

## 殺虫剤等による家屋内汚染の実態

## Indoorpollution by Pesticides

加藤 龍夫\*・花井 義道\*・姜 璐\*

Tatsuo KATOU, Yosimichi HANAI and Lu JIANG

## Synopsis

In order to understand the condition of indoorpollution based on poisons, several pesticides, insecticides, antiseptics sold on the market were tested about each air pollution in a living room. Eighteen kinds of chemical poisons were classified halogenated organics, phosphorus organics and pyrethroids, and the latter of which was now most used. Experiments were carried out by measuring the pollutants generated in time using each pesticide. Autosampling system was applied to obtain the relation between concentration level and time.

As the result of this, the facts as follows were clarified.

- 1) Concentration level measured were  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  to  $0.01 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , and it was noteworthy that high level as  $10 \sim 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  continued to above 6 ~ 12 hours. On the other hand, low level below  $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  were long continued for many days.
- 2) Pesticides once scattered and adsorbed on the wall or the tatami mat had been vaporizing during it was staying there.
- 3) Two types of pollution were observed; one was the spray type which showed first high concentration and then decreasing, and the other was the powder or the tablet type which showed a constant concentration level and no decreasing.
- 4) It was considered that a kind of defective building and house, which is ill ventilated different from the usual Japanese one, is now popularizing. And therefore, many diseases such as nettle rash seemed to be caused by daily contact to pesticides would be spreading.

## 1. 緒 言

近年家庭内の農薬使用が増加して、それによる被害が心配されるようになってきた。一般に、殺虫剤、殺菌剤、防腐剤、防かび剤、除草剤等の農薬類が多用される背景には、建築様式の変化、化学薬品に対する不感症あるいはメーカーによる過度の虫害宣伝が考えられるが、もう一つの理由に毒物使用における汚染データの不足が指摘される。しかし、今日化学汚染によって環境破壊が地球規模から生活周辺に至るまで注目される時、家庭内環境の農薬汚染は早急に改善を図る必要がある。このような趣旨で本調査は、市販の農薬

類について通常の使用条件下で屋内汚染がどの様に発生しているかを把握することを試みた。

屋内農薬汚染に関しては、いくつかの報告事例がある。白蟻防除のために住宅に散布したクロルデンは各地で深刻な被害が出ており、Livingstonらは16年の長期間ほとんど減衰せず、平均  $1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、最高  $4.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を検出しており<sup>1)</sup>、鈴木らは散布後1年未満で平均  $5.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、散布後8年で平均  $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を検出している<sup>2)</sup>。樋田らは団地で散布後4年で床下  $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、居室内で  $0.43 \sim 1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を測定している<sup>3)</sup>。殺虫剤ダイアジノンについて、Jacksonらは防虫紙を設置し、30日後  $1.21 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を検出し<sup>4)</sup>、Leidyらは室内散布によって翌日  $238 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、35日後  $19.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を検出している<sup>5)</sup>。p-ジクロルベンゼンについては、花井らは室内最高1955 ppbから数 ppbまで変化し、一ヶ月で全部揮発して大気汚染の原因となることを明らかにした<sup>6)</sup>。

\* 横浜国立大学 環境科学研究センター 環境基礎工学研究室

Department of Environmental Engineering Science,  
Institute of Environmental Science and Technology,  
Yokohama National University  
(1991年11月30日受領)

このように特別なものについての調査例はあるが、現在大量に出廻っている一般家庭用農薬の実態に関する知識はまるで用意されていない。とくに、最近多用されているピレスロイド系農薬は規制も何もなく売られており、その調査は緊急を要すると考えられる。本報告は、東京都生活文化局の要請により実施した 870 検体に及ぶ実験結果から汚染の水準と持続時間について、その一部を整理して示したものである。

## 2. 実験方法

### 2.1. 実験条件の設定

住宅の代表として一戸建て木造住宅及び集合住宅の一軒につき、それぞれ室内で市販の農薬類を所定方法に従って散布して、時間毎に室内空气中農薬濃度を測定した。従って現在最も普通の住居条件と考える。実験に使用した住宅の間取りは図1に示す。

