

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

令和2年度 総括研究報告書

研究代表者 金 勲

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 項目の研究を進めている。

- 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、櫻田、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、櫻田)

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ている。

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方針である。

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

樺田 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

本年度は2年目として下記の細部項目を遂行した。

- 1) ハウスダスト及びアンケート調査対象住宅の建築・居住環境の把握
- 2) ハウスダスト中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
- 3) ハウスダスト中のリン系難燃剤に関する汚染実態調査
- 4) ハウスダスト中および尿中代謝物を用いた曝露評価と摂取量計算 - リン酸トリエステル類
- 5) 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
- 6) 建材から放散する SVOC の現場測定
- 7) 実住宅における室内空気中 SVOC 濃度の測定
- 8) 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

A.1. ハウスダスト及びアンケート調査対象住宅の建築・居住環境の把握

ハウスダストの収集時に行った建築・住環境及び健康に関するアンケート調査から集計した建築・住環境に関する内容をまとめた。本研究で得られた成果は、一般家屋における生活衛生上の課題を明らかにするものであり、今後の生活衛生行政における施策の立案に寄与するものである。

A.2. ハウスダスト中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-シクロヘキサン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. ハウスダスト中のリン系難燃剤に関する汚染実態調査

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。そこで本研究では、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. ハウスダスト中および尿中代謝物を用いた曝露評価と摂取量計算 - リン酸トリエステル類

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。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気中に拡散する。

揮発性が不高いため、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されている。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.5. 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 (diisononyl 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.6. 建材から放散する SVOC の現場測定

フタル酸及びリン酸エステル類は VOCs に比べて蒸気圧が低いため、室内環境中では空气中でガス状として存在するよりは物体表面やダスト表面にも付着して存在することが多い。また、2-エチル-1-ヘキサノール (2E1H) は、フタル酸ジエチルヘキシル (DEHP) やア

ジピン酸ジエチルヘキシル (DEHA) などの加水分解物であり、室内で検出されたとの報告も多い。

建材からの放散量は、建材中の含有量と関連しており、室内における各種曝露経路からの曝露量の評価や対策につながる情報と考えられる。

本研究では、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、2E1H 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。

A.7. 実住宅における室内空气中 SVOC 濃度の測定

SVOC は蒸気圧が低く吸着性が強いいため、空気中には微量しか存在せず、ほとんどがダストや室内の表面に吸着して存在するとされている。SVOC の摂取アロケーション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する。

そこで、本年度は一般住宅 15 軒 (30 ヶ所) を対象に室内空气中 SVOC 濃度の実態調査を行った。

A.8. 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、室内空气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、室内空气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、室内空气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气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。

B. 研究方法

B.1. ハウスダスト及びアンケート調査対象住宅の建築・居住環境の把握

一般住宅を対象にハウスダストの採取と建築・住環境及び健康状態に関するアンケート調査を行った。

アンケートでは、住宅と室内環境に関する設問としては、周辺環境、家族構成員の属性、建築年数、在住年数、床面積、構造、階数、開口部材料、改築や設備交換、床・壁・天井の内装材、冷暖房換気設備、換気行動、湿度環境と結露、加湿器使用、掃除頻度、ペット、除湿剤・防虫剤、芳香・消臭剤、子供の授乳方法と乳幼児期の病気、家族構成員の健康状態などを設問した。

対象世帯に対して、室内ダストの採取、建築・住環境及び健康状態に関する世帯アンケート、世帯員全員の健康に関する個人アンケート調査を実施した。

B.2. ハウスダスト中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

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. ハウスダスト中のリン系難燃剤に関する汚染実態調査

収集したハウスダストはふるいにかけて粒子径が 100 μm 以下 (<100 μm) 及び 100-150 μm のものを 20 mg 分析に用いた。このとき分析に用いたハウスダストは全 162 サンプルである。各サンプルは、令和元年度報告書「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。

B.4. ハウスダスト中および尿中代謝物を用いた曝露評価と摂取量計算 —リン酸トリエステル類

出生コーホート「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）ingestion）、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.5. 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 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.6. 建材から放散する SVOC の現場測定

