

分担研究報告書

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
平成28年度～29年度 総合研究報告書

室内環境中のVOCs及びSVOCの分析

研究分担者	稲葉 洋平	国立保健医療科学院
研究分担者	金 勲	国立保健医療科学院
研究分担者	戸次 加奈江	国立保健医療科学院
研究分担者	緒方 裕光	女子栄養大学
研究分担者	樺田 尚樹	国立保健医療科学院
研究協力者	内山 茂久	国立保健医療科学院

研究要旨

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として添加され、沸点が高く SVOC に分類される物質が多い。床材、壁紙など建材、玩具や子供用品、各種容器や化粧品など生活用品に至るまで我々の生活の中で幅広く使われている。SVOC の多くは蒸気圧が低い空気中に存在しにくく物体表面やダスト表面などに付着して存在しているとされ、フタル酸類は内分泌かく乱の可能性があり、子供の喘息やアレルギー症にも関連性があるとされている。

本研究はダスト中のフタル酸エステル分析法を確立し、初年度の調査では、10家屋のダストを4種類のダスト (<100 μm , 100-250 μm , 250-500 μm , 500 μm <) に分画し、ダストの均一性を評価するため各分画ごとに7回分析し、粒径ごとのばらつきを評価した。さらに、フタル酸エステル以外にも、SVOCとして、ガス状で空気中に存在する2-エチル-1-ヘキサノール (2E1H) 及びテキサノールについても、パッシブサンプラーを用いた新たな捕集法により、実態調査を実施した。

その結果、粒径が<100 μm , 100-250 μm のダストはばらつきが小さかった。一方で、500 μm <のダストは、繊維状になっているせいか、フタル酸エステル濃度のばらつきは、大きくなった。また、先行研究の報告においても100 μm 以下のダストがヒトの曝露には適しており、100-250 μm のダストの寄与率は小さいものの検討する必要があるとされている。そこで最終年度は、69家屋のダストを回収し、100 μm 以下と100-250 μm のダストに分粒した。このダストを昨年度確立したLC/MS/MSを使用した9種類のフタル酸エステル分析法で実態調査を行った。本研究では昨年度確立したフィルターを使用したダスト捕集を行ったが、フタル酸エステル分析に必要なダスト量が集まった家屋数は25となった。本研究のフィルターダスト中央値は、リビングが155 mgで寝室が70.5 mgであった。ダストと分粒には、200 mg以上のダストは必要であるため回収量は少なかった。今後の研究では、数日間のダスト捕集などの改良が必要であることが示唆された。そこで、分析に供するだけのフィルターダストが得られない家屋については掃除機のダストを使用し、フィルターダストと掃除機ダストの両方の分析を行った。次にフタル酸エステルの検出率は、分析法が高感度化されたため先行研究と比較すると上昇した。フタル酸エステルの分析結果は、DEHPが若干高値であるものの、過去の国内研究と比較すると同等の分析値となった。DNOPとDIDPの分析値はこれまで国内では報告されていないため、海外の報告と比較すると同等または若干低値であった。最後に、100 μm 以下と100-250 μm のダスト中フタル酸エステル量を比較したところ、DMP, DBP, DEHP, DINP, DNOPに有意差が確認され、100-250 μm のフタル酸エステル

濃度が高い傾向にあった。この結果は、これまでの先行研究においても報告されていない結果であるため、その要因が家屋の床材、カーペット使用の有無、築年数との関係性についても詳細に統計解析を進める必要がある。

また、拡散サンプラーによる室内空気中VOCs及びSVOCに関する測定結果からは、簡易かつ精度及び安定性の面でも優れた、高感度な測定方法として、2E1Hやテキサノールを初め、その他のSVOCに関する測定法として有効であることが示唆された。今後は、調査件数を増やし、統計的なデータを得られるよう継続した調査研究の実施が必要と考えられた。

A 目的

半揮発性有機化合物 (Semi Volatile Organic Compounds ; SVOC) は、ホルムアルデヒド・アセトアルデヒドのようなVVOC (Very Volatile Organic Compounds ; 高揮発性有機化合物)、ベンゼン・トルエンのようなVOC (Volatile Organic Compounds ; 揮発性有機化合物) よりも沸点が高い(240~400℃)物質である。SVOCの多くは蒸気圧が低いため空気中に存在しにくく物体表面やダスト表面などに付着して存在しているとされている。SVOCの中でも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として添加されているフタル酸エステルは、子供の喘息やアレルギー症に関係が疑われている (1) - (3)。このフタル酸エステル類は、平成22年9月6日付厚生労働省告示第336号によってフタル酸ビス(2-エチルヘキシル) (DEHP)、フタル酸ジイソノニル (DINP) を含む6物質「DEHP, DINP, フタル酸ジ-n-ブチル(DBP), フタル酸ベンジルブチル(BBP), フタル酸ジイソデシル(DIDP), フタル酸ジ-n-オクチル(DNOP)」(Table. 1)へ規制の範囲を拡大した (Table 1)。その対象範囲は「乳幼児が接触することによりその健康を損なうおそれがあるものとして厚生労働大臣の指定するおもちゃ」とし、規制対象とするフタル酸エステルの限度値については0.1%となっている。このフタル酸エステルは、EU, 米国においても規制の対象となっている。

これらの化学物質はおもちゃだけでなく、床材や壁紙、什器、化粧品等あらゆる家庭用品に使われ、その国内出荷量が2016年は20.4万tonと膨大である (4)。その内訳は、フタル酸エステルの

DEHPが11.6万, DBPが0.1万, DIDPが0.3万, DINPが7.7万ton, その他のフタル酸が0.9万tonとなっており、ここ5年間の出荷量に大きな変動はない (4)。フタル酸類では特にDEHPとDINPの出荷量が多く、この2成分がフタル酸系可塑剤の9割を占めている。このような状況から、乳幼児の居る家庭においておもちゃ以外にも床材、壁紙と家庭用品からフタル酸エステル類が放散・ブリーディングし、Hand-to-mouthによる曝露が懸念されている。これまでに日本におけるダスト中フタル酸エステル分析は行われているが、おもちゃの規制対象となった6成分を同時分析した報告は少ない。

ダストのフタル酸エステル分析は、「ポリ塩化ビニルを主成分とする合成樹脂製おもちゃにおける6種類のフタル酸エステル試験法」においてガスクロマトグラフ質量分析装置 (GC/MS) を採用していることからGC/MSの分析が大半である (5)。最近、高速液体クロマトグラフタンデム型質量分析装置 (LC/MS/MS) が広く普及してきたことから、食品、水中のフタル酸エステル分析にはLC/MS/MSも採用されるようになってきた。LC/MS/MSの利点は短時間で高感度分析が可能である。しかし、LC/MS/MSでフタル酸エステル分析を実施する場合は、移動相の緩衝液や有機溶媒にフタル酸エステルが含まれているために、コンタミネーションを除去しておく必要がある。

