

幼児の生活環境中における  
重金属接触曝露に関する研究

2011 年

池上 麻衣子

## 目次

1. 序論	・・・	1
1.1 はじめに		1
1.2 重金属と幼児の健康影響		2
1.3 接触経由の重金属摂取のリスク		3
1.4 本研究の目的と構成		5
参考文献		7
2. 幼児の hand-to-mouth 行動について	・・・	9
2.1 はじめに		9
2.2 Groot et al., Reed et al.による幼児の hand-to-mouth 行動の観察		9
2.3 幼児の hand-to-mouth 行動の観察		11
2.3.1 観察内容		11
2.3.2 観察結果		11
2.3.3 検討		13
2.4 おわりに		14
参考文献		16
3. 幼児の塗装面接触行動を考慮した、スミアろ紙による拭き取り法の開発	・・・	17
3.1 はじめに		17
3.2 拭き取り方法の検討		18
3.3 定量方法		18
3.4 結果と考察		19
3.4.1 拭き取り材と拭き取り条件を決定するための最適な拭き取り面		19
3.4.2 振とう時間		20
3.4.3 拭き取り材を濡らした場合の効果と拭き取り回数		21
3.4.4 ほこりなどの影響		23
3.4.5 まとめ		25
3.5 拭き取り法を用いた調査例		25
3.5.1 調査内容		25
3.5.2 結果と考察		26
3.6 スクリーニングとしてのリスク評価の試み		29
3.7 おわりに		30
参考文献		32

4. 幼児の身の回りに存在する重金属の接触曝露	・・・	33
4.1 はじめに		33
4.2 調査内容		33
4.3 測定方法		34
4.4 拭き取り調査の結果		35
4.5 幼児の手指に付着した金属		36
4.5.1 調査内容		36
4.5.2 遊んだ後の手指に付着した金属		37
4.5.3 屋内、屋外で過ごした場合の金属付着量の違い		39
4.6 幼児の手指に付着した土壌量推定のための検討		41
4.6.1 検討内容および測定方法		41
4.6.2 土壌量推定のための最適な元素の決定		41
4.6.3 手指に付着した土壌量の推定		43
4.7 手洗いによる接触経由の有害物質摂取リスク低減の効果		44
4.7.1 調査内容		44
4.7.2 測定結果		44
4.8 鉛同位体比、元素比から見た、幼児の手指に付着した重金属の起源推定		46
4.8.1 測定内容		46
4.8.2 測定方法		46
4.8.3 測定結果		47
4.9 幼児の手指に付着した土壌量		50
4.9.1 測定内容		50
4.9.2 測定方法		50
4.9.3 土壌中金属量と土壌量の関係性		51
4.9.4 土壌付着量		52
4.10 おわりに		53
参考文献		55
5. アジア諸国の都市間における幼児の重金属接触曝露調査	・・・	56
5.1 はじめに		56
5.2 調査内容		56
5.3 測定方法		56
5.4 結果と考察		56
5.4.1 クアラルンプール		56
5.4.2 クアトラレンガヌ		63
5.4.3 バンコク		66

5.4.4 マニラ	68
5.5 都市別による比較	74
5.6 環境データからの考察	77
5.7 重金属接触曝露によるリスク評価	79
5.8 接触によるリスク低減への提言	82
5.9 おわりに	86
参考文献	88
6. 結論	・・・ 91
6.1 本研究の結論	91
6.2 今後の展望	93

## 1. 序論

### 1.1 はじめに

現在、多くの化学物質が生活環境中で使用されている。化学物質は我々の生活を豊かにし、日々の生活に欠かせないものになっている。しかし、化学物質の中には、環境、人の健康に影響を及ぼすものもある。

子供が触れる可能性が高いところにも化学物質が使われている。子供は大人よりも、体重あたりの呼吸量や飲食量が多いことや、子供はものを口に運ぶ行動があることなどから、化学物質が子供へ与える影響は、大人の場合より大きいと言われている<sup>1.1)</sup>。子供の身近なところで使用され、健康に悪影響に及ぼした有害物質として、鉛が挙げられる。2004年アメリカで、鉛を含むアクセサリーを飲み込んでしまった子供に深刻な健康被害が報告されたことから、2005年2月アメリカの消費者製品安全委員会（CPSC）は、子供用の金属製アクセサリーに含まれている鉛に関する基準を設定した。基準設定後、多くの子供用金属製アクセサリーが自主回収されている<sup>1.2)</sup>。わが国においても、2008年3月に食品衛生法施行規則及び食品、添加物等の規格基準が一部改正され、「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」にアクセサリー玩具、口に接触する可能性のある知育玩具などが新たに追加され、乳幼児が飲み込むおそれのある大きさの金属製アクセサリー玩具に係る鉛の溶出規格が設定された<sup>1.3)</sup>。

このように鉛などの重金属や様々な有害化学物質は生活環境中の様々なものに使用されていることから、身近な生活環境から乳幼児や子供らへの曝露経路が存在していると考えられる。さらに、子供は色々なものに触れ、その手や指をなめたり、ものを口に入れたりすることから、手指に付着した有害物質が体内に入る可能性がある。