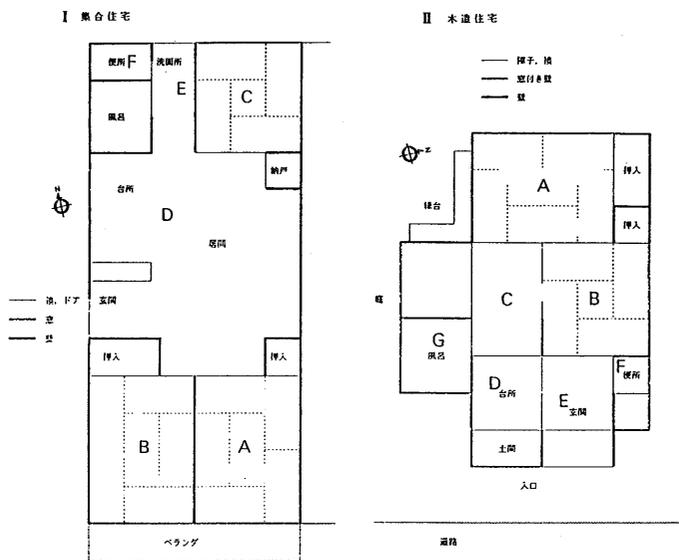


図1 実験住宅の間取り

実験は分析に互いに妨害のない成分を選び、また部屋を順次移動させて測定の能率を考えて行った。従って、同時に数種類の成分が測定された。

### 2.2. 対象商品

実験に使用した商品は市内で普通に購入できるものを集めた。その種類別商品と含まれる有効成分は表1に一覧表として示した。それぞれの成分はGC/MS分析によって確認したものである。

また、対象とした有効成分の構造式とSIM分析質量数を表2に示す。

### 2.3. 試料の採取と分析方法

室内空気の方法は大気中農薬自動採取方法<sup>7)</sup>に従って行った。この方法は図2に示すようにTenax捕集管を自動的に1時間～数時間置きに設置し数～20の空気を吸引採取し、農薬成分を吸着捕集し、これを、GC及びGC/MSに導入分析した。この時、Tenax

捕集管をGCに接続した状態で1分間加熱し、280℃で流路を切り換えて導入した。同時にカラムは常温から昇温し、カラム先端に一旦吸着した農薬成分をすべて分離よく分析できた。

分析装置：日本電子製ガスクロマトグラフ質量分析計

(GC/MS) JMS-DX303 HF

分析モード：SIM

GC：HP-5890

注入口温度：240℃

捕集管加熱温度：280℃

カラム：HP-1 (Methyl Silicone Gum)