そこで初年度は、LC/MS/MSを使用し規制のある6種類のフタル酸エステル及びDBPの代替物質であるフタル酸ジイソブチル (DIBP)、フタル酸ジエチル (DEP)、フタル酸ジメチル (DMP) の9成分同時分析法の確立を目的とした。

また、ダストの粒子径範囲は数mmから数 μm

と範囲が広く、これまでの先行研究では63 μm 以下を分析対象にしているもの(6)もあれば、米田らはヒトの手に付着した表層土壌の粒径分布の結果を調査したところ、90%は100 μm 以下であったと報告している(7)。日本の住宅は内履きと外履きを分けていることが多いため小石や土壌のような粒子を直接持ち込むことは少ないことは西欧と異なる。そこで、本研究では国内における実態を把握するため、ダストを100 μm 未満、100-250 μm 、250-500 μm と500 μm 以上の4つに分粒し、粒径別フタル酸エステル濃度を分析し、先行研究との比較を行うことも目的とした。

最終年度は、国内の69家屋についてダストを回収し、100 μm 未満、100-250 μm のダスト中フタル酸エステルの分析と先行研究との比較を目的とした。

さらに、本研究では、これまでシックハウス問題に関する室内空気汚染物質として研究が進められてきた揮発性有機化合物(Volatile Organic Compounds: VOC)についても、ライフスタイルの多様化や新たな代替物質の使用に伴う空気環境の変化をモニタリングすると共に、SVOCである2-エチル-1-ヘキサノール(2E1H)及びテキサノールの測定を目的とした調査を実施した。

B 方法

B-1 ハウスダストのフタル酸エステル分析

(1) 試薬

フタル酸ジエチル(DEP)、フタル酸ジメチル(DMP)、フタル酸ブチルベンジル(BBP)、フタル酸ジ(2-エチルヘキシル)(DEHP)、フタル酸ジイソノニル(DINP)、フタル酸ジブチル(DBP)、フタル酸ジ-n-オクチル(DNOP)、フタル酸ジイソデシル(DIDP)は、これら6成分を含むフタル酸エステル類混合標準液IIIとフタル酸ジイソブチル(DIBP)は関東化学から購入した。フタル酸ジエチル- d_4 (DEP- d_4)、フタル酸ジメチル- d_4 (DMP- d_4)、フタル酸ブチルベンジル- d_4 (BBP- d_4)、フタル酸ジ(2-エチルヘキシル)- d_4

(DEHP- d_4)、フタル酸ジブチル- d_4 (DBP- d_4)、フタル酸ジ-n-オクチル- d_4 (DNOP- d_4)は、和光純薬から購入した。メタノール、アセトニトリルは、関東化学のフタル酸エステル分析用を使用した。実験に使用した純水は、採取口にEDS-Pakを装着したMillipore製のMilli-Q Integral 3システムを使用した。

(2) ダストの前処理

ダストは、電磁振動式篩分器MS-200(伊藤製作所製)を使用し、100、250、500 μm の3種類のふるいによって分粒した。初年度は、得られた4種類のダスト(<100 μm 、100-250 μm 、250-500 μm 、500 μm <)を分析し、最終年度は得られた2種類のダスト(<100 μm 、100-250 μm)は、それぞれ5 mgを10 mL容試験管に入れ、アセトニトリル 1 mLを添加し超音波抽出を20分間行った。得られた抽出液は、0.20 μm フィルターを通過後、10倍希釈しLC/MS/MSへ供した。

(3) LC/MS/MSによるフタル酸エステル類の分析

フタル酸エステル分析には、Waters社製のACQUITY UPLCを使用した。分析用カラムは、ACQUITY UPLC BEH C18カラム(2.1 \times 50 mm, 1.7 μm , Waters社製)を使用した。カラムオープン温度は40°Cとし、試料注入量は2.5 μL とした。また、移動相には100mMギ酸アンモニウム溶液(A液)とメタノール(B液)を用いた。送液プログラムは流速を0.35 mL/分とし、0-0.5分(A液:80%, B液:60%), 0.5-3.5分(A液:25%, B液:75%), 3.5-7.5分(A液:5%, B液:95%), 7.5-11.5分(A液:5%, B液:95%), 11.5-13.5分(A液:40%, B液:60%)と設定し、分析時間は20分とした。質量分析にはタンデム四重極(トリプル四重極)質量分析計Vevo TQ-S(Waters社製)を用いた。イオン化モードはESIポジティブを用い、キャピラリー電圧は2.0 kVとし、コリジョンエネルギーとコーン電圧は分析対象物質ごとに条件を設定した(7)。

(4) ハウスダスト試料

初年度は、10家屋の掃除機のダストを回収し、フタル酸エステル類の分析に供した。なお、この研究では篩がけ後のダスト試料の均一性についても評価を行うため、1つのダスト試料について7回の分析（抽出→分析）を行った。

最終年度の家庭のダストは、昨年度確立したPTFE素材のフィルターを各家庭の掃除機に装着後、居間、寝室でそれぞれを捕集していただいた。また、家庭によってはダストが十分回収することが困難な家屋も予想されたため、すでに捕集されている掃除機のダストも回収した。参加は、70家屋であり、得られたダスト試料は計69家屋となった。そして篩がけが可能家屋数は64であった。フィルターで分析可能なダストが回収された家屋数は、25家屋で篩がけ可能家屋数の39%であった。なお、本研究は国立保健医療科学院研究倫理審査の承認を受けて実施した（NIPH-IBRA#12156）。

B-2. 室内空气中フタル酸エステル濃度の分析

7住宅を対象にリビング及び主寝室における空気のスAMPLINGを行った。スAMPLING方法は、VOC捕集用のTenax-TA充填捕集管及びVOCs捕集に一般的に使用される小流量のミニポンプを用いて、流量80 mL/minで8時間（総流量38.4L）捕集し、加熱脱着-GC-MSにより分析した。

B-3 拡散サンプラーにおけるVOCs及びSVOCの分析

一般住宅11軒を対象に、2017年12月～2018年1月の間の1週間、以下に示す4種類の拡散サンプラーを用いた空気捕集を行った。VOCs測定用拡散サンプラー（DSD-CX）（SVOC；2E1H，テキサノールを含む）、オゾン及びカルボニル化合物同時測定用拡散サンプラー（DSD-BPE/DNPH）、酸性ガス測定用拡散サンプラー（DSD-TEA）、塩基性ガス測定用拡散サンプラー（DSD-PO4）。

C 結果及び考察

C-1 ハウスダストのフタル酸エステル分析

(1) LC/MS/MSによるフタル酸エステルの分析濃度範囲

分析対象のフタル酸エステル類は、実験室からのコンタミネーションが生じる成分である。本研究では、超純水は、フタル酸エステルを除去するED-Pakを設置し、実験器具、抽出液とLC/MS/MS移動相は、フタル酸エステル類を可能な限り除去したメタノール、アセトニトリルを使用して実験を行った。分析対象とした9種類のフタル酸エステル類の定量範囲は、0.5-250 ng/mLであった（Table 2）。これまでGC/MSの分析時にピークブロードが報告されたDINPとDIDPは、LC/MS/MSで分析するとピークブロードが抑制され、10及び0.5 ng/mLから定量が可能となった。また、本分析法は低濃度の分析が可能となったため、ダストからの抽出液を希釈操作のみでLC/MS/MSへ注入できる。さらにLC/MS/MS分析時間が20分と短縮されたため多くの試料分析を実施することが可能となった。