子供の健康を守るため、様々な取り組みがなされている。1997年に子供の環境保健に関する先進8カ国の環境大臣会合が開催され、その会合において「マイアミ宣言」が採択された。マイアミ宣言では、「曝露の予防は、環境の脅威から子供を守る唯一かつ最も効率的な手段である」と明言し、子供の環境保健を環境の最高の優先順位として取り組むことを強く求めている<sup>1.4)</sup>。環境省では、化学物質の曝露や生活環境など、胎児期から小児期にわたる子供の成長・発達に影響を与える環境要因を明らかにするため、「子どもの健康と環境に関する全国調査（エコチル調査）」への取り組みがなされている。エコチル調査は、胎児から13歳に達するまで定期的に子供の健康状態を確認する出生コーホート（追跡）調査であり、2010年度より、全国各地で10万人の妊婦を対象に調査を開始することを目指している<sup>1.5)</sup>。また、東京都では、化学物質の曝露による子供への健康影響を低減するための独自のガイドライン「化学物質の子どもガイドライン - 鉛ガイドライン塗料編 - 」や、「化学物質の子どもガイドライン - 室内空気編 - 」を作り、子供に対する化学物質曝露の抑制に向け自主的に取り組むべき具体的方策を示している<sup>1.1) 1.6)</sup>。このように子供が成長していく上で安全で健康的な環境を目指している。

子供の行動は、年齢、性別、人種・民族、社会経済的地位により異なると言われており、

子供の行動の特性は、環境汚染物質への曝露に大きく影響する。子供の手や指を口に持っていく行動は hand-to-mouth 行動と呼ばれ、hand-to-mouth 行動や物を口に入れる object-to-mouth 行動は、乳幼児が成長していく時期において自然な行動である。子供は様々なものに触れることが多く、これらの行動は大人よりも子供の方が多いため、有害物質への曝露評価を行う際、子供の hand-to-mouth 行動、接触行動など、様々な行動を考慮する必要がある<sup>1.7)</sup>。子供は「小さな大人」ではなく、子供の曝露評価を行う上でこの基本的概念を理解することが重要である。

本研究では、特に重金属に着目して、hand-to-mouth など行動様式から、身の回りに存在する重金属の接触曝露によるリスクの定量的評価を行い、現在の状況の危険性の有無について明らかにすることを最終目標とする。

以下に重金属と幼児の健康影響について、接触経由の重金属接触のリスクについて述べる。

## 1.2 重金属と幼児の健康影響

幼児は大人よりも1日の呼吸量、食事は少ないが、体重1kg当たりで比較すると大人よりも1日の呼吸量、食事に共に大きく、2倍近く多くの量の化学物質を取り込んでいることになる<sup>1.6)</sup>。また、幼児は大人よりも有害物質が広がっている床や地面に近い位置で生活していることや、hand-to-mouth 行動という幼児特有の行動をすることから、有害物質への曝露量が大きくなる可能性が高い。

有害物質への曝露について量的な要因のほか、幼児は成長の途上にあり、生理学的機能などが未熟であるため、物質によっては感受性が高いことが挙げられる。例えば、鉛は胃腸管からの吸収率が、大人では摂取量の約10%である<sup>1.8)</sup>のに対し、1~3歳児では42%<sup>1.9)</sup>と大きくなっている。また、大人と比較して幼児は鉛排泄率が低く、大人は吸収した鉛の1%を蓄積するのみであったが、2歳までの幼児は吸収した鉛の約32%を蓄積するとの報告があり<sup>1.9)</sup>、幼児の鉛の吸収と蓄積は大人よりも大きい。鉛は幼児にとって注目すべき重金属である。鉛の健康影響については、その摂取量と血中鉛濃度との関係がRyu et al.<sup>1.10)</sup>により報告されており、鉛の曝露指標として血中鉛濃度が用いられている。鉛は多くの生化学的プロセスに影響することを示してきており、造血組織に対する鉛の影響はヘモグロビン合成を減少させ、血中鉛濃度40 $\mu$ g/dL以上の幼児においては貧血が認められる<sup>1.11)</sup>。また、幼児の神経行動的機能の障害に関連することが示されている。1980年代、幼児の神経行動学的発達へ有害な影響を及ぼすと多くの報告があった<sup>1.12)</sup>ことから、アメリカ疾病予防管理センター(CDC)は、1990年初頭に幼児の血中鉛濃度10 $\mu$ g/dLを懸念されるレベル(level of concern)であると定め、米国環境保護庁(EPA)やCDCは小児の血中鉛濃度が10 $\mu$ g/dLを越えないよう勧告した<sup>1.13) 1.14)</sup>。かつて鉛の主要な曝露源は有鉛ガソリンであり、ガソリンの鉛濃度と血中鉛濃度に強い正の相関が見られたことから、多くの国で無鉛ガソリンの使用など、有鉛ガソリンに対する様々な対策が実施された。その結果、10 $\mu$

g/dL を上回っていた幼児の血中鉛濃度は 10  $\mu\text{g/dL}$  を下回るまでに大幅に低減した<sup>1.15)</sup>。しかし、最近の研究では、懸念レベル 10  $\mu\text{g/dL}$  以下であっても血中鉛濃度と IQ に負の関係が見られるなど、神経行動学的機能に影響があることが報告されている<sup>1.16)</sup>。これらの結果を受けて、2006 年にイタリアのブレシアで開催された国際労働衛生委員会 (ICOH) の神経毒性・心理生理学および金属毒性に関する合同科学委員会の鉛、水銀およびマンガンの神経毒性に関する国際ワークショップは、小児の血中鉛レベルを 5  $\mu\text{g/dl}$  まで下げるべきとする宣言を採択した<sup>1.17)</sup>。このように低濃度の曝露であっても幼児への健康影響が生じる可能性があるため、鉛曝露の低減が必要である。