一般住宅を対象に、PFS（Passive Flux Sampler）により床面からの放散量を計測した。PFS の拡散距離（床面から吸着剤までの距離）は 0.65 mm とし、拡散断面の直径は 40 mm、捕集剤としては ENVI-18 DSK SPE ディスクを用いた。

対象の住宅は、2019 年度（5 月）は首都圏の 7 軒の住宅の居間と寝室、2020 年度（1 月）は国内の 11 軒の住宅の居間と寝室において、計測を行った。サンプリング時間は 24 時間とした。

内標準入りのジクロロメタン 3 mL で抽出後、GC-MS（Agilent, 5973-6890）で分析を行った。2019 年度の調査の試料については、フタル酸エステル類、リン酸エステル類、2-エチル-1-ヘキサノールなどについて分析した。2020 年度の調査の試料については、フタル酸エステル類について分析した。

B.7. 実住宅における室内空気中 SVOC 濃度の測定

2019 年度研究では、現場での作業性を考慮し、既存の測定に比べて短時間・小流量である 2 時間（捕集量 12L）の空気サンプリング（空気吸引量 12L）で DEHP までの定量が可能であることを報告した。本年度は、15 家屋 30 ヶ所における SVOC の空気中濃度測定を行った。固体吸着—加熱脱着 GC-MS 法を用いて 9 成分に対する定性定量を行った。

B.8. 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。

(倫理面での配慮)

本調査は、国立保健医療科学院研究倫理審査委員会の承認（承認番号NIPH-IBRA#12251）および近畿大学医学部倫理委員会の承認（承認番号31-103）を得て実施している。

C. 研究結果と考察

C.1. ハウスダスト及びアンケート調査対象住宅の建築・居住環境の把握

ダストの収集と同時にを行った建築・住環境アンケート 161 件から項目を選別し集計した。

対象住宅の所在地域は九州から北海道まで大きな偏りはなかった。周囲環境は住宅地が 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。

築年数は 1960 年代から 2019 年まで幅広いが、1990 年代以降の住宅が多く、2000 年代以降に建てられた住宅が 6 割程度あった。居住年数は 1 年未満から 20 年以上までと広く分布するが、10 年未満が 62%と全体的には入居して長くない家庭が多い。また、住居形態は戸建てが 52%、集合住宅が 48%とほぼ半分ずつあった。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。今回の調査対象には集合住宅が多く、木造以外の構造が多くなった要因と考えられる。

壁装としては、壁紙(ビニールクロス 32%、壁紙 57%) が最も多く、次いで板張り 13%であったが、居間と寝室で壁材に大きな違いは見られなかった。床材は居間・寝室ともに木材・フローリングが最も多く見られるが、居間ではカーペットが 40%である反面、寝室ではたたみが 28%、カーペット 14%と居間とは異なる。

機械換気無し 39%、排気のみ 33%、機械式給気・排気 15%、給気のみ機械式 3%となっていた。半数程度が「常に運転(24 時間換気)」、

3 割程度が「必要な時」と回答している。

機械換気以外の換気方法としては、窓・ドア開け換気が 9 割以上、他には空気清浄機や他の部屋の換気扇を使うと答えていた。

加湿器は冬季/居間を中心に半数程度で使っていた。除湿剤、防虫剤、芳香剤、消臭剤などの製品を使用しているという回答は 3 割程度あった。今後、建築・住環境とハウスダスト中 SVOC 濃度、居住者健康との相関について解析を進める。

C.2. 一般住宅における SVOC 成分濃度の実態調査

2 カ年の分析結果(中央値)を成分ごとに比較したところ大きな差は認められなかった。多く含有されていた成分は 100 μm 以下のダストにおいて DEHP と DINP であった。2019 年と 2020 年の含有量 ($\text{ng/mg dust} = \mu\text{g/g dust}$) は、DEHP が 1292 と 1566、DINP が 155 と 256 であった。また、含有量が低いものの DINA、DINCH、DCHP なども検出・定量された。代替物質である DINCH、DEHA、DCHP、DBSb など分析値としては低いが生産物の家屋で検出された。

これらの結果と昨年度報告した先行研究の結果を比較すると、日本国内のハウスダストに含まれるフタル酸エステル成分に大きな変化が認められず、国内のハウスダストは可塑剤の DEHP と DINP が中心であることが確認された。

