

令和元年6月26日現在

機関番号：33202

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K00616

研究課題名(和文) 子どもの室内空気汚染物質への曝露評価および健康リスク低減に向けての提案

研究課題名(英文) Assessing the exposure of children to indoor air pollutants and suggestions for reducing health risks

研究代表者

高橋 ゆかり (Takahashi, Yukari)

富山国際大学・現代社会学部・准教授(移行)

研究者番号：00712689

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：子どもを対象とした室内空気汚染物質への曝露評価のために、保育園・幼稚園において、空気中の多環芳香族炭化水素(PAHs)、塩素化多環芳香族炭化水素(CIPAHs)、アルデヒド類、室内浮遊真菌、ハウスダスト中の難燃剤成分である有機リン化合物の存在実態を調査した。この結果、室内のアルデヒドへの曝露量は季節や室内の過ごし方や滞在時間によって大きく異なっていた。また、ハウスダスト試料から9～12種の有機リン系化合物が検出された。今後、他の難燃剤成分や空気中PAHs, CIPAHsを含め、子どもの行動を考慮して詳細な評価をしていく必要があると考えられた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

幼稚園や保育園における塩素化多環芳香族や有機リン系化合物などによる汚染の実態を調査した事例はほとんどないため、本研究によって得られた成果は有意義である。また、得られた結果は、幼児の化学物質への曝露評価やリスク評価をするための資料になりうる。さらに、得られた結果を協力した保育施設に報告することにより、保育施設が幼児の化学物質への曝露を低減するような対策をとることが可能になると考えられる。

研究成果の概要(英文)：In order to evaluate the exposure amount of indoor air pollutants to children, surveys were conducted in nursery schools and kindergartens. We collected samples and analyzed polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons (CIPAHs), aldehydes in indoor air samples, and organophosphorus compounds in house dust samples. As a result, the amount of exposure to aldehydes was greatly different depending on the season, the type of activity in the room, and the duration of time in the room. In addition, 9 to 12 kinds of organophosphorus compounds were detected from the house dust samples. Further exposure and risk assessments are required to evaluate the risk in indoor environments.

研究分野：環境リスク制御・評価

キーワード：室内空気汚染 曝露評価 リスク 幼児 有機リン化合物 アルデヒド

1. 研究開始当初の背景

ヒトは、一日の大半を室内で過ごすことから、室内空気が清浄であることは、人が健康に生きるために重要であるから、室内空気中汚染物質への正確な曝露評価は重要である。このため、室内空気汚染物質への曝露評価やリスク評価が行われてきているが、子どもは以下の点で成人と大きく異なっている。

1) 体重 1 kg あたりの呼吸量、食事量は、大人のそれと比較して大きい

子どもは、体内に取り込む化学物質の総量は低いものの、体重 1 kg あたりの呼吸量や食事量は大人よりも多い。通常、化学物質の毒性を考える場合、体重 1 kg あたりの曝露量考えることから、環境中の化学物質を体内に取り込んでしまう場合、大人より体重あたり多くの化学物質を体内に取り込むことになる。

2) 化学物質に対する感受性が大人と異なる

幼児は、神経系の発達が未完成の時期にあり、有害物質の脳への移行を防止する脳 - 血管関門もまだ完成しておらず、また、化学物質の解毒する力も十分に発達していないことが指摘されている。このようなことから、例えば、有機リン系農薬や鉛を幼児期に摂取した場合、大人よりも影響が大きいことが知られている。

3) 身体特性や行動特性が成人と異なる

幼児は、呼吸位置が低いため、成人とは異なる位置の空気を摂取している。また、室内を走り回ったり、床に手をついたり、何でも口に入れるといった大人とは異なる行動をとることが多い。また、室内空気中の揮発性有機化合物の中には、下方にたまりやすいものもあるため、成人と比較して子どもの方がより、リスクが大きくなってしまう可能性もある。

室内に発生源のある化学物質は、屋外濃度よりも室内の方が高濃度になることが知られている。これまで、室内空気中の化学物質の曝露評価やリスク評価に関する研究がなされてきているが、そのほとんどは成人を対象としたものであり、子どもを対象とした研究は非常に少ない。室内発生源として近年、臭素系難燃剤による室内空気汚染が懸念されている。また、締め切った室内では、揮発性有機化合物濃度が非常に高くなる恐れもある。さらに、大気汚染物質の屋外から室内への流入も懸念され、季節によっては、微小粒子状物質の空気中の濃度が高くなる可能性があることから、これに付着した多環芳香族炭化水素などの発癌関連物質への曝露が懸念される。既往の研究では、このような化学物質への曝露評価、リスク評価が行われてきているものの、ほとんどが成人を対象としたものであり、子どもの行動特性を定量的に評価した上での子どもの化学物質への曝露評価に関するデータは非常に少ない。