(2) ダストのフタル酸エステル類の分布

10家屋のダストを自動ふるい装置に供して、粒径ごとに分画を行ったところ、Fig. 1に示すようになり、500 μ m以上は埃や若干の砂が確認された。250-500 μ mは、ほとんどダストが確認されなかった。100-250 μ mと100 μ m以下は、どちらも均一な粒子となっていた。この4分画したダストをそれぞれフタル酸エステルの分析に供した。なお、この実験ではDMP、DEPの分析は実施していない。

今回は、篩をかけることで、試料の均一化をめざした。ダスト中フタル酸エステル濃度のばらつきは、粒径が低下すると小さくなると思った。結果としてはその傾向が認められたが、7回測定のうち1度は高濃度になる試料も存在した（Table 3）。BBP、DIBP、DBP、DEHP、DINPは全ての家屋で検出され、DIDPとDNOPは家屋によって

検出・未検出があった。測定対象とした10家屋ともDEHPとDINPの量が高く、我が国におけるフタル酸エステル出荷量と同様の傾向であった。またBBPとDIBPは国内製造が行われていないことから、ダスト1gあたりの含有量も少なく、海外から輸入された家庭用品または輸入材料をもとに製造された家庭用品が発生源あることが考えられた。

ダスト総重量に対する成分としては、DEHPとDINPが殆どであったが、DIDPの高い家屋が1つあった。国内可塑剤出荷量に比べて妥当な成分種と判断されるが、住宅、家庭用品による違いが大きいことが分かる。

今回は10家屋での調査ではあるが、100 μm 以下と100-250 μm のフタル酸エステル量は金らの報告とは異なり100 μm 以下が高い傾向とはならなかった。いずれにしても10家屋の分析結果であるため今後は、家屋数を増やして検討を進める必要がある。

(3) フィルターを利用したダストの回収

本研究では、参加者に初年度に確立したダスト捕集法をリビングと寝室でそれぞれ実施してもらった。参加70家屋中64家屋からダストが回収された（フィルターダスト及び掃除機ダストのいずれかを回収）。得られたフィルターからダストを回収したところ、篩がけ終了後、フタル酸エステルの分析が可能な家屋は25となり、ダストが回収された家屋の39%にとどまった。これは、参加者の掃除の頻度によってダスト回収率に影響していると考えられる。本研究のフィルターダスト中央値は、リビングが155 mgで寝室が70.5 mgであった。ダストと分粒には、200 mg以上のダストは必要であるため回収量は少なかった。今回の研究では、フィルターでのダスト捕集前の掃除についての制約や、必要ダスト量の設定も儲けることもせず実施した。今後は、フィルターでダストを捕集する場合は、2-3日間は掃除をしない日を設けるなどの制約が必要となる。家屋のダストは、

日々の生活によって大きく変動する。そのため家屋の平均的なダストを考えると1ヶ月間のダストを回収し分析・評価することも課題である。

(4) ダストのフタル酸エステル類の検出率

本研究の分析結果をTable 4に示す。測定対象家屋のフタル酸エステル検出率は、DBP, DIBP, DEHP, DINP, DIDPが100%であった。一方で、DNOPは検出率が低く、13.6と36.5%であった。本研究の対象家屋ではDNOPを使用している家庭用品、床材などが少ないと考えられる。次に、国内の先行研究と比較するとBBP, DBP, DIBP, DEHP, DINPの検出率は、同等であった(2)。しかし、DMPとDEPは分析感度が向上しているため検出率も5.5から64.4%、16.4から84.7%と大幅に上昇した(2)。本研究で使用したLC/MS/MS法の定量下限値が0.5 ng/mLであるのに対し、従来のGC/MS法は数から数十ng/mLと感度が10倍以上高いことも影響している。一方で、フタル酸エステル類の濃度分布に差があり、今回採用したLC/MS/MS法はワイドレンジでの分析が難しいため、1つの前処理試料を2度分析する必要が生じた。しかしながら、低濃度領域のフタル酸エステル分析が可能になったことで、これまでリスク評価が行われていないフタル酸エステル類についても応用が期待される。

(5) ダストのフタル酸エステルの分布

フィルターで捕集したダストと掃除機で回収されたダストの分析結果を統合することが可能であるかを評価した。その結果、ダスト中のフタル酸エステルに有意差が認められなかった。そこで本研究ではこの2つの分析結果を統合し、評価を進めた。

本研究の分析結果と先行研究の分析結果をTable 5に示した。本研究のダスト中DBP中央値は、100 μm 以下が18.5 $\mu\text{g/g}$ 、100-250 μm のダストが17.7 $\mu\text{g/g}$ であった。この分析結果は、先行研究の18.1 (6)、16.6 $\mu\text{g/g}$ と同等の結果となった

が海外では77, 87 $\mu\text{g/g}$ と高値が報告されている(8,9)。これはBBPとDIBPについても同様の傾向が認められた。次にダスト中DINP中央値は, 100 μm 以下が138 $\mu\text{g/g}$, 100-250 μm のダストが188 $\mu\text{g/g}$ であった。この分析結果は, 先行研究の139 (2), 129 $\mu\text{g/g}$ (10) と同等の結果となった。ダスト中DEHP中央値は, 100 μm 以下が1381 $\mu\text{g/g}$, 100-250 μm のダストが1865 $\mu\text{g/g}$ となった。この分析結果は, 国内先行研究の810, 1100 $\mu\text{g/g}$ より若干高値となった。一方で海外の報告と比較すると高値となった(11,12)。金らの報告によると, ダスト中のDEHPは床材の違いによって濃度が変動し, 特にPVCを使用している家屋の濃度が高いと報告されている(6)。今回, PVC床材を使用している家屋数は, 2のため比較検討は困難であった(90%以上がフローリングであった)。今後は床材による違いについても評価を進めて行く計画である。

(6) 粒径別のダスト中フタル酸エステルの比較

本研究は, 過去の先行研究(6)をもとに手に付着するダストの粒径サイズは100 μm 未満は最低限調査が必要で, 100-250 μm の粒径については寄与率が小さいが, リスク評価で無視して良いか検討する必要があると考え, 100 μm 以下と100-250 μm のダストに分粒し, 2区分の対応するダストが存在するフタル酸エステルの分析結果を比較した。一般的に粒径の小さいダストの方が表面積が大きくなるため, 1 gあたりのフタル酸エステル量は高くなる, または有意差がないと考えていた。しかし結果は, DMP, DBP, DEHP, DINP, DNOPに有意差が確認され, 100-250 μm のフタル酸エステル濃度が高い傾向にあった。本研究の100-250 μm のダストには, フタル酸エステルを含むプラスチックの破片等が含まれているために高くなったとも考えられる。本研究のダスト粒径別の分析結果は, 日本人のダストによるフタル酸エステル曝露評価を行う際に, 100 μm 以下と100-250 μm のどちらを採用するかで結果は異なるこ

