

令和 6 年 10 月 11 日現在

機関番号：82602

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2023

課題番号：20K18919

研究課題名（和文）化学物質過敏症患者を対象とした室内環境中の化学物質評価に関する新たな戦略

研究課題名（英文）A New Strategy for the Evaluation of Chemical Substances in Indoor Environments Targeting Patients with Chemical Sensitivity

研究代表者

戸次 加奈江（Bekki, Kanae）

国立保健医療科学院・生活環境研究部・主任研究官

研究者番号：00722084

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000 円

研究成果の概要（和文）：拡散サンプラーを用いたイソシアネートのモニタリング手法を開発することで、一般環境下でのイソシアネート濃度とその挙動が明らかとなった。対象とした中でも、イソシアニ酸（ICA）及びメチルイソシアネート（MIC）は、比較的高濃度で広範囲に検出されるものであり、室内では夏に有意に高くなるなど、季節的な変動も見られた。室内のイソシアネートは、換気により屋外の影響を受ける他、夏は、密閉した室内にて室内発生源の影響を受けている可能性が高く、その要因の一つとして、喫煙による寄与が考えられた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

環境中のイソシアネートに関する新たなモニタリング手法が確立されたことで、身近な環境中でのイソシアネートの濃度レベルとその挙動や季節変動を明らかにすることができた。本研究の成果は、今後、大規模な疫学調査にも適用可能であるため、未だ未解明の化学物質過敏症などの健康影響とイソシアネートとの関連性を明らかにする上でも有用な方法である。また、このような調査結果は、世界的には既に規制対象物質とされているイソシアネートを、国内においても規制対象とするための根拠として提示することができる点において、社会的意義はとて大きいと言える。

研究成果の概要（英文）：By developing a monitoring method for isocyanates using a diffusion sampler, the concentrations and behavior of isocyanates in general environments were elucidated. Among the target substances, isocyanic acid (ICA) and methyl isocyanate (MIC) were detected at relatively high concentrations over a wide range, showing seasonal variations, such as being significantly higher indoors during the summer. Indoor isocyanates are influenced by outdoor air through ventilation, and in summer, it is likely that indoor sources contribute more in enclosed indoor spaces. One of the factors considered to contribute to this is smoking.

研究分野：分析化学

キーワード：Isocyanate パッシブサンプラー 室内環境 ガス状成分

1. 研究開始当初の背景

産業革命期に人類は様々な公害問題から環境汚染と健康との関係を学び、改善を図ることで、健康によりよい生活環境を作り出してきた。一方で、我々の快適な生活環境には化学物質との共存が不可欠となってきたことで、アレルギーや化学物質過敏症等の新たな健康課題が浮き彫りになっており、これらの原因物質の特定とその削減が課題として挙げられている。しかしながら、身近な原因の一つとして考えられている室内環境中の化学物質は無数に渡り、未だ十分な対策が実施されていない。特に、喫煙、調理などの燃焼は、発がん性物質を含む有害性のある化学物質の主要な発生源となり、中でもイソシアネートは、感作性や神経系、呼吸器系に作用する環境汚染物質として健康影響が懸念されている。特にイソシアネートの中でも、イソシアン酸やメチルイソシアネートは、身近な環境中での検出頻度も高く広く分布するため、日常的に曝露され健康影響を引き起こす可能性がある。しかしながら、生活環境中でのこれらイソシアネートの汚染に関する報告は極めて少なく知見は不十分である。

2. 研究目的

本研究では、多種類の化学物質の中でも、近年、環境中での汚染と有害性が懸念されるイソシアネートに着目し、一般環境中での新たなモニタリング方法を開発することで、イソシアネートの室内外での挙動や濃度変動を明らかにし、環境中での発生源や健康影響との関連を調べる上で基盤となる基礎的なデータを得ることを目的とした。

3. 研究の方法

- (1) 環境中のイソシアネートを対象とした測定方法として、モニタリングに適した長期間の連続した捕集を可能とする拡散サンプラー（PSG-DBA サンプラー）を開発した。本サンプラーの対象成分は、環境中での検出頻度が高く、主にガス状で存在するイソシアネート4種（イソシアン酸（ICA）、メチルイソシアネート（MIC）、エチルイソシアネート（EIC）、プロピルイソシアネート（PIC））である。
- (2) 拡散サンプラーを用い、2022年12月～2023年12月にかけて、埼玉県内の集合住宅において、1週間ごとの継続したモニタリングを行った。また、イソシアネートの季節的な濃度変動や、室内外の発生源の影響をより詳しく調べるため、23軒の一般住宅を対象に、夏（2023年）と冬（2022年）の連続した1週間の平均濃度を調べた。