長さ10m, 内径0.53mm, 膜厚2.65 $\mu$ m

キャリアーガス He 15 ml/min

カラム温度：50℃ (1分間) — 20℃/min,

昇温 — 240℃

セパレーター：240℃

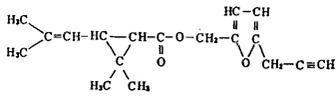
MS：分解能 1000



表2 農薬の構造式と分析質量数

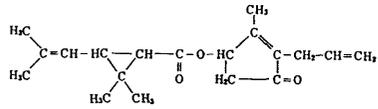
## フラメトリン furamethrin

S I M分析質量数: 123



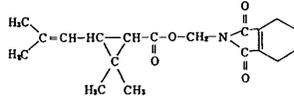
## アレスリン allethrin

S I M分析質量数: 123



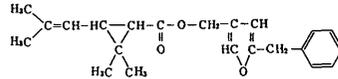
## ファルスリン tetramethrin

S I M分析質量数: 123



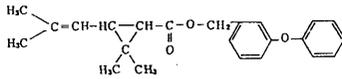
## レスメトリン resumethrin

S I M分析質量数: 123



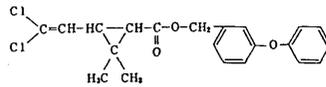
## フェノトリン phenothrin

S I M分析質量数: 123



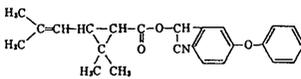
## ペルメトリン permethrin

S I M分析質量数: 163



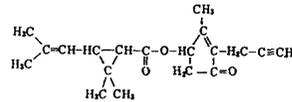
## シフェノトリン cyphenothrin

S I M分析質量数: 123



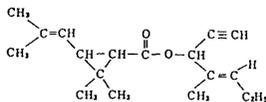
## プラレトリン prallethrin

S I M分析質量数: 123



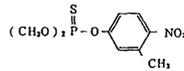
## エムベントリン empenthrin

S I M分析質量数: 123



## MEP fenitrothion

S I M分析質量数: 125



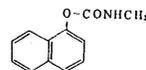
## D D V P dichlorvos

S I M分析質量数: 185, 187

(CH<sub>3</sub>O)<sub>2</sub>P=O-CH=CCl<sub>2</sub>

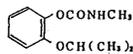
## N A C carbaryl

S I M分析質量数: 144



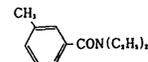
## プロボキシル (P H C) propoxur

S I M分析質量数: 110, 152



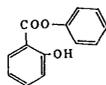
## ディート diethyltoluamide

S I M分析質量数: 119



## サリチル酸フェニル

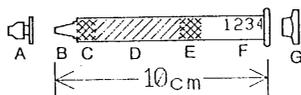
S I M分析質量数: 121



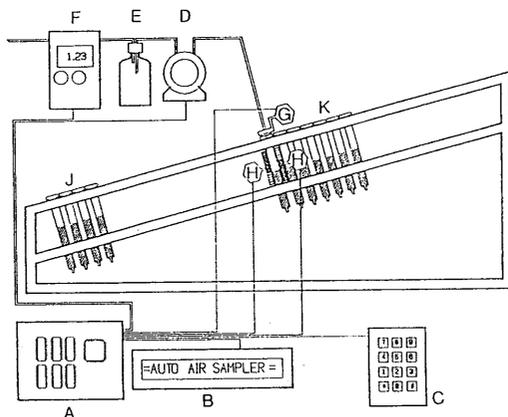
## p-ジクロロベンゼン

S I M分析質量数: 146





試料採取管  
 A: ステンレスキャップ B: 1 ml ガラス注射器  
 C, E: 石英ウール D: TENAX-GC 80/100 メッシュ  
 F: I.D. 番号 G: シリコンプラグ



自動大気採取装置の構造  
 A: マイコン (Z80) B: 液晶表示器  
 C: 数字ボタン D: 吸引ポンプ  
 E: 空気平滑器 F: 半導体積算流量計  
 G: 吸引チューブ接続モーター H: 採取管交換モーター  
 J: 採取済み採取管 K: 未採取の採取管

図2 農薬自動採取方法

表3 くん煙剤散布の実験

### 3. 屋内空气中濃度測定結果

#### 3.1. くん煙剤

商品名バルサン PV ジェットを住宅 I の A 室で使用した。殺虫剤成分はベルメトリンとジクロルボスで、後者は一名 DDVP と言い塩素を含んだ有機燐系の揮発性の高い農薬として知られている。測定結果を表3に示し、濃度時間変化として図3に示した。

ベルメトリンは最初低い濃度から徐々に上昇して、一定時間高濃度を継続して減少する。1 昼夜で  $1000 \mu\text{g}/\text{m}^3$  から  $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  まで変動が認められた。これは吸着後蒸発しにくい性質がある。一方 DDVP は最初から非常に高濃度で急速に減少して後は数  $\mu\text{g}/\text{m}^3 \sim 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  の水準を保つ状況が判った。これは、一旦壁、ふすま、畳に吸着した分が揮発し続けるためと考えられた。この結果から見ると性質の異なる2種混合によって殺虫効果の向上を計ったと判断される。

日付時刻	有効成分の空气中濃度 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]			
	DDVP	ベルメトリン		
08/26	10:55	2600	4.2	
	11:15	280	8.4	
	11:35	120	1000	
	11:55	230	940	
	12:15	7.6	1100	
	12:35	1.1	950	
	12:55	13	1800	
	13:15	68	231	
	15:15	—	—	
	17:15	8.8	54	
08/27	19:15	35	48	
	21:15	6.1	21	
	23:15	7.8	11	
	08/27	0:15	8.9	10.1
	03:15	2.2	2.6	
	05:15	40	1.2	
	07:15	4.8	0.7	
	09:15	1.2	0.9	
	11:15	4.6	0.6	
	13:15	7.2	0.3	
	15:15	3.4	0.4	
	17:15	18	—	
19:15	1.2	—		
21:15	6.0	0.1		