とが予想される。また本研究では, DEHPとDINPについては, 区分別の中央値においても濃度差が確認できることから, 今後, 家屋の床材, カーペット使用の有無, 築年数との関係性についても詳細に統計解析を進める計画である。

後の検討課題

今後は, ダスト試料だけではなく, 空気中のフタル酸エステル類の高感度分析法を確立し, 我が国の家屋におけるフタル酸エステル分析法および曝露評価法を確立し, 大規模な実態調査を実施していきたい。

C-2 室内空気中フタル酸エステル濃度の分析

全ての住宅で検出された, DBPとDEHPの濃度比は様々であるが, 住宅によってDBPが優勢な所とDEHPが優勢に検出される住宅が存在した。空気濃度としては微量ではあるが, 周辺環境, 建築内装材や生活用品の違いによって, 成分比にも差が現れると推定された。一方, 同じ住宅においてリビングと主寝室の濃度差が大きくないのは, 空気中SVOC濃度は内装材や生活用品の影響を短時間で直接的に受けない或いは空気中濃度が低すぎるため建材や用品から放散されても空気濃度としては現れないと解釈することができる。このような不確実性に関しては続けて検討していく必要が考えられた。

さらに, 1日の呼吸量から, 室内空気を介したフタル酸エステル成分の平均摂取量はDBP 5.8 $\mu\text{g/day}$, DEHP 4.7 $\mu\text{g/day}$ となることが分かった。

C-3 拡散サンプラーにおけるVOCs及びSVOCの分析

従来の室内空気のモニタリングは, 24時間以下で実施されているものが殆どであるが, 日々の生活の中で変化する化学物質濃度について, より平均化した濃度を求めるためにも, 今回新たに1週間の連続した捕集期間を設定し, 調査を実施することとした。測定の結果をTable 6に示す。

VOCs及びSVOCs

VOCsの中でも、特に*p*-ジクロロベンゼンは、EとFの住宅で高濃度検出された。この要因として、室内で同時期に防虫剤などを使用していたことが予想された。また、これらの濃度は、厚生労働省が提示する指針値との比較からも問題のあるレベルではなかったものの、同じ住宅のTVOCに関して、暫定目標値（400 µg/m³）を超える要因にもなっていることから、住宅内での改善が必要であると考えられる。

また、SVOCとして今回新たに対象物質に加えた2E1H及びテキサノールについては、これまで24時間での調査結果からは、検出されないケースが殆どであったものの、サンプリング期間を1週間と長くすることで、定量範囲内で検出することが可能となった。また、検出された濃度については、改訂されたガイドラインの数値（ガイドライン指針値；2E1H（130 µg/m³）、テキサノール（240 µg/m³））を超える住宅は検出されなかった。

アルデヒド類

指針値が定められているホルムアルデヒド（100 µg/m³）及びアセトアルデヒド（48 µg/m³）については、住宅によって若干の変動が見られたものの、指針値を超える住宅は検出されなかった。またその他のアルデヒド類についても、特異的に高濃度検出される住宅は検出されなかった。

二酸化窒素

対象とした一般住宅の中で、B（124.9 µg/m³）とJ（170.5 µg/m³）において、環境基準値（77 µg/m³）を超過する数値が確認された。一般に、室内での二酸化窒素の発生源は、燃焼による暖房器具やガスコンロによるものであるとされている（文献2, 3）。実際に、室内空気の捕集期間中は、冬季であったことから、基準値を超過した住宅では、燃焼を伴う暖房器具の使用やガスコンロでの調理が行われていたことを確

認しており、これらはが室内濃度に影響しているものと思われた。

アンモニア

対象とした住宅の濃度範囲は15.4～143.8 µg/m³であり、100 µg/m³以上のアンモニアが検出されたBとCの住宅では、発生源として高い寄与があるとされる、ペットの飼育は行われておらず他の要因が考えられた。

オゾン

いずれ住宅とも基準値の超過は見られず、1.2～17.2 µg/m³の濃度範囲であった。一般に、オゾンは室内よりも室外に高濃度存在するものであり、室内濃度は換気などによる室外からの影響を受けやすいものとされている。（文献4）。今回は、室内での測定のみ実施したが、今後は、屋外からの影響も考慮し、室内と屋外との平衡した測定から考察を行う必要があると思われた。

D 結論

本研究では、ダスト中のフタル酸エステル分析法を確立し、初年度の調査では、10家屋のダストを4種類のダスト（<100 µm, 100-250 µm, 250-500 µm, 500 µm<）に分画し、ダストの均一性を評価するため各分画ごとに7回分析し、粒径ごとのばらつきを評価した。その結果、粒径が<100 µm, 100-250 µm のダストはばらつきが小さくなった。一方で、500 µm<のダストは、繊維状になっているせいか、フタル酸エステル濃度のばらつきは、大きくなった。また、先行研究の報告においても100 µm 以下のダストがヒトの曝露には適しており、100-250 µm のダストの寄与率は小さいものの検討する必要があるとされている。そこで最終年度は、69家屋のダストを回収し、100 µm以下と100-250 µmのダストについて分析を行った。このダストを昨年度確立したLC/MS/MSを使用した9種類のフタル酸エステル分析法実態調査を行った。本研究では昨年度確立したフィルターを使用したダスト捕集を行ったが、フタル酸エステ

ル分析に必要なダスト量が集まった家屋数は25となった。今後の研究では、数日間のダスト捕集などの改良が必要であることが示唆された。次にフタル酸エステルの分析結果は、過去の国内研究と比較すると同等の分析値となった。一部、DEHPの分析結果は、若干高値であった。DNOPとDIDPの分析値はこれまで国内では報告されていないため、海外の報告と比較すると同等または若干低値であった。最後に、100 µm以下と100-250 µmのダスト中フタル酸エステル量を比較したところ、DMP, DBP, DEHP, DINP, DNOPに有意差が確認され、100-250 µmのフタル酸エステル濃度が高い傾向にあった。この結果は、これまでの先行研究においても報告されていない結果であるため、その要因が家屋の床材、カーペット使用の有無、築年数との関係性についても詳細に統計解析を進める必要がある。

また、空气中フタル酸エステル類の測定においては、VOCと比較して、SVOC濃度は低い傾向が見られたが、今後は、住宅における空気測定の数を増やしてより詳しく現状把握を行い、経口・経皮・吸入による全摂取量に対する吸入の寄与を明らかにする必要性が考えられた。

今回はDINP及びDIDPの分析が出来なかったが、DINPはDEHPと共に可塑剤として最も出荷量（使用量）が多い物質であることから、分析法に関しても引き続き研究が必要である。

さらに、本研究で実施した拡散サンプラーによる長期捕集方法は、簡易かつ精度及び安定性の面でも優れた、高感度な測定方法として、2E1Hやテキサノールを初め、その他のSVOCに関する測定法として有効であることが示唆された。今後は、調査件数を増やし、統計的なデータを得られるよう継続した調査研究の実施が必要と考えられる。

E 引用文献

(1) Kolarik B, Naydenov K, Larsson M, et.al. The association between phthalates

in dust and allergic diseases among Bulgarian children. *Environ Health Perspect.* 2008 ;116:98-103.