### 1.3 接触経由の重金属摂取のリスク

幼児は、様々なものに触れ、その手を口に入れる行動をすることから、幼児の接触による重金属摂取のリスクが考えられる。食事、飲料水、大気、土壌、ほこりなど様々な経路を通して重金属が摂取される可能性がある。

アメリカでは、1940 年代、鉛が含まれた塗料(鉛濃度 50%以上)が広く使用されていた。1978 年に 0.06%以上の鉛が含まれる塗料の製造を禁止するまで、家の内装や外装に用いられた塗料に鉛が含まれていた<sup>1.18)</sup>。1980 年以前に建てられた家の 74%で鉛が含まれた塗料が使用されており、鉛が含まれた塗料の破片や鉛塗料に汚染されたほこりや土壌を子供が摂取することで鉛に曝露される可能性がある。Bornschein et al.は、幼児の hand-to-mouth 行動が繰り返されることによって、鉛で汚染された家のほこりが摂取され、このことが子供の体内に鉛が吸収・蓄積される主要な原因であるとしている<sup>1.19)</sup>。

鉛の経口による曝露量は吸入による曝露量より 2 桁程度多いことから、鉛の場合は経口曝露が主要経路であると考えられている。さらに経口曝露量に対する、土壌・粉じん、食品、飲料水からの摂取の寄与率が求められており、子供、大人ともに食品摂取による寄与が 80%以上と高く、食品摂取が最も重要な曝露経路であるとされている。しかし、食品からの摂取の寄与は年齢によらずほぼ一定であるのに対し、土壌・粉じんからの摂取による寄与は子供の方が大人よりも 3~5 倍大きく、土壌・粉じんからの摂取は子供の時期において特に重要な曝露であると考えられている<sup>1.20)</sup>。

Aung et al.<sup>1.21)</sup>は、東京都の子供の鉛曝露量を曝露経路別に推定している。子供(平均 5.1 歳)がいる家庭からほこりを収集し、さらに 1 週間子供の食事をすべて収集し、これらの鉛濃度を測定した。測定したほこり、食事に含まれている鉛濃度、土壌中、大気中鉛濃度から 1 日の鉛摂取量を推定した結果、平均で 21.5  $\mu\text{g}$ (ほこり: 11.7  $\mu\text{g}$ 、食事: 4.79  $\mu\text{g}$ 、土壌: 4.64  $\mu\text{g}$ 、大気: 0.39  $\mu\text{g}$ )となった。最大値は、70.4  $\mu\text{g}$ (ほこり: 35.9  $\mu\text{g}$ 、食事: 8.86  $\mu\text{g}$ 、土壌: 24.8  $\mu\text{g}$ 、大気: 0.82  $\mu\text{g}$ )であった。5 歳児の体重を 18.7kg と仮定し、1 日の鉛摂取量(平均値)から週間摂取量を求めると、8.0  $\mu\text{g/kg/week}$  となり、暫定的耐容週間摂取量 (PTWI) 25  $\mu\text{g/kg/week}$  を下回ったが、最大値を用いて週間摂取量を求めると 26  $\mu\text{g/kg/week}$  となった。ほこりや土壌の摂取は子供の鉛曝露における重要な経路とな

る可能性があり、子供の鉛摂取量を減らすためにも鉛の起源を特定することが重要であるとしている。

このように土壌やほこりは子供にとって様々な汚染源から蓄積された重金属の曝露経路となり、遊んでいるときに土壌やほこりに含まれた重金属が吸入されたり、経口摂取されたりすることが懸念される。

土壌直接摂取の重要な経路の1つとして、手指に付着した土壌から摂取する経路が考えられるため、直接摂取する土壌の粒径がどのくらいかであるかを知ることが必要となる。そこで米田ら<sup>1,22)</sup>は、土壌直接摂取のリスクに及ぼす粒径の影響を解析している。子供が屋外で遊ぶことで十分な量の土壌が付着した後、土壌で汚れた手を水洗いすることなく、食物をつかんだり食べたり、そのまま手を口に入れた場合に摂取すると考えられる土壌粒子の粒径を求めるため、3人の大人の手が付着した土壌の粒径分布を測定した。結果を図1-1に示す。図1-1より、手に付着した土壌粒子の粒径はすべて0.224 $\mu\text{m}$ ~313.083 $\mu\text{m}$ の間大きさであり、手に付着しやすい土壌の約9割が、100 $\mu\text{m}$ 以下であった。