2. 研究の目的

本研究では、子どもを対象とした室内空気汚染物質への曝露評価を行う場合には、子どもの身体特性や行動特性を十分に考慮して行う必要がある。特に、子どもに化学物質過敏症などの症状が現れた場合、長期にわたって健康影響が続くことを考えると、子どもを対象とした正確な曝露評価手法の検討、リスク低減に向けた考察が必要である。そこで、本研究では、子どもの行動特性に即した室内空気汚染物質への曝露評価、リスク評価を行い、曝露評価手法、リスク評価手法を提案することを目的とする。

【具体的な目的】

曝露評価のための、幼児の身体特性、行動特性の定量化

幼稚園・保育園において子どもを観察し、化学物質の経皮曝露、経口曝露に影響を及ぼす行動に着目し、行動特性の実態を定量的に把握する。

室内外空気中およびハウスダスト中に含まれる室内空気汚染物質の特定

室内発生源によるものか、屋外からの流入によるものかを判断するとともに、子どもの健康に影響を及ぼす恐れのある化学物質を特定する。

健康影響の心配がある化学物質の実態把握

塩素化多環芳香族炭化水素 (Cl-PAH)、多環芳香族炭化水素 (PAH)、農薬など、健康影響が心配される物質の空気中における存在実態、それらへの曝露実態を季節ごとに把握する

室内空気汚染物質の室内での挙動の調査・測定と曝露評価、リスク低減に向けての提案

室内空気汚染物質の空気中での沈着速度や一度沈着したものが再度空気中に飛散する可能性について考察する。子どもの室内空気汚染物質への吸入曝露評価、経口曝露評価、経皮曝露評価を行うとともに、リスク低減に向けた提案を行う。

3. 研究の方法

1) 対象施設

富山市内の平野部に位置する保育園、幼稚園、こども園を調査対象とした。

子どもの行動特性についての調査

保育室内において、子どもの行動を観察するとともに、子どもの行動をビデオ撮影した。このビデオデータの解析を試みた。

保育室内の換気の状態について

二酸化炭素濃度及び温湿度の測定には、SD カードデータロガデジタル温湿度・CO₂計(マザーツール製)をこども園の2歳児保育室または4歳児保育室に設置した。設置場所は、保育の邪魔にならないよう室内の床上約80cm程度の棚の上に設置した。

ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドの曝露量

A 保育園では0-1歳児および2歳児を調査対象とし、各保育室、遊戯室および屋外において3日間連続して試料を採取した。B 幼稚園では4歳児を調査対象とし、幼稚園と同様、保育室および屋外において3日間連続して試料を採取した。アルデヒドは、市販のパッシブサンプラー(柴田科学社製DNPHパッシブガスチューブアルデヒド・ケトン類用)を室内の壁から1m以上離れた場所に天井からテグスで吊るして採取した。なお、サンプラーは、24時間ごとに交換した。サンプリング後、パッシブサンプラーを袋に入れて密封した状態で実験室に運び、アセトニトリルでDNPH誘導体として抽出した後、メタノール-蒸留水を移動相とする高速液体クロマトグラフィー(HPLC)による分離分析を行った。測定によって得られた結果より、室内外空気中アルデヒド濃度を算出し、得られた結果と幼児の平均体重(1)や呼吸量(2)の文献値を用い、幼児の園での滞在時間中のホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒドの経気道曝露量を見積もった。

多環芳香族炭化水素(PAHs)、塩素化多環芳香族炭化水素(CiPAHs)

分析対象として、4~6環系の6種のPAHsと3~5環系の15種のCiPAHsを選定し、個人曝露評価のためのPAHsおよびCiPAHsのGC-MSによる高感度分析法の開発を試みた。

また、幼稚園・保育園の保育室と遊戯室において、小型のパーソナルミニポンプ(柴田科学製MP-300N)を用い、フィルター上に試料を採取した。フィルターは24時間ごとに交換し、連続する3日間、試料を採取した。

ダスト中の難燃剤

保育室内のダスト試料は、紙パックを取り付けたスティック型のハンディクリーナー(RYOBI製BHC-1400)を用いて採取した。ダストを採取した紙パックは、抽出時までアルミニウム製の遮光袋に入れ、冷凍庫(-20℃)で保存した。

分析対象としたリン系化合物は、ソックスレー抽出法により抽出し、液体クロマトグラフ-タンデム型質量分析計(LC-MS/MS)を用いて分析した。

保育室内浮遊真菌

ミニポンプ(柴田科学社製MP-3)に捕集材(柴田科学社製マイクロチェック)を接続し、室内外空気を200L以上採取した。この際、子どもが触ったりしないよう、床上約1mの直射日光の当たらない場所にポンプを設置した。試料採取後、捕集材の裏側より培地(柴田科学社製空中菌用培地真菌酵母)を注入し、捕集材の採取面および裏面にキャップをした後、実験室に持ち帰った。これらの試料を48時間培養した後、出現したコロニー数を数えた。