(2) Ait Bamai Y, Shibata E, Saito I, et.al. Exposure to house dust phthalates in relation to asthma and allergies in both children and adults. *Sci Total Environ.* 2014;485-486:153-63.

(3) Larsson M, Hägerhed-Engman L, Kolarik B, et al. PVC--as flooring material--and its association with incident asthma in a Swedish child cohort study. *Indoor Air* 2010; 20:494-501.

(4) 可塑剤工業会. 生産出荷・統計データ 可塑剤国内出荷実績. (<http://www.kasozai.gr.jp/data/toukei-pdf/2017-03syuka.pdf> 2017年5月8日 接続)

(5) 厚生労働省. ポリ塩化ビニルを主成分とする合成樹脂製おもちゃにおける6種類のフタル酸エステル試験法. 食安発0906第4号 平成22年9月6日 おもちゃにおけるフタル酸エステルの試験法について.

(6) 金炫兌, 田辺新一. 住宅における空気・ハウスダスト中SVOC濃度測定. *日本建築学会環境系論文集* 2016;81(720): 199-207.

(7) 米田稔, 辻貴史, 坂内修, 森澤眞輔. 子供を対象にした公園土壌直接摂取のリスク評価における粒径の影響. *環境工学研究論文集* 2005;42:29-38.

(8) Cao Z, Yu G, Chen Y, et. al. Mechanisms influencing the BFR distribution patterns in office dust and implications for estimating human exposure. *J Hazard Mater.* 2013; 15:252-253:11-18.

(9) Kang Y, Man YB, Cheung KC, Wong MH. Risk assessment of human exposure to bioaccessible phthalate esters via indoor

dust around the Pearl River Delta.
Environ Sci Technol. 2012;46:8422-30.

(10) Abb M, Heinrich T, Sorkau E,
Lorenz W. Phthalates in house dust.
Environ Int. 2009;35:965-70.

(11) Guo Y, Kannan K.
Comparative assessment of human
exposure to phthalate esters from house
dust in China and the United States.
Environ Sci Technol. 2011;45:3788-94.

(12) Langer S, Weschler CJ,
Fischer A, Bekö G, Toftum J, et al.
Phthalate and PAH concentrations in dust
collected from Danish homes and daycare
centers. Atmos. Environ. 2010;44: 2294-
2301.

F 研究発表

稲葉洋平, 金勲, 戸次加奈江, 林基哉, 樺田尚樹.
ハウスダスト中フタル酸エステルの粒径分布.
第54回全国衛生化学技術協議会年会 ;
2017.11.21-22 ; 奈良. 同抄録集. p.204-205.

稲葉洋平, 金勲, 戸次加奈江, 内山茂久, 林基哉,
樺田尚樹. ハウスダストの粒径別フタル酸エス
テルの分析. 第88回日本衛生学会学術総会 ;
2018.3.22-24 ; 東京. 同抄録集. PS69.

G 知的財産権の出願・登録状況

なし

Table 1 測定対象とした9種類のフタル酸エステル

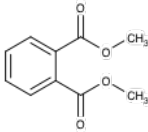
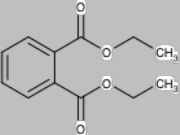
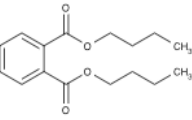
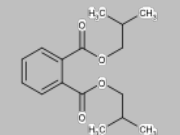
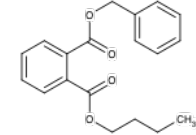
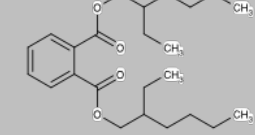
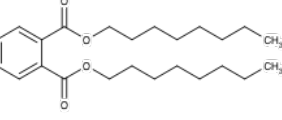
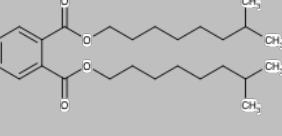
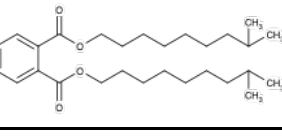
フタル酸エステル	略号	Cas. No	化学式	M.W.	構造式	使用用途
フタル酸ジメチル	DMP	131-11-3	C ₁₀ H ₁₀ O ₄	194.184		醋酸セルロース 希釈剤
フタル酸ジエチル	DEP	84-66-2	C ₁₂ H ₁₄ O ₄	222.24		ポリスチレン 化粧品原料
フタル酸ジ-n-ブチル	DBP	84-72-2	C ₁₆ H ₂₂ O ₄	278.34		加工性向上添加剤 (塗料、接着剤)
フタル酸ジイソブチル	DIBP	84-69-5	C ₁₆ H ₂₂ O ₄	278.34		
フタル酸ベンチルヘキシル	BBP	85-68-7	C ₁₉ H ₂₀ O ₄	312.37		加工性向上添加剤 (接着剤、シーリング材)
フタル酸ジ(2-エチルヘキシル)	DEHP	117-81-7	C ₂₄ H ₃₈ O ₄	390.56		汎用可塑剤 (電線被覆、壁紙、フィルム、血液バッグ)
フタル酸ジ-n-オクチル	DNOP	117-84-0	C ₂₄ H ₃₈ O ₄	390.56		低揮発性可塑剤 (電線被覆、フィルム)
フタル酸ジイソノニル	DINP	28553-10-0	C ₂₆ H ₄₂ O ₄	418.61		汎用可塑剤 (電線被覆、壁紙、フィルム)
フタル酸ジイソデシル	DIDP	26761-40-0	C ₂₈ H ₄₆ O ₄	446.66		低揮発性可塑剤、絶縁性改良添加剤 (耐熱電線、合成レザー)

Table 2 9種類のパタル酸エステルの検量線と定量範囲

フタル酸エステル	検量線	相関係数 r^2	定量範囲 ng/mL
DMP	$y=0.013736+0.000855203x$	0.999	0.5 - 250
DEP	$y=0.0419765+0.0140218x$	0.999	0.5 - 250
DBP	$y = 0.103455x+0.0548437$	0.981	2.5 - 100
DIBP	$y = 0.0924732x+0.022812$	0.995	0.5 - 50
BBP	$y = 0.0781715x+0.00276658$	0.999	0.5 - 50
DEHP	$y = 0.0158592x+0.00454349$	0.996	0.5 - 100
DNOP	$y = 0.003661x+0.000340959$	0.999	1 - 250
DINP	$y = 0.00702715x-0.0306312$	0.999	10 - 250
DIDP	$y = 0.00848145x-0.000504462$	0.998	0.5 - 250