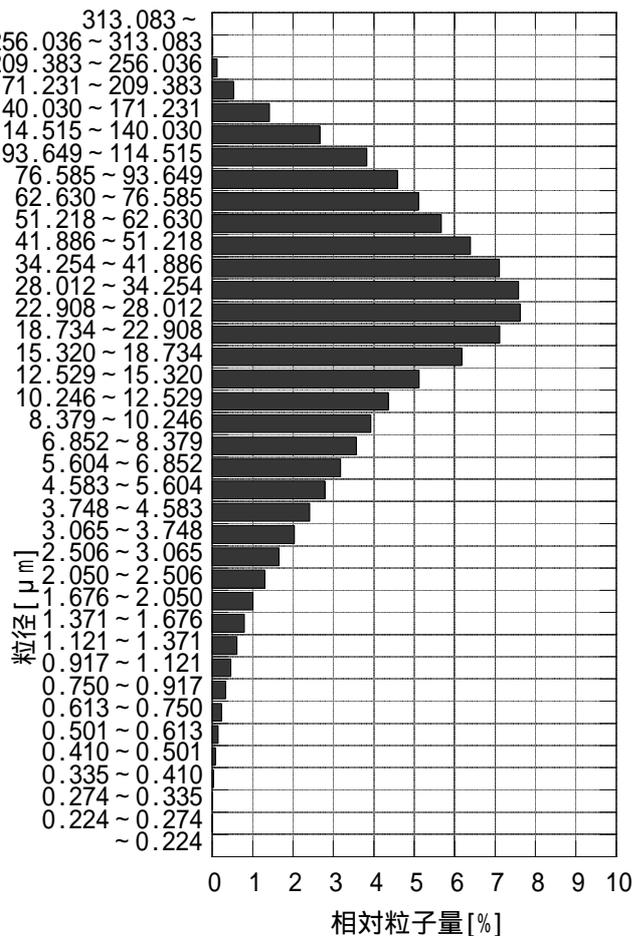


図 1-1 手に付着した土壌粒子の粒径分布  
(米田ら<sup>1,22)</sup>から引用)

hand-to-mouth 行動や物を口に入れる object-to-mouth 行動は、乳幼児が成長していく時期において自然な行動であり、触れたものを口に入れる傾向がある。幼児の身の周りにある様々なものや表面に触れることで有害物質が移行する可能性を評価するために子供の行動の定量化は重要である。

#### 1.4 本研究の目的と構成

本研究では、幼児が様々なものに触れ、hand-to-mouth 行動をすることから、幼児の身の回りに存在する重金属の接触経路による曝露に着目して、幼児の行動様式から、身の回りに存在する重金属の接触曝露によるリスクの定量的評価を試み、現在の状況の危険性の有無について明らかにすることを最終目標とする。

幼児の hand-to-mouth 行動より手指に付着した重金属が摂取される可能性があることから、まず、幼児の行動に近い、接触による重金属曝露量を推定するための方法を開発し、その方法により身の回りに存在する重金属が接触により手指に移行する可能性がある量を把握する。さらに幼児の手指に付着している重金属を定量的に把握し、手指に付着している重金属の起源を明らかにする。

都市によって生活環境も異なることから、アジアを対象に生活環境中や幼児の手指の拭き取り調査を行い、都市ごとに幼児の手指に付着した重金属量から hand-to-mouth 行動により摂取する量を求め、幼児の重金属接触曝露によるリスク評価を行い、リスク低減策を提案する。

以下に各章の構成と内容を示す。

第 2 章では、幼児の行動を観察し、遊具などの塗装から経口摂取にいたる行動パターンを把握する。幼児は身の回りにあるものに触れ、その手指を口に入れたり、ものを直接口に入れたりするなどの行動をすることから、手指に付着している物質が体内に入る可能性があり、直接摂取につながる、幼児の行動パターンを把握する必要がある。そのため、幼児の生活の様子を観察し、その中で hand-to-mouth 行動をしているかを記録する。また、幼児の hand-to-mouth 行動をしている頻度から一人の幼児が手指をなめる確率を試算し、経口摂取につながる幼児の行動を評価する。

第 3 章では、幼児の行動に近い、接触による重金属曝露量を推定する方法を開発し、その標準的な測定条件を決定する。この測定法として、本研究では拭き取り法を検討する。決定した拭き取り法を用いて、実フィールドでの実態調査を行う。

第 4 章では、前章で決定した拭き取り法を用いて、遊具の塗装面など、幼児の身近にあり、触れる可能性が高いものを拭き取り、幼児の身の回りに存在している金属類を定量的に把握する。屋外で遊んだ後の幼児の手指には様々な元素が付着していることが考えられるため、幼児の手指に付着している金属量を測定し、hand-to-mouth 行動により経口摂取される可能性のある金属類について現在の状況を把握する。また、有害金属摂取リスク低減のため、金属類の起源を明らかにする。

第 5 章では、アジア諸国の各都市において、幼児の重金属接触曝露について調査を行う。アジア諸国の生活環境の異なる都市間において、幼児の接触による重金属への曝露状況を明らかにし、接触による重金属曝露のリスク評価を行う。さらにそのリスクの大きさの地域性について検討し、リスク低減策についての提案も行う。