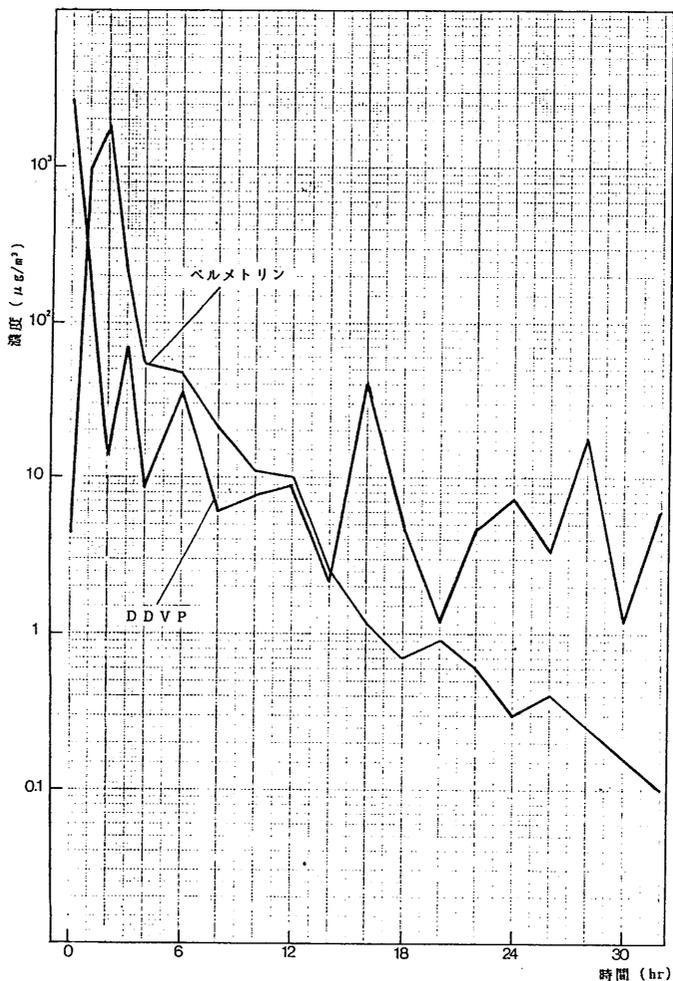


図3 くん煙剤散布の濃度時間変化

### 3.2. 蚊取り線香及び電子蚊取り

商品名アースノーマット, ベープマット f, 大正蚊取り線香, キンチョウリキッド, 大正蚊取りマット E, アース渦巻を住宅 I A 室, II A 室で使用した。すべて有効成分はアレスリンであるゆえ 3 回の実験をまとめて表示した。測定結果を表 4 に、濃度時間変化を図 4 に示した。

蚊取り用農薬は使用状況からみて、開始から次第に濃度が上昇して、最高レベルに達し、消火後次第に減少する傾向が示された。最高値は数  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  であり、減少後  $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  水準が持続することが判った。

表 4 蚊取り線香の実験

#### a 蚊取り線香と電気蚊取りの混合実験

日付時刻	有効成分の空气中濃度 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]
	アレスリン
08/03 12:05	7.4
14:05	12.0
16:05	10.2
18:05	14.0
20:05	5.0
22:05	4.0
08/04 00:05	1.0
02:05	6.0

## b 蚊取り線香の実験

日付時刻	有効成分の空气中濃度 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	
	アレスリン	
09/08 11:20	0.07	
14:20	0.12	
17:20	37	
20:20	0.11	
23:20	0.10	
09/09 02:20	0.09	
05:20	0.41	
08:20	0.04	
11:20	0.02	
14:20	0.05	
17:20	0.04	
20:20	0.08	
23:20	0.28	
09/10 02:20	0.08	
05:20	—	
08:20	0.09	
11:20	0.26	

## c 3つの蚊取り線香の実験

日付時刻	有効成分の空气中濃度 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	
	アレスリン	
10/17 12:00	0.50	
16:00	1.8	
20:00	23	
10/18 00:00	—	
04:00	30	
08:00	1.30	
12:00	0.10	
16:00	0.30	
20:00	0.03	

