衛生的観点から、ヒトと環境を総合的に考慮した対策の提案に繋げていく。

E. 研究発表

1. 論文発表

1) Glorennec P, Shendell DG, Rasmussen PE, Waeber R, Egeghy P, Azuma K, Pelfrène A, Le Bot B, Esteve W, Perouel G, Pernelet Joly V, Noack Y, Delannoy M, Keirsbulck M, Mandin C. Towards setting public health guidelines for chemicals in indoor settled dust? *Indoor Air* 31(1):112–115, 2021.

2. 学会発表

1) 東 賢一、戸次加奈江、稲葉洋平、金 勲. 一般住宅の床ダスト中準揮発性有機化合物による健康リスク評価のためのアンケート調査. 第 91 回日本衛生学会学術総会, 富山, 2021 年 3 月 6 日-8 日.

2) Azuma K, Bekki K, Inaba Y, Kim H. Questionnaire survey for health risk assessment of exposure to semi-volatile organic compounds-contaminated floor dust in housing: preliminary survey on prevalence. 33th Annual International Society for Environmental Epidemiology Conference, New York, USA, 23-26 August 2021. (in submission)

3) 稲葉洋平、戸次加奈江、アイツバマイゆふ、荒木敦子、岸玲子. 北海道のハウスダスト中のフタル酸エステル類及びその代替物質の分析. 91 回日本衛生学会学術総会. 2021.3.6-8. オンライン開催.

4) 稲葉洋平、戸次加奈江、東賢一、金勲. 国内のハウスダストのフタル酸エステル類およびフタル酸エステル代替物質分析. 2020 年室内環境学会学術大会. 2020.12.3-4. 郡山市と Web 開催. 同講演要旨集. P85-86.

5) Ait Bamai Y., Araki A., Kishi R., Phthalates in

house dust and their metabolites in children's urine summary of the finding in Japan. (Symposium: Exposure science studies from Asian perspectives – Environmental and study diversities among Asian countries). 30th Annual Meeting International Society of Exposure Science (ISES), Virtual, (2020.9.21-22)

6) Araki A., Environmental Chemical Exposure and Children's Health–The Hokkaido Study, 8th Sapporo Summer Symposium for One Health (SaSSOH), Virtual, (2020.9.16-17)

7) Ketema R. M., Ait Bamai Y., Araki A., Saito T., Kishi R.; Biomonitoring of Phthalate Metabolites in Children: The Hokkaido Study. 8th Sapporo Summer Symposium for One Health (SaSSOH). Virtual. (2020.9.16-17)

8) Ketema R. M., Ait Bamai Y., Araki A., Saito T., Kishi R.; Changing trends in urinary phthalate metabolites in elementary school children; 2012-2017. 32nd Annual Conference of the International Society for Environmental Epidemiology. Virtual, (2020.8.24-27)

9) Ait Bamai Y., Indoor Environmental Quality and Children's Health. Environmental, Safety Technology and Health Program (Symposium), Thailand, Virtual, (2020.8.25)

10) 戸次加奈江, 荒木敦子, アイツバマイゆふ, 東賢一, 岸玲子. 様々なダスト形態を活用した室内有機リン系難燃剤の分布解析. フォーラム 2020 衛生薬学・環境トキシコロジー; 2020. 9.4-5; 愛知. 同講演集.

11) 戸次加奈江, 東賢一, 稲葉洋平, 金勲. 全国の一般家庭から採取した床ダスト中のリン系難燃剤に関する汚染実態調査. 第91回日本衛生学会学術総会. 2020. 3. 6-8; 富山. 同講演集.

F. 健康危険情報

なし

G. 知的財産権の出願・登録状況

なし