第 6 章では、本研究で得られた結論を総括する。

## 第1章 参考文献

- 1.1) 東京都環境局：化学物質の子どもガイドライン - 鉛ガイドライン（塗料編） -
- 1.2) Interim Enforcement Policy for Children's Metal Jewelry Containing Lead - 2/3/2005, U.S. CONSUMER PRODUCT SAFETY COMMISSION
- 1.3) 厚生労働省医薬食品局食品安全部：食品衛生法施行規則及び食品、添加物等の規格基準の一部改正について，食安発 0331007 号. (2008)
- 1.4) 1997 Declaration of the Environment Leaders of the Eight on Children's Environmental Health  
< <http://www.g8.utoronto.ca/environment/1997miami/children.html> > (accessed Aug 2009)
- 1.5) 環境省：子どもの健康と環境に関する全国調査（エコチル調査）  
< <http://www.env.go.jp/chemi/ceh/index.html> > (accessed Nov 2010)
- 1.6) 東京都福祉保健局：化学物質の子どもガイドライン - 室内空気編 -
- 1.7) Cohen Hubal E.A., Sheldon L.S., Burke J.M., McCurdy T.R., Berry M.R., Rigas M.L., Zartarian V.G., and Freeman N.C.G.: Children's exposure assessment: a review of factors influencing children's exposure, and the data available to characterize and assess that exposure. *Environmental Health Perspectives* 108 (6), 475-486. (2000)
- 1.8) WHO. Environmental Health Criteria 165: Inorganic Lead. World Health Organization, Geneva, 76-77. (1995)
- 1.9) Ziegler E.E., Edwards B.B., Jensen L.R., Mahaffey R.K., Fomon J.S.: Absorption and retention of lead by infants. *Pediatric Research* 12: 29-34. (1978)
- 1.10) Ryu J.E., Ziegler E.E., Nelson S.E., Fomon S.J.: Dietary intake of lead and blood lead concentration in early infancy. *Am. J. Dis. Child.* 137: 886-891. (1983)
- 1.11) International Programme on Chemical Safety: Inorganic lead (Environmental Health Criteria 165). World Health Organization, Geneva. (1995)
- 1.12) Center for Disease Control and Prevention: Surveillance for Elevated Blood Lead Levels Among Children United States, 1997-2001  
< <http://www.cdc.gov/mmwr/preview/mmwrhtml/ss5210a1.htm> > (accessed Oct 2010)
- 1.13) Center for Disease Control and Prevention (CDC): Preventing lead poisoning in young children. Atlanta, CDC (1991)
- 1.14) US Environmental Protection Agency (EPA): Review of the OAQPS and staff paper and the ECAO air quality criteria document supplement, report No. EPA-SAB-CASAC-90-002. US EPA, Washington, DC. (1990)
- 1.15) Thomas V.M., Socolow R.H., Fanelli J.J., and Spiro T.G.: Effects of reducing lead in gasoline: An Analysis of the International Experience, *Environmental Science & Technology*, 33 (22), 3942-3948. (1999)

- 1.16 ) Lanphear B.P., Hornung R, Khoury J, Yolton K, Baghurst P, Bellinger DC, Canfield RL, Dietrich KN, Bornschein R, Greene T, Rothenberg SJ, Needleman HL, Schnaas L, Wasserman G, Graziano J, Roberts R: Low-level environmental lead exposure and children's intellectual function: an international pooled analysis. *Environ Health Perspect* 113: 894-899. (2005)
- 1.17 ) Landrigan P., Nordberg M., Lucchini R., Nordberg G., Grandjean P., Iregren A., Alsesio L.: The declaration of Brescia on prevention of the neurotoxicity of metals. *Am J Ind Med* (in press, Epub on 11 Oct 2006).
- 1.18 ) CEH/CAPP (Committee on Environmental Hazards/Committee on Accident and Poison Prevention). Statement on childhood lead poisoning. *Pediatrics*, 79: 457-465. (1987)
- 1.19 ) Bornschein R.L., Succop P.A., Krafft K.M., Clark C.S., Peace B., Hammond P.B.: Exterior surface dust lead, interior house dust lead and childhood lead exposure in an urban environment. In: Hemphill D, ed. Trace substances in environmental health. Columbia. (MO): University of Missouri, 322-332. (1986)
- 1.20 ) NEDO 技術開発機構、産総研化学物質管理研究センター共編：詳細リスク評価書シリーズ 9 鉛
- 1.21 ) Aung N.N., Yoshinaga J. and Takahashi J.: Exposure assessment of lead among Japanese children, *Environmental Health and Preventive Medicine* 9, 257-261 (2004)
- 1.22 ) 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*, 42, 29-38 . (2005 )

## 2. 幼児の hand-to-mouth 行動について

### 2.1 はじめに

幼児は、様々なものに興味を示し、身の回りにあるものを触れ、その手をなめたり、またそのものを口に入れたりすることがよくある。食事の時も、手で直接食べ物をつかんで食べることもある。幼児の hand-to-mouth 行動は、手指に付着した物質が体内に入る可能性があることから、鉛をはじめとする有害物質への重要な曝露経路の1つである。直接摂取につながる、幼児の行動パターンを把握する必要がある。

幼児の hand-to-mouth など、口に持っていく行動は重要な曝露経路となっているが、これらの行動についての調査をしている研究は少ない。このような幼児の行動に関する調査やデータが少ないのは、幼児の行動を観察するのが難しく、データを集めるのに大きな労力を要することが原因である<sup>2.1)</sup>。

そこで本章では、幼児の重金属接触曝露を評価するために必要な一つの情報である幼児の行動を観察し、遊具などの塗装から経口摂取にいたる行動パターンを把握する。幼児は1日の大半を保育園、あるいは幼稚園で過ごすことから、本研究では、保育園での幼児の生活の様子を観察し、幼児の hand-to-mouth 行動を把握する。