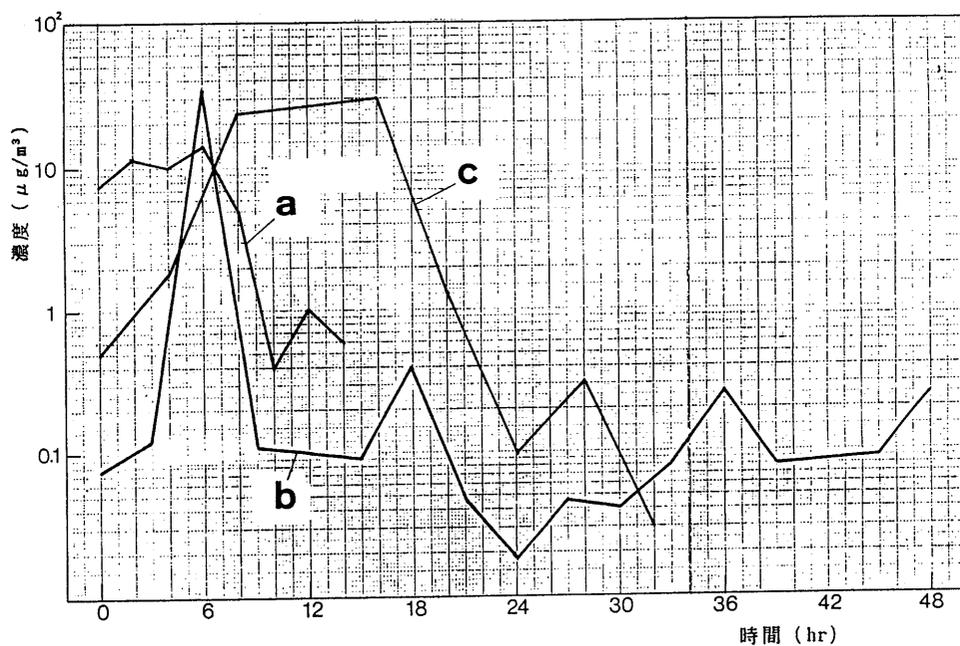


図4 蚊取り線香の濃度時間変化

## 3.3. スプレー剤

スプレー型殺虫剤として商品名スミチオン A プラス, 虫コロリアース, 大正害虫スプレーを住宅 II A 室で混合して使用した。測定結果を表 5 に, 濃度時間

変化を図 5 に示した。

4 日にわたる連続測定の結果, 6 時間程の高濃度の後徐々に減少し, 数  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  から  $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  まで変動する状況が見て取れた。1 度の噴霧の後数 10~

表 5 スプレー型殺虫剤の実験

日付時刻	有効成分の空气中濃度 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]			
	MEP	NAC	アレスリン	フタルスリン レスメトリン
09/15 12:20	145	20	28	570
15:20	47	9.6	7.8	300
18:20	6.6	2.9	2.2	115
21:20	1.1	0.39	0.56	25
09/16 00:20	1.8	0.64	0.73	70
03:20	0.52	0.27	0.84	0.69
06:20	0.69	0.64	0.76	0.42
09:20	0.64	0.33	1.3	4.3
12:20	0.29	0.30	0.78	0.23
15:20	0.075	0.095	1.9	3.6
18:20	0.29	0.25	1.6	0.99
21:20	0.29	0.24	1.4	1.7
09/17 00:20	0.23	0.13	2.6	1.3
03:20	0.18	0.13	0.12	0.023
06:20	0.21	0.13	0.13	0.080
09:20	0.063	0.11	0.16	0.14
12:20	0.18	0.19	0.16	0.090
15:20	0.16	0.12	0.17	0.10
18:20	0.085	0.13	0.17	0.58
21:20	0.14	0.11	0.12	0.060
09/18 00:20	0.007	0.095	0.25	0.033
03:20	0.075	0.075	0.078	0.044