Table 3 10家屋のダスト中フタル酸エステルの粒径別の分布 1

A																			
Amounts (µg/g)																			
粒径別 (µm)	分析回数	BBP		DIBP		DBP		DEHP		DINP		DIDP		DNOP		DMP		DEP	
		Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	
<500	5	12.1 ± 0.9	3.5 ± 0.6	14.1 ± 2.3	640 ± 96	469 ± 48	7.9 ± 12.1	0.4 ± 0.9	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
250-500	5	23.5 ± 6.2	4.9 ± 1.0	18.4 ± 2.6	1,076 ± 517	724 ± 106	4.7 ± 1.4	0.6 ± 1.4	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100-250	5	24.9 ± 1.2	3.6 ± 1.1	21.9 ± 2.3	1,145 ± 95	848 ± 32	4.7 ± 0.2	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100<	5	20.5 ± 0.6	2.0 ± 1.2	20.8 ± 1.6	1,274 ± 86	509 ± 304	3.9 ± 2.3	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

B																			
Amounts (µg/g)																			
粒径別 (µm)	分析回数	BBP		DIBP		DBP		DEHP		DINP		DIDP		DNOP		DMP		DEP	
		Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	
<500	5	88.3 ± 4.1	3.4 ± 0.7	149 ± 28.2	8,776 ± 2,237	320 ± 424	3.0 ± 1.3	<LOQ	0.5 ± 0.1	1.0 ± 0.3	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
250-500	5	80.4 ± 4.4	7.9 ± 1.5	291 ± 140	13,849 ± 1,568	116 ± 95	2.6 ± 1.5	<LOQ	0.9 ± 0.2	3.4 ± 1.1	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100-250	5	123 ± 7.5	9.8 ± 1.0	289 ± 20.7	8,639 ± 667	162 ± 38	2.6 ± 0.5	<LOQ	0.9 ± 0.2	13.2 ± 22.9	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100<	5	136 ± 2.9	6.9 ± 0.5	212 ± 10.0	7,733 ± 251	203 ± 13	3.7 ± 1.0	<LOQ	0.5 ± 0.1	1.9 ± 2.0	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

C																			
Amounts (µg/g)																			
粒径別 (µm)	分析回数	BBP		DIBP		DBP		DEHP		DINP		DIDP		DNOP		DMP		DEP	
		Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	
<500	5	1.4 ± 0.2	7.6 ± 2.2	27.4 ± 3.4	1,759 ± 219	256 ± 219	260.5 ± 30.8	0.2 ± 0.5	<LOQ	0.1 ± 0.1	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
250-500	5	1.6 ± 0.5	9.7 ± 1.6	40.6 ± 9.4	2,850 ± 739	304 ± 274	267.0 ± 14.7	0.4 ± 0.8	0.1 ± 0.3	0.4 ± 0.6	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100-250	5	1.2 ± 0.3	9.5 ± 1.2	75.8 ± 29.1	4,694 ± 911	330 ± 42.6	243.8 ± 38.0	<LOQ	<LOQ	0.5 ± 1.0	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100<	5	1.8 ± 0.3	8.6 ± 0.6	50.1 ± 4.9	2,042 ± 97.3	123 ± 18.0	238.6 ± 10.9	<LOQ	<LOQ	0.1 ± 0.1	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

D																			
Amounts (µg/g)																			
粒径別 (µm)	分析回数	BBP		DIBP		DBP		DEHP		DINP		DIDP		DNOP		DMP		DEP	
		Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	
<500	5	1.9 ± 0.6	98.9 ± 3.4	31.6 ± 4.5	789 ± 74	365 ± 59	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
250-500	5	1.4 ± 0.2	82.0 ± 8.8	31.4 ± 3.9	742 ± 101	276 ± 41	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100-250	5	1.8 ± 0.1	93.6 ± 3.7	33.6 ± 2.5	899 ± 66	366 ± 17	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100<	5	1.5 ± 0.0	77.0 ± 1.9	26.1 ± 1.0	796 ± 37	373 ± 4	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

E																			
Amounts (µg/g)																			
粒径別 (µm)	分析回数	BBP		DIBP		DBP		DEHP		DINP		DIDP		DNOP		DMP		DEP	
		Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	
<500	5	0.7 ± 0.3	7.1 ± 3.4	44.9 ± 49.0	2,388 ± 3,352	847 ± 343	7.7 ± 3.4	4.4 ± 1.9	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
250-500	5	0.2 ± 0.0	2.5 ± 0.6	17.9 ± 2.4	1,354 ± 1,093	871 ± 292	4.6 ± 0.6	4.4 ± 0.4	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100-250	5	0.3 ± 0.0	4.0 ± 0.5	19.8 ± 1.4	1,025 ± 48.9	1000 ± 205	6.3 ± 0.6	2.9 ± 0.3	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100<	4	0.6 ± 0.1	5.3 ± 1.1	19.7 ± 2.4	953 ± 81.1	978 ± 156	7.4 ± 0.5	2.9 ± 1.2	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

F																			
Amounts (µg/g)																			
粒径別 (µm)	分析回数	BBP		DIBP		DBP		DEHP		DINP		DIDP		DNOP		DMP		DEP	
		Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	Mean ± SD	
<500	5	0.3 ± 0.3	4.9 ± 1.9	8.2 ± 2.5	388 ± 141	120 ± 57.8	6.4 ± 3.7	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
250-500	2	0.2 ± 0.0	6.5 ± 0.2	7.9 ± 0.3	397 ± 25	91.1 ± 2.1	6.7 ± 1.1	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100-250	5	0.4 ± 0.1	15.7 ± 7.4	23.4 ± 15.5	509 ± 29	137 ± 19.3	8.1 ± 0.4	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
100<	5	0.4 ± 0.1	11.1 ± 1.0	23.2 ± 2.5	534 ± 17	126 ± 9.9	7.6 ± 0.4	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

Table 3 10家屋のダスト中フタル酸エステル類の粒径別の分布 2

G																			
Amounts (µg/g)																			
粒径別 (µm)	分析回数	BBP		DIBP		DBP		DEHP		DINP		DIDP		DNOP		DMP		DEP	
		Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD
<500	5	0.4	± 0.3	3.8	± 1.0	3.8	± 1.0	2,152	± 315	530	± 276	8.1	± 1.7	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.8	± 0.1
250-500	3	0.3	± 0.0	6.3	± 0.8	6.3	± 0.8	2,281	± 404	465	± 118	10.1	± 1.6	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	2.8	± 1.5
100-250	5	0.3	± 0.1	5.0	± 2.5	5.0	± 2.5	2,011	± 290	395	± 112	11.2	± 1.7	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.6	± 0.1
100<	5	0.2	± 0.0	4.2	± 0.7	4.2	± 0.7	2,314	± 178	489	± 10	12.2	± 0.6	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.5	± 0.2