4. 研究成果

(1) 拡散サンプラー（PSG-DBA サンプラー）の開発

メタノール洗浄したグラスファイバーフィルター（AP25, Merk 社製）（厚さ 1.2 mm, 直径 9 mm）に、誘導体化剤 1.5 mol/l ジブチルアミン（DBA）と等量の酢酸を溶解したメタノール溶液を含浸させ溶媒を乾燥（50℃）させた後、専用のカートリッジに装着したものを拡散サンプラー（PSG-DBA サンプラー）とした¹⁾。初めに、捕集時間を検討したところ、各成分とも7日間までの時間依存的な濃度増加が確認されたため、捕集時間は連続した7日間と設定し、1週間の平均した濃度の算出が可能となった。ま

た、この PSG-DBA サンプラーを用いて、空気中のイソシアネート濃度を算出するため、アクティブ法²⁾と PSG-DBA サンプラーを同時捕集し比較することで、サンプリングレート (SR) を算出した (Fig. 2)。このとき、SR は、ICA: 260 ml/min, MIC: 78 ml/min, EIC: 48 ml/min, PIC: 33 ml/min と算出された。

さらに、サンプラーの保存安定性を調べるため、捕集した後、サンプルを 4 または 35 の異なる温度条件下にて 2 週間まで保存安定性を調べたところ、35 °C では、一部成分 (PIC) の濃度が時間経過と共に上昇する傾向が見られ、4 °C の方が保存に適していることが確認された。

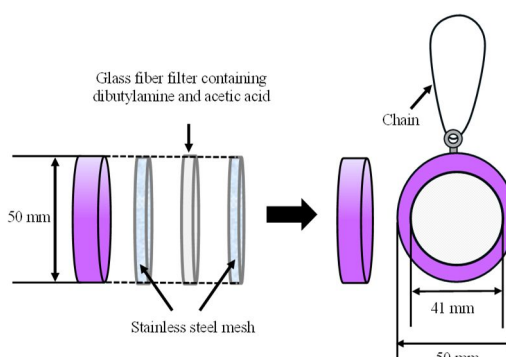


Fig. 1 PSG-DBA サンプラーの概要

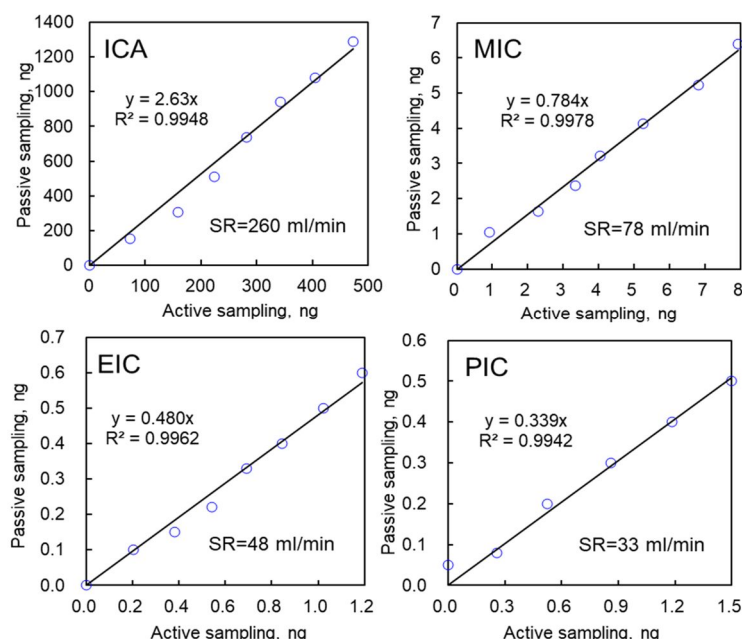


Fig. 2 拡散サンプラーとアクティブサンプラーの比較

(3) 室内外のイソシアネートに関するモニタリング調査

2022年12月～2023年7月にかけて、埼玉県和光市の集合住宅で、1週間ごとの継続したモニタリングを行った (Fig. 3)。対象とした成分のうち ICA と MIC が比較的高く検出され、冬～春の ICA は、屋外濃度が高い傾向にあったものの、室内外の濃度変動は殆ど同様であり (Fig. 4)、換気の影響などにより屋外の ICA が室内へ影響していると考えられた。一方、7月以降、外気温の高い夏季は、室内外の気温が逆転し、エアコン等の使用により、室内の気温が低くなる傾向が見られた。このとき、ICA は、屋外よりも室内で高くなる傾向が見られたが、この要因として、換気頻度が少な

かったため、室内発生源の寄与が大きくなったものと考えられた。また、MICもICAと同様に、冬～春に屋外で高く、7月以降気温の上昇と共に、屋外よりも室内で濃度が高くなる傾向が見られ、室内発生源の寄与が大きいものと示唆された。

