

健康リスク要因としての住宅内外空气中ナフタレンに関する研究

東京大学大学院 新領域創成科学研究科 環境システム学専攻
106662 北村賢太郎 (2012年3月修了) 指導教員：吉永淳 准教授

キーワード：ナフタレン、室内空気、一般環境大気、発がんリスク、発生源

1. 緒言

ナフタレンは縮合した二つのベンゼン環からなる、多環芳香族炭化水素(Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, PAHs)の中で最も単純な構造の化合物である。常温で昇華性を持ち、環境中に排出されたナフタレンは90%以上が気相に存在する¹⁾。また、国内における用途は、無水フタル酸や合成樹脂等の原料としての工業的な利用が主であるが、防虫剤といった一部の消費生活用製品にも含まれていることから、我々の生活環境空气中に広く存在する²⁾。毒性としては、従来溶血性貧血等の血液毒性や白内障等の眼毒性が知られてきたが、近年は各国主要機関によりヒトに対する発がん性が懸念されている。例えば、1998年には米国環境保護庁(US EPA)が「Group C, possible human carcinogen (ヒト発に対して発がん性があるかもしれない)」に分類し³⁾、2002年にはWHOの国際がん研究機関(IARC)が「2B, possibly carcinogenic to humans(ヒトに対する発がん性の可能性がある)」に分類した⁴⁾。一方、国内では2010年に環境省によりナフタレンのリスク初期評価が行われた²⁾。そこでは曝露マージンを用いたリスク評価が行われており、最大濃度の一般環境大気への曝露による健康リスクの判定は「情報収集に努める必要があると考えられる」、住宅内空気への曝露による健康リスクの判定は「詳細な調査を行う候補と考えられる」であり、空气中ナフタレンへの経気道曝露による健康影響が懸念されることが示唆された。しかし、このリスク評価方法は発がん性に重点が置かれたものではなく、国内における空气中ナフタレンへの曝露による発がんリスクの評価は未だ不十分であるといえる。

そこで本研究では、一般住宅を対象とした住宅内外空气中ナフタレン濃度の調査を実施し、得られた濃度情報に基づき空气中ナフタレンへの経気道曝露による発がんリスクの算出および評価を行った。また、リスク管理に必要な発生源情報の蓄積を目的とし、高濃度住宅において詳細濃度調査を行い発生源の特定を試みた。さらに、一般住宅の住宅内発生源となる可能性が考えられた調理によるナフタレンの発生の有無について確認を行った。

2. 分析条件・サンプリング条件

2-1. 分析条件

本研究では、空气中ナフタレンの採取にスチレン-ジビニルベンゼン共重合体樹脂充填捕集管(400/200mg)および携帯型ポンプを使用した。一般住宅における濃度調査にあたり、試料採取中の捕集管の破過の有無、前処理操作の抽出効率、濃縮方法の確認検討を行った。その結果、試料採取は吸引空気流量2 L/minで1時間行うこととした。試料前処理は、ジクロロメタンを用いた超音波抽出を行い、ナフタレン揮発防止用のジメチルスルホキシドを溶液の3%量添加し窒素気流下で濃縮後、定容することとした。前処理操作の添加回収率は、空气中濃度換算値で0.10~51 µg/m³の範囲において97.5~105%と良好な値であった。なお、分析には蛍光検出器付き高速液体クロマトグラフ(HPLC-FL)を用いた。

2-2. サンプリング条件

サンプリング地点は居住者の滞在時間の長い居間と寝室、および屋外の3か所とし、装置は床から1m、壁から1m以上離れた位置に設置した。居間が寝室を兼ねる住宅について

は居間内の 50cm 離れた近接 2 か所(二重測定)と屋外の 3 か所とした。実施時間帯は予備検討に基づき、居住者の活動時間帯(8-24 時間)のうち調理および窓開け換気後 1 時間以内を避けた任意の 1 時間とした。試料採取中には各地点の室温または気温測定を行い、濃度算出に用いた。また、トラベルブランク試験を居間において実施し、濃度測定用捕集管の測定値より差し引いて濃度を求めた。

3. 一般住宅内外空气中ナフタレン濃度調査

3-1. 方法

2011 年 9 月から 12 月に、東京大学大学院 新領域創成科学研究科 環境システム学専攻の学生ら宅 30 軒において住宅内外空气中ナフタレン濃度の調査を行った。また、サンプリング時に住宅の間取り、種類、築年数、居住者数および強制換気の有無についてのアンケート調査を行った。

3-2. 結果

3-2-1. 対象住宅の概要

調査住宅の内訳は、木造戸建住宅 8 軒、鉄筋戸建住宅 1 軒、木造集合住宅 5 軒、鉄筋集合住宅 16 軒であり、24 時間強制換気住宅は含まれていなかった。住宅の築年数は 1~26 年(平均 13.5 年)、居住者数は 1~5 人(平均 2.03 人)であった。