4. 研究成果

子どもの行動特性について

曝露評価のために子どもの行動をビデオ撮影し、行動特性の定量化を試みたが、子どもの動きの個人差などから、子どもが自由遊びをする際の動きを正確に評価することが困難であった。今後、子どもの行動を解析するためのソフトウェアを開発し、これを用いて子どもの行動特性について考察していく予定である。

保育室内の換気の状態について

部屋の換気の指標として、データロガを用いて室内の気温、相対湿度および二酸化炭素濃度を測定した。春季と秋季は窓を開放している日が多かったが、雨天時には一日中窓を閉めて過ごすことがあり、二酸化炭素濃度が学校環境衛生基準における基準値の1500ppmを上回ることがあった。夏季と冬季では、窓を閉めて冷暖房を使用した場合や、部屋の使用人数が一時的に増えた場合には室内の二酸化炭素濃度が比較的高濃度になりやすいことがわかった。春季や秋季であっても部屋の使用状況によっては二酸化炭素濃度が一時的に4000ppmを超えることがあった。

Mendellらは、大学生を対象に実験を行った結果、空気中の二酸化炭素濃度が2500ppmを超えると、意思決定などに支障をきたしたと報告している[1]。乳幼児は、身体が未発達であることから、環境中の化学物質等に対する感受性が成人よりも高い可能性がある。このため、こども園においても夏季や冬季であっても室内の二酸化炭素濃度が高濃度になりすぎないように換気を心掛けることが大切であると考えられた。

ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドの曝露量

富山市内の2園において、季節ごとにアルデヒドを採取し、室内外空気中のホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒドを分析した。この結果、室内アルデヒド濃度は指針値よりも低濃度であったものの、すべての保育室において屋外よりも高濃度に検出された。特に夏季はホルムアルデ

ヒドが空气中に揮散しやすいことから他の季節と比較して最も高濃度に検出された。肺換気量については、文献値を参考にし、園に滞在している時間を考慮し、園での一日当たりのアルデヒドの推定曝露量を4種の文献のデータをもとに算出した[2] [3] [4] [5]。

この結果、ホルムアルデヒドへの曝露量は、保育園の1歳児で17(3月) - 80(8月) $\mu\text{g/day}$ 、2歳児で25(3月) - 102(8月) $\mu\text{g/day}$ 、幼稚園の4歳児で16(10月) - 42(6月) $\mu\text{g/day}$ と推定された。夏季のアセトアルデヒドへの曝露量は、保育園の1歳児で13(3月) - 54(8月) $\mu\text{g/day}$ 、2歳児で19(3月) - 51(8月) $\mu\text{g/day}$ 、幼稚園の4歳児で3.4(6月) - 12(3月) $\mu\text{g/day}$ と推定された。保育園の方が園の滞在時間が長いことや園児たちの室内での過ごし方が園によって異なるためであると考えられた。これらより、呼吸量が比較的少ないと考えられる1~2歳児であっても、気温の高い時期に閉めきった室内で過ごした場合、アルデヒドへの曝露量は、4歳児よりも多くなる場合があると推測された。

多環芳香族炭化水素(PAHs)、塩素化多環芳香族炭化水素(CiPAHs)

分析対象として、4~6環系の6種のPAHsと3~5環系の15種のCiPAHsを選定し、多環芳香族炭化水素(PAHs)および塩素化多環芳香族炭化水素(CiPAHs)の個人曝露評価のためのPAHsおよびCiPAHsの高感度分析法の開発を試みた。この結果、負イオン化学イオン化(NCI)法を用いた加熱脱着-ガスクロマトグラフィー質量分析法(GC-MS)により高感度に分析対象化合物を検出することが可能になった。本分析法を用いて保育園・幼稚園で採取した空気浮遊粉塵試料中のPAHs・CiPAHsを分析した結果、これまで感度の問題で検出できなかった3~5環系のCiPAHsが室内試料から検出できるような高感度分析が可能となり、実際の試料からPAHsおよびCiPAHsが検出された。

ハウスダスト中の難燃剤成分

ハウスダスト中の未規制化合物については、ハウスダスト中の代替難燃剤の一斉分析手法を開発した。この一斉分析法を用い、スティック型の掃除機で採取したハウスダスト中に含まれる家庭製品由来の難燃剤を分析した。試料中から9~12種の有機リン系化合物が検出され、合計濃度は1000~2900 $\mu\text{g/g}$ であった。特に、リン酸トリス(2-プトキシエチル)が分析した試料すべてから990~2900 $\mu\text{g/g}$ と高濃度に検出された。この成分は、フローリングワックス由来であると考えられた。リン酸トリス(2-プトキシエチル)の毒性はあまり高くないものの、子どもは室内を裸足で走り回ることが多いため、今後、他の難燃剤成分も含め、詳細な検討をしていく必要があると考えられた。