2.2 に Groot et al.<sup>2.2)</sup>、Reed et al.<sup>2.3)</sup>による幼児の hand-to-mouth 行動の調査結果を示す。

### 2.2 Groot et al., Reed et al.による幼児の hand-to-mouth 行動の観察

幼児の行動の調査を行っている研究では2つの方法が用いられている。1つは幼児の行動を観察し、その場で手や指をなめている行動を記録する方法があり、もう1つは幼児の行動をビデオ撮影し、そのビデオを基に手や指をなめている行動を記録する方法である。幼児の hand-to-mouth などの行動は、その発生頻度（例えば、1時間あたりの回数）や、発生時間（例えば、1時間あたり何分その行動をしているか）で表されている。

幼児の行動を観察し、その場で口に手指や物を入れる行動（mouthing 行動）を記録する方法で、Groot et al.<sup>2.2)</sup>はオランダで3カ月～3歳の乳幼児の行動を調査している。乳幼児の子供を持つ親に、子供の行動の観察を依頼し、1日の間に子供が mouthing 行動の頻度や時間などの情報を集めた。親は、1日に10回（1回あたり15分間）、2日にわたって幼児の行動を観察し、その間にストップウォッチを用いてなめている時間を計った。36家族が調査に参加し、42人の幼児の行動が観察された。結果を表2-1に示す。

3～6か月の幼児は主に指を口に入れていたが、6～12か月の幼児はおもちゃを口に入れていた。12～36か月の幼児はほとんどが指を口に入れていた。観察結果より、年齢が大きくなるにつれて mouthing 行動をする時間が小さくなることがわかった。mouthing 行動は幼児によって大きな違いがあると報告している。

hand-to-mouth 行動は幼児の有害物質への曝露評価を行う上で、重要な情報であるが、幼児の hand-to-mouth 行動を定量化するためにビデオ撮影による方法が用いられている。

表 2-1 1日あたりの推定 mouthing 時間

		mouthing 時間		
		(min/day)		
年齢 (months)	人数	平均 ± 標準偏差	最小値	最大値
3 6	5	36.9 ± 19.1	14.5	67
6 12	14	44 ± 44.7	2.4	171.5
12 18	12	16.4 ± 18.2	0	53.2
18 36	11	9.3 ± 9.8	0	30.9

Groot et al. <sup>2.2)</sup>より作成

アメリカ EPA の調査 <sup>2.4)</sup>でも、幼児の行動をビデオ撮影し、観測者はそのビデオを見て、hand-to-mouth 行動や物を口に入れる行動、様々のものに触れる、といった行動を記録している。

Reed et al. <sup>2.3)</sup>は、アメリカ・ニュージャージー州で 2~6 歳児 30 人の行動を撮影し、hand-to-mouth 行動や物を口に入れる行動などを記録した。30 人のうち 20 人 (3~6 歳児) は保育施設での行動を、10 人 (2~5 歳児) は家での行動を撮影している。保育施設での行動は 1 人あたり平均 6 時間、家での行動は 1 人あたり 5、6 時間撮影し、その間に手をなめるといった行動の回数を記録している。これらの行動は、幼児 1 人について 5 分間隔で回数を記録し、各 5 分間の記録を集計して、行動の回数を 1 時間ごとにまとめ、1 時間ごとの回数の総数を観察時間で割ることでその幼児の 1 時間あたりの平均行動回数が求められた。幼児一人一人の 1 時間あたりの行動回数から、幼児一人の 1 時間あたりの hand-to-mouth などの行動をしている回数の平均値、中央値、90 パーセンタイル値が算出された。保育施設での行動と家での行動ではあまり違いが見られなかったことから、両方を合わせた結果が示されている。幼児一人の 1 時間あたりの hand-to-mouth などの行動をする回数を表 2-2 に示す。表 2-2 の「Other」は、紙、芝生、ペットなどを指す。

表 2-2 より hand-to-mouth 行動をする回数は平均で 9.5 回 / 時間、90 パーセンタイル値で 20.1 回 / 時間であった。これらの結果から幼児は様々なものに触れ、手指をなめたり、物を直接口に入れていることがわかる。また、これらの行動は男女に差が見られなかった。春での行動は 10.4 回 / 時間、冬では 4.6 回 / 時間と春の方が hand-to-mouth 行動をする回数が多く、季節により異なった結果が見られた <sup>2.5)</sup>。

このような幼児の hand-to-mouth 行動の定量化は有害物質の曝露量を推定するために重要な情報である。

EPA では、子供の農薬への曝露評価で、子供の hand-to-mouth 行動をする割合を 1.56 回 / 時間として計算していた <sup>2.6)</sup>。しかし、この値はかなり過小評価であるとして、hand-to-mouth 行動の回数を平均で 9 回 / 時間、90 パーセンタイル値で 20 回 / 時間を用

表 2-2 幼児一人が 1 時間あたりに行う行動の回数 (単位: 回 / 時間)