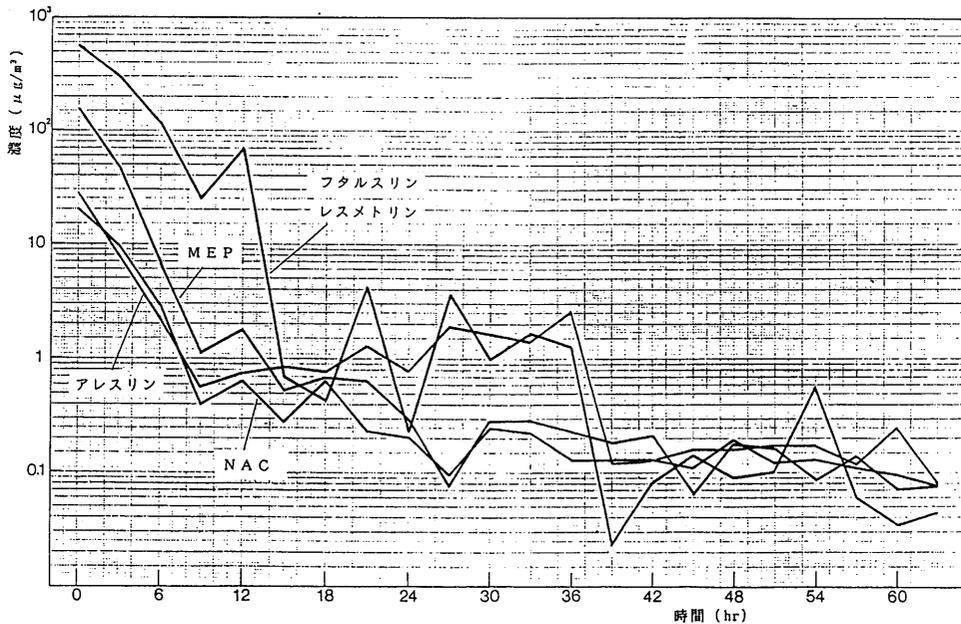


図 5 スプレー型殺虫剤散布の濃度時間変化

数  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  が数時間継続する事実は生活環境として異常なことである。

### 3.4. ダニ駆除剤

商品名ダニアース、ダニキンチョールKを住宅II

のA室で使用した。これらダニ駆除剤は畳に直接注入あるいは塗布する形式で、前者がサリチル酸フェニルとベルメトリン混合、後者がフェノトリンとディート混合剤である。測定結果を表6に、濃度時間変化を図6に示した。

表6 ダニ駆除剤の実験

日付時刻	有効成分の空气中濃度 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]			
	ベルメトリン	DEET	フェノトリン	サリチル酸フェニル
09/11 09:00	—	—	—	—
11:00	—	—	1.9	390
13:00	0.5	210	0.27	1100
15:00	1.7	190	0.66	550
17:00	2.1	170	—	540
19:00	3.1	80	0.34	310
21:00	3.6	26	0.25	31
23:00	2.0	110	0.03	360
09/12 01:00	2.2	—	0.05	—
03:00	5.8	160	0.11	530
05:00	—	180	—	—
07:00	2.3	48	—	110
09:00	—	33	—	140
11:00	2.1	—	—	—
13:00	—	49	0.99	220
15:00	0.5	21	—	110
17:00	—	23	0.27	150
19:00	—	—	—	—
21:00	—	36	0.13	190
23:00	2.7	3.5	0.27	18

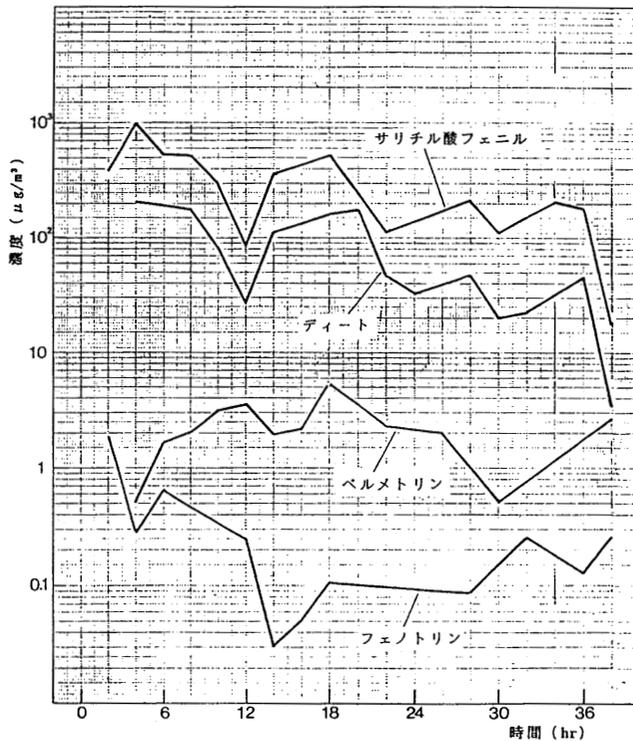


図6 ダニ剤散布の濃度時間変化

ダニ駆除剤は使用状況からみて、農薬成分が多量に残留するために室内空气中濃度の減少が見られない傾向となっている。それぞれの濃度水準はサリチル酸フェニル>ディート>ペルメトリン>フェノトリンの順が明瞭に看取された。これらは農薬の揮発性に依存する。ただし、前2者は濃度が極めて高いことが注目される。