保育室内浮遊真菌

2つの保育園または幼稚園で室内外浮遊真菌の調査を実施した結果、A保育園室内の浮遊真菌数は、夏季は90~609 cfu/m³、秋季は89~340 cfu/m³、冬季は45~202cfu/m³であった。B幼稚園室内の浮遊真菌数は、秋季は44~96 cfu/m³、冬季は37~81 cfu/m³であった。室内浮遊真菌数は、部屋の使用状況によって大きく変動することを認めた。また、0-1歳児保育室よりも2歳児保育室の方が、浮遊真菌数が多い傾向が見られた。2歳児は1歳児と比較して部屋の中を活発に動き回るようになるため、空気の対流が生じ空气中を浮遊する真菌数が増加する可能性があると考えられた。

(参考文献)

- [1]W. F. Mark Mendell, "Elevated Indoor Carbon Dioxide Impairs Decision-Making Performance," Julie Chao,(2012), pp. 486-6491.
- [2]Layton,D.W.(1993) Metabolically consistent breathing rates for use in dose assessments, Health physics, 64(1),23-36
- [3]Brochu, P., Ducre-Robitaille,, J.F., and Brodeur, J. (2006) Physiological daily inhalation rates for free-living individuals aged 26 months to 96 years based on doubly labeled water measurements: A proposal for air quality criteria, standard calculations and health risk assessment. Human and Ecological Risk Assessment, 12(4)675-701
- [4]Stifelman, M.(2007)Using doubly-labeled water measurements of human energy expenditure to estimate inhalation rates, Science of the Total Environment, 373(2-3),.585-590
- [5]環境省(2010)農薬の気中濃度評価値の設定について(案)
https://www.env.go.jp/water/dojo/noyaku/hisan_risk/hyoka_tih/com08/mat03.pdf

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

Furukawa M., Wang Q., Tokumura M., Miyake Y., Amagai T., Takahashi Y.: Alternative Flame Retardants in House Dust Collected from Residential Houses and Kindergartens in Japan, Organohalogen Compounds, 79, 651-654, 2017 査読有

高橋 ゆかり、李 剛、石倉 卓子、末永 美雪：保育園および幼稚園における室内外浮遊真菌の実態調査，富山国際大学紀要，9，127-132，2017 査読無

高橋 ゆかり：こども園の室内における温湿度および二酸化炭素濃度，富山国際大学紀要，10(2)，57-63，2018 査読無

〔学会発表〕(計 11 件)

高橋 ゆかり、李 剛、石倉 卓子、末永 美雪：保育園および幼稚園における室内外浮遊真菌の実態調査，こども環境学会 2017 年大会，2017 年 5 月，北海道文教大学(恵庭)

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，2017 年 6 月，静岡県コンベンションアーツセンター（静岡）

高橋 ゆかり、王 斉、雨谷 敬史、末永 美雪：幼稚園・保育園における幼児のアルデヒドへの曝露評価，第 26 回環境化学討論会，2017 年 6 月，静岡県コンベンションアーツセンター（静岡）

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 2017 年 9 月，北九州国際会議場（北九州）

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，2017 年 12 月，佐賀市文化会館（佐賀）

高橋 ゆかり、王 斉、雨谷 敬史：富山市とその周辺地域におけるアルデヒドによる室内外汚染実態調査，エコテクノロジー・シンポジウム，2017 年 12 月，富山国際大学（富山）

Yukari TAKAHASHI, Qi WANG, Minori FURUKAWA, Yuichi MIYAKE and Takashi AMAGAI : Exposure Assessment to Aldehydes and Organophosphorus Compounds on Kindergarteners, 12th International Forum on Ecotechnology, , January 2018, University of Hawaii (Hawaii)

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，2018 年 5 月，沖縄県市町村自治会館（那覇）

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 2018 年会，2018 年 9 月，東洋大学（東京）

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 2018，2018 年 11 月，（富士）

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 2018，2018 年 11 月，（富士）

6. 研究組織

(1)研究代表者

高橋 ゆかり (TAKAHASHI Yukari)

富山国際大学・現代社会学部・准教授

研究者番号：00712689

(2)研究分担者

雨谷 敬史 (**AMAGAI Takashi**)

静岡県立大学・食品栄養科学部・教授

研究者番号： **10244534**

石倉 卓子 (**ISHIKURA Takako**)

富山国際大学・子ども育成学部・准教授

研究者番号： **90461855**