3-2-2. 住宅内外空气中濃度

Table1 に対象住宅 30 軒の住宅内外空气中ナフタレン濃度の統計値を示した。住宅内平均濃度の範囲は 0.152~38.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、一般環境大気中の濃度範囲は<0.120~0.664 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、国内外の既往報告と同程度であった。濃度の分布範囲は住宅内の方が高濃度側に広く、一般環境大気より有意に高濃度であった(Wilcoxon の符号付順位検定, $p<0.05$)。

	幾何平均	算術平均	最小値	最大値	中央値	検出率(%)
一般環境大気	0.145	0.197	<0.120	0.664	0.156	19/30(63)
住宅内平均	0.503	1.83	0.152	38.8	0.349	30/30(100)
住宅内居間	0.479	2.41	0.152	58.3	0.370	30/30(100)
住宅内寝室	0.659	1.82	0.160	19.3	0.433	18/18(100)

定量下限値: 0.120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

3-2-3. 住宅内空气中濃度/一般環境大気中濃度比 (I/O 比)

対象住宅 30 軒の I/O 比は 0.519~183 (幾何平均値: 3.46) であった。I/O 比が 1 を超える住宅が 30 軒中 26 軒あり、各住宅に共通する住宅内ナフタレン発生源の存在が示唆された。また 26 軒のうち I/O 比が 15 を超える住宅が 5 軒あり、これらの特に I/O 比の大きな住宅には各住宅に共通の発生源以外の住宅内発生源があると考えられた。

3-2-4. 統計解析

空气中濃度の分布は住宅内外ともに正規分布に従わなかった(Shapiro-Wilk 検定)。住宅の築年数と居間、寝室および一般環境大気中濃度の間に有意な関連はみられなかった(Spearman の順位相関係数)。住宅内居間と寝室それぞれの空气中濃度について、木造住宅と鉄筋住宅および戸建住宅と集合住宅それぞれの間に有意な差はみられなかった(Mann-Whitney 検定)。居間および寝室の空气中濃度について居住者数の違いによる有意差はみられなかった。また、住宅内平均濃度および一般環境大気中濃度について住宅の所在地(県および市町村)の違いによる有意差はみられなかった(Kruskal-Wallis 検定)。よって、空气中濃度に影響を及ぼしうる住宅の特徴に関する情報は得られなかった。なお、統計解

析には SPSS Ver.12.0 J (SPSS Inc.)を使用し、検定の有意水準はいずれも 5%とした。

3-2-5. リスク評価

得られた濃度情報に基づき、空气中ナフタレンへの経気道曝露による発がんリスクの評価を行った。ナフタレンの遺伝子毒性の有無については意見が分かれる場合があるため、遺伝子毒性があるとした場合とないとした場合の 2 通りのリスク評価を行った。

i) 変異原性があるとした場合 (生涯過剰発がんリスクの算出)

米国環境保護庁(US EPA)が提唱するナフタレンへの経気道曝露による発がんのユニットリスク $1 \times 10^{-4} (\mu\text{g}/\text{m}^3)^{-1}$ に³⁾、3-2-2 で得られた濃度情報より求めた一日平均曝露濃度を掛け合わせ、生涯過剰発がんリスクを算出した。その結果、平均的な濃度の空気への曝露による発がんリスクは 3.8×10^{-5} となり、一般的に用いられる許容発がんリスクレベル 1×10^{-5} を超過した。これが一般家庭における発がんリスクであることを考えると、特に住宅内滞在時間が長くナフタレンへの感受性が強いと考えられる就学前の小児での健康影響が懸念されるといえる。また最大濃度の空気へ曝露した場合の生涯過剰発がんリスクは 2.5×10^{-3} と許容レベルの約 250 倍であり、特に高濃度の住宅及び地域では空气中ナフタレンへの曝露による発がんが懸念されるといえる。これらのことから、今後行政による大規模なナフタレンの発がんリスク評価が必要であると考えられる。なお、ユニットリスクは雄マウスにおいて鼻腫瘍の有意な増加が見られた吸入曝露レベルより算出された値であり、一日平均曝露濃度は住宅内滞在時間を 15.4 時間とした場合⁵⁾の値である。

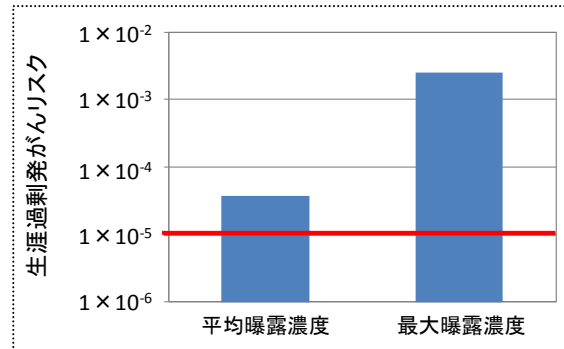


Fig.1 空气中ナフタレンへの経気道曝露による生涯過剰発がんリスク

ii) 変異原性がないとした場合 (曝露マージン)