次に、イソシアネートの季節的な濃度の変動をさらに詳しく調べるため、埼玉県内の一般住宅23軒を対象に、夏（2023年）と冬（2022年）の連続した1週間の平均濃度を比較した（Fig. 5）。その結果、ICAとMICは、いずれの成分とも冬は室内と殆ど同様の濃度であったものの、夏は殆どの住宅で室内の方が高くなる傾向を示し、Fig. 1のモニタリング結果とも同様の傾向であることが確認された。

このような要因の一つとして、今年の夏は、激しい猛暑が続いたことから、室内の温度調整にエアコンを継続して使用する家庭が多く、窓の開閉頻度が少ないなど、換気回数が少なかった可能性も考えられた。よって、夏季のICAとMICは、いずれも室内発生源の寄与が大きいものと示唆された。

本研究結果より、一般住宅の室内におけるICA及びMICは、季節的な濃度変動を示すことが明らかとなった。屋外では、夏と冬の濃度の差は殆ど見られなかったものの、室内では、夏にICA及びMIC濃度が有意に高かった。これらのことから、室内のイソシアネートは、換気により屋外の影響を受ける他、夏は、室内発生源の寄与が比較的大きい傾向にあることが、本研究結果より明らかとなった。

（4）室内外の濃度比（I/O比）

2022年12月～2023年10月にかけて、関東に位置する4件の住宅で、毎月1回イソシアネートを測定し、室内外の濃度比（I/O比）を算出し、比較したところ（Fig. 7）、いずれの住宅からもICAとMICのI/O比が1を超えるサンプルが検出された。これらは、室内の何らかの発生源による寄与が高いものと考えられたが、特に住宅Cでは、ICAとMICのI/O比が極端に高値となった。この要因として、住宅Cでは、喫煙者による室内での喫煙による影響があるものと考えられた。

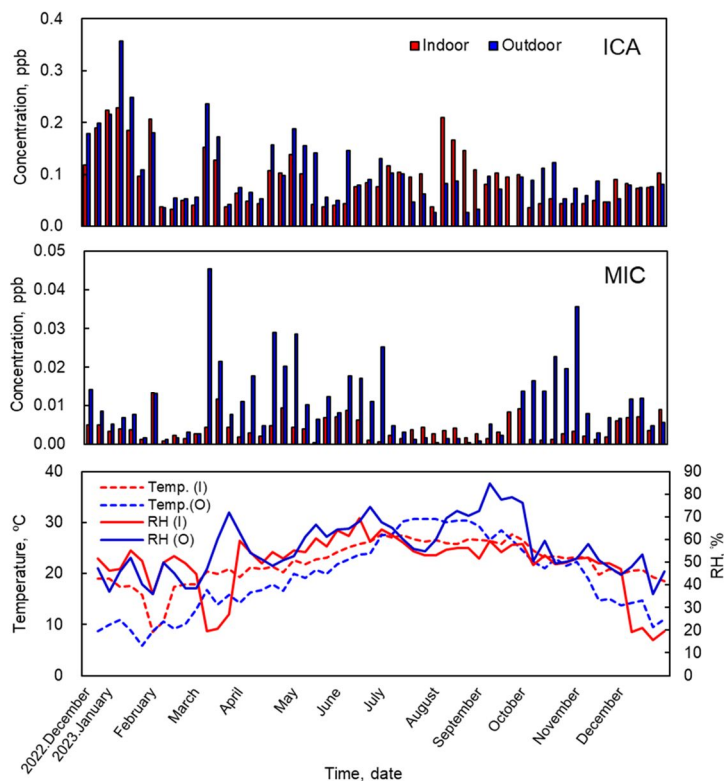


Fig. 3 空气中イソシアネートの経時変化

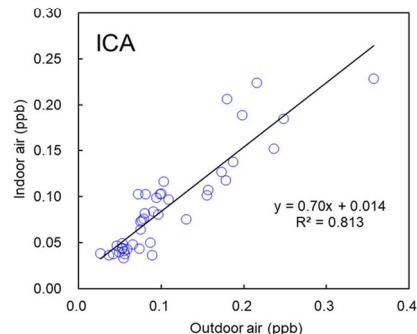


Fig. 4 室内外のイソシアネート濃度の比

本研究で開発した拡散サンプラーを用いることで、一般の環境中でのイソシアネートのモニタリングが可能となった。また、モニタリングの結果から、一般住宅の室内における ICA 及び MIC は、季節的な濃度変動を示すことが明らかとなり、屋外では、夏と冬の濃度の差は殆ど見られなかったものの、室内では、夏に ICA 及び MIC 濃度が有意に高くなる傾向が見られた。このことから、室内のイソシアネートは、換気により屋外の影響を受ける他、夏は、室内発生源の寄与が比較的大きい傾向にあるものと予想され、その一つとして、喫煙による寄与が高い可能性が考えられた。今後は、住民へのアンケート調査や健康影響の評価とも組み合わせることで、疾患の発症への関与を明らかにするため、さらなる調査研究が必要である。