		平均値	中央値	最小値	90 パーセンタイル値	最大値
Hand-to-	Clothing	66.6	65.0	22.8	103.3	129.2
	Dirt	11.4	0.3	0.0	56.4	146.3
	Another hand	21.1	14.2	6.3	43.5	116.4
	Mouth	9.5	8.5	0.4	20.1	25.7
	Smooth surface	83.7	80.2	13.6	136.9	190.4
	Textured surface	22.1	16.3	0.2	52.2	68.7
	Other	82.9	64.3	8.3	199.6	243.6
	Object	122.9	118.7	56.2	175.8	312.0
Object-to-mouth		16.3	3.6	0.0	77.1	86.2

Reed et al. <sup>2,3)</sup>より作成

いて曝露評価することを推奨している <sup>2,7)</sup>。

本研究では、国により幼児の hand-to-mouth 行動などに違いがあるかを見るため、日本国内での幼児について、hand-to-mouth 行動の割合を求めることにした。

## 2.3 幼児の hand-to-mouth 行動の観察

### 2.3.1 観察内容

幼児の hand-to-mouth 行動を把握するため、京都市内にある K 保育園に協力していただき、2005 年 10 月、11 月の 4 日間幼児の行動を観察し、記録した。

K 保育園は、観察調査当時、0 歳児クラス 8 人、1 歳児クラス 17 人、2 歳児クラス 20 人、3 歳児クラス 24 人、4 歳児クラス 24 人、5 歳児クラス 27 人の計 120 人の園児が通っており、特に 3、4、5 歳児の行動を観察し、屋外では、遊具や砂などを触った後、手をなめる、指をくわえるなどの行動の回数、人数を数えた。また、屋内にいる時も、手をなめるなどの行動を観察した。観察は 1 人で行い、時間を計って幼児の行動を観察し、その間に手をなめる、指をくわえるなどの行動の回数、人数を数えた。はっきりとなめていることが認識できた場合を「なめる」とし、指のかなりの部分が完全に口の中に入った場合を「指をくわえる」とした。手と口とが触れるが、指がほとんど口に入っていない場合や手をなめていることがはっきりと認識できなかった場合は「口を触る」とした。人数を数える時は、同じ幼児が手を 2 回なめた場合、1 人として数えた。また、回数を数える時は、同じ幼児が手を 2 回なめた場合、2 回として数えた。

### 2.3.2 観察結果

幼児が外で遊んでいる時、手をなめる、指をくわえる、遊具を直接なめるなどの行動を

行った人数を数えた。表 2-3 は、時間を計ってその時間内に、指をくわえる、手をなめる、という行動を行った人数を数えた結果である。表 2-3 の単位時間当たり生起確率とは、後述するように一人の幼児が単位時間内に手指をなめるなどの行動をとる確率  $P$  であり、微小時間  $t$  において、その幼児が手指などをなめる行動をとる確率は  $P \cdot t$  で表される。以下、表 2-3、表 2-4 では、各観測結果に対する、このような頻度を示す。ただし表 2-4 の最後の行のデータは手指をなめるなどの行動をとった総回数を観測したため、単位時間当たり生起確率は求めている。表 2-3 から、指をくわえる、手をなめるという行動は、年齢を問わず行っていることがわかる。hand-to-mouth 行動だけでなく、スコップや鉄棒をなめる

表 2-3 屋外で遊んでいる時の幼児の行動

観察時間	観察対象	行動	年齢	人数	単位時間当たり生起確率
15分	1~5歳児 112人	スコップをなめる	1歳 4歳	2人 1人	0.30 (hr <sup>-1</sup> )
		砂を触った後、指をくわえる	2歳 5歳	1人 1人	
		鉄棒で遊んだ後、指をくわえる	4歳	3人	
25分	1~5歳児 112人	鉄棒で遊んだ後、指をくわえる、手をなめる	5歳	3人	0.55 (hr <sup>-1</sup> )
		指をくわえる、手をなめる	1歳 2歳 3歳 4歳 5歳	4人 9人 1人 4人 2人	
1時間	3~5歳児 75人	指をくわえる、手をなめる	—	18人	0.58 (hr <sup>-1</sup> )
		口を触る	—	15人	
15分	5歳児 27人	口を触る	5歳	2人	0.47 (hr <sup>-1</sup> )
		スコップをなめる	5歳	1人	
25分	3歳児 24人	指をくわえる、手をなめる	3歳	5人	0.97 (hr <sup>-1</sup> )
		口を触る	3歳	3人	
15分	3~5歳児 75人	手をなめる	—	5人	0.83 (hr <sup>-1</sup> )
		口を触る	3歳	3人	
			4歳	2人	
			5歳	2人	
		鉄棒を直接なめる	5歳	1人	
スコップをなめる	3歳	1人			

表 2-4 屋内で過ごしている時の幼児の行動

観察時間	観察対象	行動	年齢	人数 回数	単位時間当たり 生起確率
40分	3~5歳児 32人	指をくわえる,手をなめる	—	6人	0.50 (hr <sup>-1</sup> )
		ペンをくわえる	—	2人	
		ぬいぐるみをなめる	—	1人	
25分	3,4歳児 22人	指をくわえる,手をなめる	—	5人	0.76 (hr <sup>-1</sup> )
		口を触る	—	1人	
15分	5歳児 27人	指をくわえる	5歳	7人	2.92 (hr <sup>-1</sup> )
		口を触る	5歳	6人	
		歯を触る	5歳	1人	
20分	3,4歳児 22人	指をくわえる	—	6人	1.58 (hr <sup>-1</sup> )
		口を触る	—	3人	
40分	5歳児 27人	指をくわえる,手をなめる	5歳	20回	—
		口を触る	5歳	9回	