H																			
Amounts (µg/g)																			
粒径別 (µm)	分析回数	BBP		DIBP		DBP		DEHP		DINP		DIDP		DNOP		DMP		DEP	
		Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD
<500	5	2.5	± 0.5	4.7	± 1.6	216	± 79.9	4,595	± 2,077	176	± 17	2.2	± 0.4	2.2	± 2.1	0.3	± 0.4	0.3	± 0.1
250-500	5	11.2	± 18.7	16.6	± 18.4	347	± 182	8,259	± 2,728	80	± 11	2.2	± 0.6	<LOQ	<LOQ	0.5	± 0.3	0.6	± 0.3
100-250	5	3.0	± 0.8	8.4	± 1.6	150	± 30.4	4,740	± 1,497	294	± 147	28.4	± 47.6	1.1	± 0.8	0.5	± 0.3	1.0	± 0.4
100<	5	3.2	± 0.4	9.4	± 2.3	124	± 8.2	1,674	± 230.4	306	± 40	4.3	± 4.7	1.6	± 0.4	0.8	± 0.6	0.9	± 0.2

I																			
Amounts (µg/g)																			
粒径別 (µm)	分析回数	BBP		DIBP		DBP		DEHP		DINP		DIDP		DNOP		DMP		DEP	
		Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD
<500	5	0.9	± 0.2	2.4	± 0.2	27.5	± 2.9	828	± 271	176	± 53	32.1	± 8.4	2.0	± 1.2	<LOQ	<LOQ	0.5	± 0.3
250-500	5	0.1	± 0.1	1.3	± 0.5	10.1	± 2.4	300	± 239	43	± 8	29.6	± 55.0	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ	0.3	± 0.3
100-250	5	1.6	± 1.5	1.8	± 0.5	20.5	± 1.1	472	± 48	108	± 9	18.2	± 3.3	0.8	± 0.3	<LOQ	<LOQ	0.3	± 0.2
100<	2	1.2	± 0.1	2.9	± 0.1	29.0	± 1.3	622	± 13	133	± 6	37.6	± 0.9	1.7	± 0.6	<LOQ	<LOQ	0.4	± 0.3

J																			
Amounts (µg/g)																			
粒径別 (µm)	分析回数	BBP		DIBP		DBP		DEHP		DINP		DIDP		DNOP		DMP		DEP	
		Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD	Mean	± SD
<500	5	38.2	± 1.3	1.9	± 0.5	57.5	± 27.6	1,891	± 244	160	± 63	5.5	± 3.2	0.9	± 0.6	<LOQ	<LOQ	0.2	± 0.1
250-500	5	44.2	± 5.6	1.8	± 0.3	60.6	± 3.1	1,994	± 70	185	± 71	6.8	± 2.8	0.8	± 0.2	<LOQ	<LOQ	0.3	± 0.2
100-250	5	57.9	± 7.6	2.6	± 0.3	71.5	± 2.8	2,270	± 128.5	230	± 59	6.2	± 0.3	1.0	± 0.2	<LOQ	<LOQ	0.6	± 0.1
100<	5	51.6	± 2.5	3.2	± 0.3	64.5	± 3.3	2,294	± 84.5	183	± 23	5.5	± 0.3	1.0	± 0.2	<LOQ	<LOQ	0.9	± 0.2

Table 4 国内のハウスダスト中のフタル酸エステルの分布と粒径別の比較

	Phthalate ester ($\mu\text{g/g dust}$)										P*
	<100 μm (n=59)					100-250 μm (n=63)					
	min	max	Median	Detection (%)		min	max	Median	Detection (%)		
DMP	<LOQ	1.17	0.10	64.4		<LOQ	0.46	0.09	68.3		<0.05
DEP	<LOQ	1.67	0.41	84.7		<LOQ	1.52	0.41	93.7		0.297
BBP	<LOQ	41.4	0.39	79.7		<LOQ	123	0.58	88.9		0.161
DBP	2.2	239	18.5	100		1.7	404	17.7	100		<0.05
DIBP	<LOQ	72.1	2.82	93.2		0.63	56.3	3.40	100		0.173
DEHP	234	5900	1381	100		316	10308	1865	100		<0.01
DINP	13	936	138	100		26	1488	188	100		<0.01
DNOP	<LOQ	5.44	<LOQ	13.6		<LOQ	6.95	<LOQ	36.5		<0.01
DIDP	1.85	125	5.98	100		<LOQ	120	4.91	74.6		0.385

LOQ: Limit of quantification.

* Significant differences between floor and multi-surface dust were analyzed by paired t test.

Table 5 国内のハウスダスト中のフタル酸エステル濃度と先行研究との比較

Study	Instrument	Country	particle size (μm)	n	Median ($\mu\text{g/g dust}$)										
					DMP	DEP	BBP	DBP	DIBP	DEHP	DINP	DNOP	DIDP		
Present study	LC/MS/MS	Japan	<100	59	0.10	0.41	0.39	18.5	2.82	1381	138	<LOD	5.98		
		Japan	100-250	63	0.09	0.41	0.58	17.7	3.40	1865	188	<LOD	4.91		
Kim et al. 2016	GC/MS	Japan	-	21	-	-	-	18.1	-	810	-	-	-		
Ait Bamai et al. 2014	GC/MS	Japan	-	128	-	-	2.0	16.6	3.1	1100	139	-	-		
Kang et al. 2012	GC/MS	China	<100	23	0.05	1.50	4.63	77.0	34.1	1190	2.9*	7.63	2.9*		
Guo et al. 2011	GC/MS	China	<2	75	0.2	0.4	0.2	20.1	17.2	228	-	0.2	-		
Langer et al. 2011	GC/MS	USA	<150	33	0.08	2.0	21.1	13.1	3.8	304	-	0.4	-		
Abb et al. 2009	LC/MS/MS	Danish	<150	497	-	1.7	3.7	15	27	210	-	-	-		
		Germany	-	30	-	-	15	87	-	604	129	-	-		

*Total DINP and DIDP amounts.

Table 6. Concentration of gaseous chemical compounds in indoor air at 12 houses for 1 week ($\mu\text{g}/\text{m}^3$).