### 3.5. 粉末殺虫剤

土間等に使用する粉剤の代表としてツーゴン微粒剤を住宅Ⅰの風呂場の床上に散布して測定は隣接する台所内で行った。有効成分はプロボキスルでカーバメイト系農薬である。測定結果を表7に、濃度時間変化を図7に示した。

表7 粉剤散布の実験

日付時刻	有効成分の空气中濃度 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	
	プロボキスル	
08/30 11:00	19	
11:20	20	
11:40	67	
12:00	53	
12:20	57	
12:40	46	
13:00	—	
13:20	32	
13:40	37	
14:00	38	
14:20	45	
14:40	26	
15:00	49	
15:20	38	
15:40	41	
16:00	32	

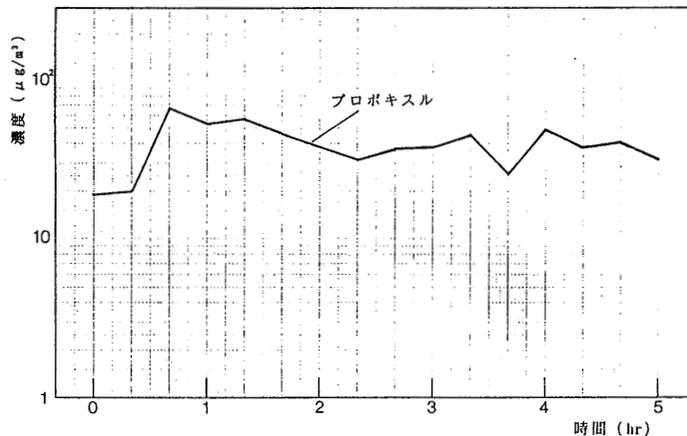


図7 粉剤散布の濃度時間変化

このような使用条件では数  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  の空气中濃度が長時間全く減少せず継続する。採取は5時間で終わっているが、粉剤がある限り全く減少する理由はない、従って、屋内のヶ所で使用すれば室内が長期にわたって汚染に曝されることになる。

### 3.6. 防虫剤と殺菌消臭剤

防虫剤6種を住宅ⅡB室の押入に入れ、戸を10cm開けた状態にして置いて室内空気を取った。有効成分はいずれも共通でエムベントリンである。また、パラゾールは錠剤を同様において同時に測定した。測定結果を表8に、濃度時間変化を図8に示した。

両成分の濃度は平行に変化しているが、減少する傾向はない、室内の換気と温度によって濃度の高低が考

表8 防虫剤設置後の実験

日付時刻	有効成分の空气中濃度 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	
	エムベントリン	p-ジクロルベンゼン
09/13 16:00	0.1	85
19:00	0.2	24
22:00	0.1	35
09/14 01:00	1.5	180
04:00	1.3	150
07:00	0.7	100
10:00	0.1	16
13:00	0.3	25
16:00	1.9	120
19:00	1.7	110
22:00	2.8	160
09/15 01:00	1.2	49
04:00	3.2	150
07:00	2.0	55
10:00	0.6	27