C.3. ハウスダスト中のリン系難燃剤に関する汚染実態調査

ハウスダストからは PFRs14 成分 (TMP、TEP、TPP、TIBP、TBOEP、TCEP、TEHP、TCEP、TCIPP、TDCIPP、TPHP、TCsP、EHDPhP、CsDPhP) 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検出され、続いて TDCPP ($30 \pm 100 \mu\text{g/g}$) > TCPP ($9.2 \pm 23 \mu\text{g/g}$) > TCEP ($4.8 \pm 18 \mu\text{g/g}$) > TPHP ($1.0 \pm 1.8 \mu\text{g/g}$) 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目指す。

C.4. ハウスダスト中および尿中代謝物を用いた曝露評価と摂取量計算 —リン酸トリエステル類

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。

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.5. 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、DHPH 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.6. 建材から放散する SVOC の現場測定

フタル酸エステル類としては、2019 年度の 7 軒の住宅では DnBP、DiBP、DEHP が全住宅のほとんどの部屋で検出され、放散量(平均±SD)は 1.0±1.0, 1.6±0.79, 7.0±7.3 μg/m²h だった。DINP、DINCH などについては、バックグラウンドが高く、分析法の改善が必要なが示唆された。2020 年度の 9 軒の住宅では DEP、DnBP、DiBP、DEHP が全住宅の全部屋で検出され、平均放散量は 2.5±1.8, 2.1±2.0, 2.1±1.1, 5.4±8.3 μg/m²h だった。

リン酸エステル類である TBEP、TCEP、TCPP が全 7 家屋の 14 室で検出され、平均放散量は 62±18, 4.8±1.7, 40±9.1 μg/m²h だった。

2E1H は全住宅で検出され、平均放散量は 34±10, 23±12 μg/m²h だった。TXIB は 1 部屋を除きすべての部屋で検出し平均放散量は 6.7±7.4 μg/m²h だった。

フタル酸エステル類濃度で物質間の相関はみられなかった。また、DEHP と加水分解生成物の 2E1H の間にも相関はみられなかった。

本研究の 2019 年度研究で報告している空気中のフタル酸エステル類の濃度と比較したところ、濃度と放散量の間にも相関はみられなかった。換気回数の違いや発生源面積の違いによると考えられる。

C.7. 実住宅における室内空气中 SVOC 濃度の測定

実住宅の空気からは DEP、DnPP、DIBP、DBP、DEHP の 5 成分が検出された。気中濃度が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た。DIBP は 2 住宅の 3 ヶ所で $1.94\sim 2.85\mu\text{g}/\text{m}^3$ と高く、DBP、DEHP、DEP も最大値は $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていた。一方、DnPP は 15 軒のうち 2 軒のみから検出され、濃度も $0.08\sim 0.20\mu\text{g}/\text{m}^3$ と低かった。今回対象とした SVOC 成分は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。

呼吸量及び体重から考えると、成人男性に比べ乳児が室内空気より受ける影響は約 2.2 倍大きくなる。乳児の TDI に対する摂取割合は、DIBP に対する平均摂取割合が 5.4%、DBP は 4.4%、DEHP は 0.8%であったが、最大値は DIBP 27.3%、DBP 14.3%、DEHP 2.0%と DIBP 及び DBP が高くなることもある。他の物質は TDI が比較的高いため割合としては小さかった。

今後は、住宅測定の数を増やしてより詳しい実態調査を行い、経口・経皮・吸入による全摂取量に対する吸入の寄与を把握する必要がある。

C.8. 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。

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と提案、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ている。本年度は以下 8 項目について研究を遂行した。

- 1) ハウスダスト及びアンケート調査対象住宅の建築・居住環境の把握
- 2) ハウスダスト中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
- 3) ハウスダスト中のリン系難燃剤に関する汚染実態調査
- 4) ハウスダスト中および尿中代謝物を用いた曝露評価と摂取量計算 —リン酸トリエステル類
- 5) 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
- 6) 建材から放散する SVOC の現場測定
- 7) 実住宅における室内空气中 SVOC 濃度の測定
- 8) 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

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分析を行い、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。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ている。

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方針である。

E. 研究発表

1. 論文発表

1) Glorennec P, Shendell DG, Rasmussen PE, Waerber 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