Sample	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K
Year	1	37	2	4	10	20	7	50	15	19	4
formaldehyde	8.9	11.4	17.0	6.0	8.9	6.4	5.4	39.8	14.7	16.2	4.5
ozone	2.1	7.5	17.1	1.8	2.6	1.2	2.7	4.2	1.6	6.4	1.4
acetaldehyde	12.8	16.4	18.8	14.4	14.0	7.0	7.9	21.5	20.1	19.1	5.0
acetone	12.1	152.2	20.7	14.1	15.9	10.8	7.0	8.4	12.9	7.0	5.3
acrolein	0.2	0.0	0.0	0.1	0.1	0.2	0.3	2.2	0.7	0.6	0.2
propanal	6.8	0.0	4.0	5.1	5.7	0.6	0.9	9.3	4.1	7.5	1.5
crotonaldehyde	0.7	2.7	0.0	0.0	0.4	0.4	0.6	0.7	0.3	0.3	0.3
2-butanone	2.7	0.0	0.0	0.5	1.6	2.1	0.7	1.4	2.1	1.5	1.7
benzaldehyde	1.2	0.0	0.0	0.6	0.8	0.3	0.4	1.2	0.8	1.0	0.0
i-valeraldehyde	0.0	0.0	0.0	0.2	0.0	0.0	0.4	0.4	0.7	0.5	0.3
valeraldehyde	1.0	0.0	0.0	0.5	0.7	0.0	0.6	1.4	1.1	0.8	0.0
o-tolualdehyde	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.4	1.3	0.5	0.0
p-tolualdehyde	1.1	0.0	0.0	1.0	0.4	1.3	1.2	2.6	1.1	1.0	0.0
hexanal	3.0	4.4	5.1	2.9	4.2	0.7	2.9	2.8	4.3	1.6	1.2
2,5-dimethylbenzaldehyde	0.0	0.0	3.5	1.1	0.9	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	0.0
heptanal	0.6	0.0	0.0	1.3	0.6	0.0	0.5	0.9	1.4	0.0	0.0
octanal	1.0	0.0	0.0	1.4	1.2	0.6	0.8	1.2	1.8	0.0	0.0
2-nonenal	0.0	0.0	0.0	0.4	0.5	0.0	0.0	0.0	0.6	0.0	0.0
nonanal	4.2	7.9	13.3	6.9	8.6	1.5	4.4	4.0	8.3	2.6	1.8
decanal	2.0	0.0	0.0	3.4	1.7	2.2	1.5	2.1	2.8	1.1	0.0
hexane	4.3	41.7	5.5	7.0	11.2	8.0	25.5	5.8	5.0	7.7	7.4
ethyl acetate	10.7	10.5	1.1	9.3	5.3	10.0	1.8	3.6	1.1	2.6	3.9
trichloromethane	0.5	1.4	3.4	1.7	1.4	0.9	7.3	10.5	2.9	4.7	17.9
2,2,4-trimethylpentane	0.1	0.2	0.6	0.1	0.2	0.1	2.0	0.4	0.4	0.9	1.4
1,1,1-trichloroethane	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.2	0.1	0.1	0.2	0.1
heptane	0.7	0.7	0.0	6.4	6.5	8.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.2
carbon tetrachloride	0.6	1.1	0.6	0.8	0.7	0.8	2.8	0.8	0.4	5.9	0.8
1-butanol	1.7	1.2	0.7	1.5	0.8	1.3	0.8	0.6	0.6	0.6	0.6
benzene	1.6	2.9	1.2	1.5	2.1	2.6	1.2	0.6	0.6	1.0	2.6
1,2-dichloroethane	0.1	0.3	1.4	0.2	0.3	0.3	2.8	1.8	1.1	8.5	1.4
trichloroethylene	1.9	0.2	0.1	1.2	0.2	0.2	0.2	0.1	0.1	0.1	0.2
1,2-dichloropropane	0.2	0.0	0.2	0.1	0.0	0.0	1.2	1.5	0.1	0.6	0.9
octane	0.9	27.2	2.7	5.0	22.0	20.8	6.3	2.6	0.9	14.0	3.1
toluene	19.1	20.5	5.2	9.8	15.1	14.8	10.7	13.0	4.4	15.2	13.2

butyl acetate	2.4	1.8	1.2	2.0	4.2	4.2	0.7	1.7	0.8	1.2	5.1
tetrachloroethylene	0.4	0.4	0.1	0.3	0.1	0.1	0.4	0.4	0.1	0.2	0.2
nonane	0.9	1.2	0.4	0.8	67.8	63.1	0.6	1.2	0.3	40.1	11.4
dibromochloromethane	0.2	0.0	0.4	0.4	1.5	1.4	1.2	0.1	0.2	0.4	0.8
ethylbenzene	4.1	2.1	1.0	1.5	9.5	9.3	1.4	2.4	0.5	5.2	10.8
m,p-xylene	3.2	3.1	1.1	1.6	23.1	22.0	2.0	2.0	0.7	12.5	7.5
o-xylene	1.0	1.4	0.5	0.6	11.8	11.1	0.8	0.7	0.3	7.3	2.2
styrene	0.1	0.0	0.1	0.0	0.3	0.3	0.0	0.0	0.0	0.3	0.2
α-pinene	2.0	7.6	0.7	3.1	2.1	2.4	2.6	1.2	3.1	1.1	2.6
decane	5.8	54.0	4.5	9.8	68.1	46.8	9.2	4.1	1.8	33.9	10.9
1,3,5-trimethylbenzene	0.5	0.2	0.2	0.3	8.1	6.9	0.2	0.5	0.1	4.1	0.3
1,2,4-trimethylbenzene	1.7	0.8	0.7	1.1	25.0	20.7	0.9	1.9	0.5	12.5	1.0
2-ethyl-1-hexanol	0.7	5.0	2.5	1.3	3.1	2.1	4.4	0.8	0.7	0.4	2.7
d-limonene	18.7	26.1	38.9	31.2	34.2	32.0	31.9	7.8	7.5	8.5	23.4
undecane	1.8	41.5	4.6	4.7	37.6	29.7	18.8	4.1	1.9	20.5	5.3
1,2,3-trimethylbenzene	0.3	0.2	0.2	0.2	6.4	4.9	0.2	0.4	0.1	3.4	0.2
p-dichlorobenzene	0.6	0.6	0.1	0.4	136.9	105.0	0.9	0.9	0.6	0.5	0.3
dodecane	7.5	22.7	2.1	3.3	5.3	4.7	7.0	1.3	1.3	14.3	2.8
tridecane	0.8	4.5	0.6	1.1	5.5	4.3	3.4	0.7	1.0	10.0	1.0
tetradecane	1.6	7.0	0.8	1.9	1.2	0.4	2.5	0.4	1.2	5.7	1.6
pentadecane	0.2	1.3	0.2	0.3	0.2	0.1	1.3	0.2	0.3	0.4	0.4
texanol	0.7	1.2	0.3	0.6	0.6	0.5	3.0	0.3	0.4	0.6	1.5
TVOC	107.4	296.3	85.7	115.3	555.0	475.1	159.1	77.7	42.5	264.8	155.7
acetic acid	56.1	89.9	114.8	33.2	38.4			22.0	51.3	53.5	54.8
formic acid	16.9	40.7	29.2	11.8	10.8			9.8	7.5	39.6	20.5
hydrogen chloride	5.4	3.4	15.3	0.4	3.1			1.0	0.6	3.3	0.5
nitrogen dioxide	26.3	124.9	29.8	62.4	30.7			39.4	7.0	170.5	75.4
ammonia	30.2	143.8	108.3	42.5	31.5	29.7	19.3	15.4	30.9	25.7	19.1