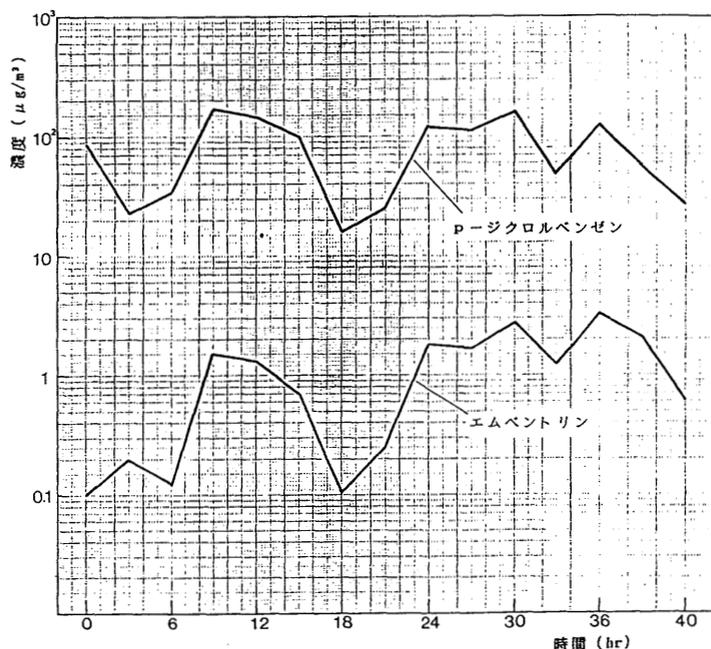


図8 防虫剤設置後の濃度時間変化

えられるが、この結果では夜間の方がむしろ高くなっている。1日の気温は25~30℃の変化に止まっており、ここでは外気の安定度の方が換気に関係したと推定される。防虫シートは $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ のレベルで、その使用状態からほとんど1年中住居内を汚染し続けるであろう。p-ジクロロベンゼンはスーパー、薬局に山と積んで売られており、その濃度の高さから警告が必要と思われる。トイレ中で使用の場合 $1000\mu\text{g}/\text{m}^3$ を越えることは珍しくなく、本実験での $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ は日常遭遇する濃度水準である。

#### 4. 考察

現在家庭内で使用されている農薬類について、その汚染の実態を把握する目的で実験を行い、毒性成分の種類、空气中濃度水準及び持続時間の大きさを示すことができた。これをまとめて以下に列記する。

- 1) 市販されている商品はピレスロイド系、有機燐系、カーバメイト系、有機塩素系その他となっている。中でピレスロイド系が最も種類が多く用いられている。商品別でみると蚊取り用にアレスリン、殺虫剤にフタルスリン、ペルメトリン、防虫剤にエンベントリンが多用されていた。
- 2) 室内汚染の濃度水準は $1000\mu\text{g}/\text{m}^3$ から $0.01\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲で測定された。全体的に数10~数100

$\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度が普通にみられたが、これは、驚くべき結果であって、日常生活空間を考えると異常な高濃度と判断される。持続状況は様々であるが、高濃度が数時間~12時間続く場合は珍しくなかった。また、 $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の汚染は何日も長期間にわたって観測された。これは、一旦室内の壁、畳などに吸着された分が揮発して起こる現象と考えられる。

- 3) 製剤の使用状態から2つの汚染の型が看取された。一時噴霧の型では始め高濃度の後時間と共に減少して行く。これに対して粉や紙や錠剤を置く型では、それが蒸発して完全になくなるまで一定濃度の汚染が継続する。とくに後者の場合、少々換気しても汚染を下げることは期待できない。
- 4) 気温、住宅形式、使用量などに関する相関については幾つか知見が得られたが、詳細な検討にはデータ不足なので次の報告でまとめたいと思う。また、各種殺虫剤などによる被害状況については、長期曝露による化学物質過敏症の発現など、医学の最先端領域として研究報告が集積されつつある。これら因果関係の解明に汚染の実態は不可欠の要素となるゆえ、今後疫学部門との協同研究を進める一歩と考える次第である。本調査から予想を超えた高濃度汚染が広く日常化している可能性を考えると、農薬を撤かなければ住めない欠陥建築の蔓延とそれによるアレルギー、神経障害

などの原因が強く指摘される。

文献：

- 1) Livingston, J.M. and C.R. Jones: Living Area Contamination by Chlordane Used for Termite Treatment, Bull. Environm. Contam. Toxicol., 27, pp.406-411 (1981)
- 2) 鈴木茂・永野敏・佐藤静雄：東京・神奈川地域における環境大気中および室内空气中クロルデン類の測定, 大気汚染学会誌, 25(2), pp.123-132 (1990)
- 3) 槌田 博・朱 暁明・加藤龍夫：白蟻防除剤クロルデンの住宅汚染, 横浜国大環境研紀要, 16, pp.137-145 (1990)
- 4) Jacson, M.D., and R.G. Lewis : Insecticide Concentrations in Air after Application of Pest Control Strips, Bull. Environm. Contam. Toxicol., 27(1), pp.122-125 (1981)
- 5) Leidy, R.B., C.G. Wright, K.E. Macleod, H.E. Dupree, and Jr. : Concentration and Movement of Diazinon in Air, J. Environ. Sci. Health, B19(8&9), pp.747-757 (1984)
- 6) 花井義道・加藤龍夫・神馬高彦・野村かおる：P-ジクロロベンゼンの大気中動態, 横浜国大環境研紀要, 12, pp.31-39 (1985)
- 7) 槌田 博・花井義道・加藤龍夫：大気中農薬の連続分析法と自動採取法の開発, 大気汚染学会誌, 25, pp.133-142 (1990)