ナフタレンの環境リスク初期評価書において環境省が使用している無毒性量等 $18.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を一日平均曝露濃度で割ることにより曝露マージン(Margin of Exposure, MOE)を算出した²⁾。その結果、平均的な濃度の空気への曝露の MOE は 50.1 であり、環境省の基準によれば「情報収集に努める必要があると考えられる ($10 < \text{MOE} < 100$)」(健康影響が懸念される)という判定となった。また、最大濃度の空気への曝露の MOE は 0.75 であり、「詳細な評価を行う候補と考えられる ($\text{MOE} < 10$)」(健康影響が強く懸念される)という判定となった。

4. 住宅内発生源調査

3-2-3 で住宅間に共通の発生源の存在、高濃度住宅固有の発生源の存在が示唆された。

4-1. 住宅間に共通の住宅内発生源について

海外の既往報告から、木材の燃焼、消費生活用製品の揮発、タバコの煙および調理の煙が住宅内ナフタレンの発生源となる可能性があると考えられた。このうち、I/O 比が 1 以上であった本研究の対象住宅 26 軒に共通する項目は調理のみであった。そこで、調理が住宅に共通の発生源となりうるかを判断するため、調理によるナフタレンの発生の有無について確認を行った。

住宅 5 軒において換気扇を停止した状態で調理を行い、調理前後の台所空气中ナフタレ

ン濃度を測定した。その結果、3軒で調理による27~287%の上昇が見られ、1軒では調理前後の各90分間(30分間3回)の平均濃度に有意な差が見られた(調理前<調理後, 対応のないt検定, $p<0.05$)。これにより、調理の際にナフタレンが発生する場合があることが確認され、調理が住宅内の普遍的な発生源となることが示唆された。発生したナフタレンは壁等に吸着し、徐々に脱着することで空气中濃度を高めると推測する。

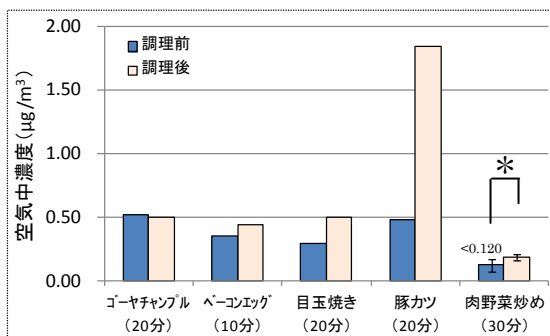


Fig.2 調理前後の空气中ナフタレン濃度
() : 調理時間, * : t 検定, $p<0.05$

4-2. 高濃度住宅内の発生源

高濃度住宅における発生源の特定を目的とし、I/O 比が15以上であった対象住宅5軒のうち住宅内濃度の高かった2軒について、住宅内複数地点での詳細濃度測定を行った。その結果、1軒(戸建住宅)では場所による濃度の違いがみられ、最も濃度の高かった居間(2か所の平均: $16.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$)内で調査を行ったところ、洋服タンスから成分にナフタレンを含む防虫剤が開封済みの箱の状態で見つかった。また、2階(3か所の平均: $4.39 \mu\text{g}/\text{m}^3$)では同防虫剤が個包装の状態で見つかった。住宅内の濃度分布と防虫剤の所在および量がよく対応していたことから、この住宅のナフタレン発生源は防虫剤であると考えられた。もう一方の住宅(戸建住宅)でも場所による濃度の違いがみられ、最も高濃度であった和室($2.09 \mu\text{g}/\text{m}^3$)内に発生源があると考えられたが、ナフタレンを含む消費生活用製品は見られなかった。また、場所による濃度差がみられたことから住宅建材からの揮発の可能性も低いと考えられ、発生源の特定には至らなかった。

5. 換気による住宅内濃度の低減

住宅内濃度低減の最も簡便な方法として換気が考えられる。換気扇を使用した状態で加熱調理を行った結果、調理中の台所空气中濃度は調理前より低下した。また、2時間の窓開け換気を行ったところ住宅内空气中濃度は $0.519 \mu\text{g}/\text{m}^3$ から $0.310 \mu\text{g}/\text{m}^3$ へ40.3%低下した。以上から、換気により調理による濃度上昇の抑制および住宅内濃度の低減が可能であることが確認された。

6. 結言

一般住宅30軒の空气中ナフタレン濃度は国内外の既往報告値と同程度であり、住宅内が一般環境大気より高い傾向にあった。経気道曝露による生涯過剰発がんリスクは、平均的な濃度の空気でも許容レベル 1×10^{-5} を超過し、特に高い濃度の空気では許容レベルの約250倍であった。今後、行政による大規模なリスク評価が必要と考えられる。住宅内の普遍的な発生源として調理が示唆されたほか、ナフタレンを含有する防虫剤の使用によって住宅内ナフタレン濃度は大きく上昇することが示唆された。また、換気により住宅内濃度の低減が可能であることが確認された。

7. 参考文献

- 1) WHO (2010): Guidelines for indoor air quality, 2) 環境省(2010): 化学物質の環境リスク評価 第8巻, 3) US EPA (1998): IRIS Toxicological Review of Naphthalene, 4) IARC (2002): Monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans, 5) (独) 産業技術総合研究所(2007): 曝露係数ハンドブック.