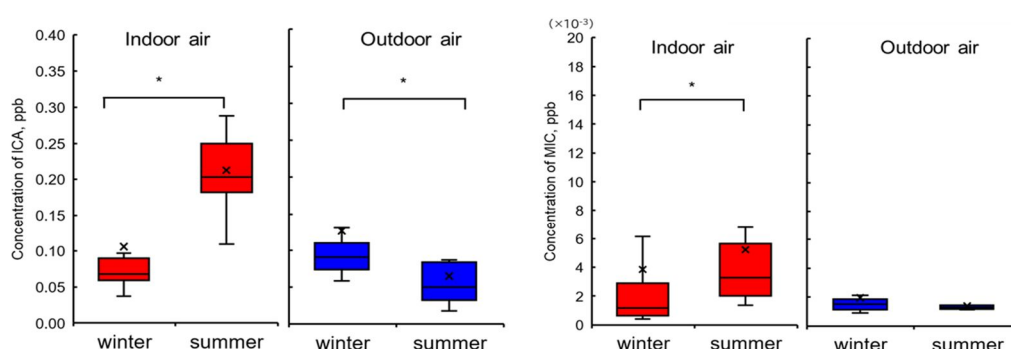


Fig. 5 室内外のイソシアネートの季節変動 (*: $p < 0.05$)

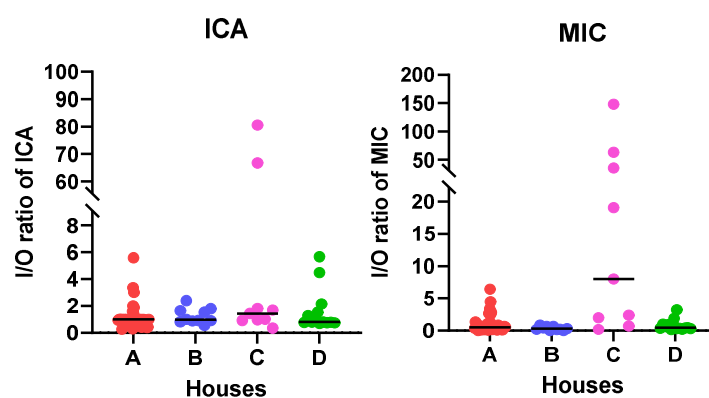


Fig. 6 ICA と MIC の I/O 比

< 引用文献 >

- 1) Bekki K. et al. Atmospheric Environ. 2024, 338, 120816.
- 2) Bekki K. et al. Anal. Bioanal. Chem. 2020, 412, 103-111.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Bekki K, Uchiyama S, Kaihara N, Inaba Y, Ushiyama A.	4. 巻 338
2. 論文標題 A novel passive sampler for long-term monitoring of isocyanates in air	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Atmospheric Environment	6. 最初と最後の頁 120816
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.atmosenv.2024.120816	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 1件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 戸次加奈江、内山茂久、稲葉洋平、牛山明.
2. 発表標題 拡散サンプラーを用いた空気中イソシアネートの捕集及び分析
3. 学会等名 2022年室内環境学会学術大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 戸次加奈江、内山茂久、稲葉洋平、牛山明.
2. 発表標題 たばこ製品から発生するイソシアネートの分析
3. 学会等名 日本薬学会第143年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 戸次加奈江、荒木敦子、アイツバマイゆふ、稲葉洋平、東賢一、金勲、岸玲子.
2. 発表標題 一般家庭における短期/長期堆積ダストを活用したSVOCの曝露評価研究1 リン系難燃剤・可塑剤の室内濃度分布と汚染要因の解析
3. 学会等名 2021年室内環境学会学術大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 戸次加奈江, 内山茂久, 稲葉洋平, 牛山明.
2. 発表標題 一般住宅における拡散サンプラーを用いた空气中イソシアネート濃度調査
3. 学会等名 第31回環境化学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 戸次加奈江, 内山茂久, 稲葉洋平, 牛山明
2. 発表標題 空气中の含窒素有機化合物に関するモニタリング手法の開発
3. 学会等名 日本分析化学会第72年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 戸次加奈江, 内山茂久, 稲葉洋平, 牛山明
2. 発表標題 一般住宅における空气中のイソシアン酸及びイソシアン酸メチルの季節変動
3. 学会等名 2023年室内環境学会学術大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 戸次加奈江
2. 発表標題 未規制の環境汚染物質の特定と影響の解析
3. 学会等名 日本分析化学会中部支部静岡地区講演会(招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 戸次加奈江、稲葉洋平、楠瀬翔一、内山茂久、牛山明
2. 発表標題 たばこ製品に起因するイソシアネートと室内の汚染に関する研究
3. 学会等名 日本薬学会第144年会
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------