など、物を直接なめる行動も見られた。

幼児が屋内で過ごしている時、手をなめるなどの行動を観察した結果は表 2-4 である。屋内では、遊んでいたり、歌の時間、絵本の読み聞かせなどがあった。屋外での様子を観察した結果と同様に、屋内でも指をくわえる、手をなめるという行動は、年齢を問わず行っていることがわかる。また、ペンを口に入れる、ぬいぐるみをなめるなど、物を直接口に入れる行動も見られた。

このように hand-to-mouth 行動だけでなく物を直接口に入れていることから、手指や物に有害物質が付着していた場合、これらの有害物質が経口摂取される可能性が高い。

### 2.3.3 検討

2.3.2 から、幼児は、手をなめる、指をくわえるなど、hand-to-mouth 行動を行っている。接触によって塗装面から幼児の手に重金属が付着した場合、手をなめる、指をくわえるなどの行動によって、その重金属が消化器系へ移行する可能性が考えられる。塗装面から塗料中の重金属のかなりの量が接触により手や指などに移行する場合には、これらは重金属の経口曝露に繋がると推定される。ここで得られた幼児の手指をなめる頻度などから、一人の幼児が  $t$  時間の間に手指をなめる確率を試算してみる。手指をなめる頻度が個々の幼児で変わらないとして、これを単位時間当たり手指をなめる確率  $P$  (hr<sup>-1</sup>) とすると、幼児一人が微小時間  $t$  内に手指を舐めない確率は

$$1 - P \cdot t \quad (1)$$

よって、幼児一人が  $t$  時間に手指を舐める確率は

$$1 - (1 - P \cdot t)^{t/\Delta t} \quad (2)$$

で  $t \rightarrow 0$  の極限值をとった値となる。この極限値はよく知られており<sup>2.8)</sup>、

$$1 - e^{-tP} \quad (3)$$

となる。このとき観測した幼児  $n$  人中  $m$  人が  $t$  時間内に手指をなめる確率  $P_{total}$  は、

$$P_{total} = {}_n C_m (1 - e^{-tP})^m (e^{-tP})^{(n-m)} \quad (4)$$

で表される。各観測において、この  $P_{total}$  の値を最大にする  $P$  の値を  $P$  の推定値とすると、この  $P$  の値は、 $P_{total}$  を  $P$  について微分し、0 と置くことで次式のように求まる。

$$P = \ln(n / (n - m)) / t \quad (5)$$

表 2-3 と表 2-4 ではこの  $P$  の値を単位時間当たり生起確率として示している。なお、(5)式は

$$P = \ln(1 + m / (n - m)) / t \quad (6)$$

と書き直すことができるから、 $n$  に比べて  $m$  が十分小さい場合、(5)式に示す  $P$  の値は  $\ln(1 + x)$  のテイラー展開から、次式で示す、単位時間当たり手指をなめた人数の割合で近似できる。

$$P = (m / n) / t \quad (\text{ただし } m \ll n) \quad (7)$$

ここで(3)式より、一人の幼児がある一定時間の間に手指をなめるなどの行動をとる確率を求めてみる。 $P$  の代表的値として、表 2-3 と表 2-4 で得られた  $P$  の 10 個の値の中央値付近の値として、大きさの順で 5 番目と 6 番目の値の平均値  $0.67 \text{ (hr}^{-1}\text{)}$  を採用すると、求める確率は 1 時間では 0.49、6 時間では 0.98 となる。

よって、幼児が一日遊んでいれば、一度は手指を舐めるといっても過言ではない。このように幼児らの手指に付着した重金属などは、経口摂取に至る可能性が高いと考えられる。

この結果は、Reed et al.の結果と比較すると hand-to-mouth 行動の回数は小さくなっている。Reed et al.の hand-to-mouth 行動の観察は、手指をはっきりとなめていなくても手指が口に触れていれば、hand-to-mouth 行動をしたと判定しているが、本研究では、「手をなめる」、「指をくわえる」行動をはっきり認識できた場合を数えており、Reed et al.と判定方法が異なる。この判定方法の違いにより、hand-to-mouth 行動の回数に比較的大きな差が生じたのではないかと考えられる。

しかし、国別によらず、幼児は hand-to-mouth 行動を頻繁にしていることがわかった。

## 2.4 おわりに

本章では、有害物質の経口摂取につながる幼児の行動パターンを把握するため、幼児の hand-to-mouth 行動について観察を行った。その結果、以下のような結論が得られた。

1) 屋外で遊んでいる間に、幼児は手をなめる、指をくわえるなど、hand-to-mouth 行動をしていることがわかった。また、手指だけでなく遊具をなめるなど物を直接なめる行動も見られた。

2) 屋内で過ごしている間も、幼児は手をなめる、指をくわえるなどの行動をしていた。手

指だけではなく、物を直接口に入れるなどの行動も見られた。

3) 観測データを元に、幼児一人が遊んでいる間に自らの手や指などを舐める確率を求めてみると、数時間では 1 に近い値が得られた。このことから、塗装面などから幼児の手に付着した重金属は、舐めるなどの行動によって、経口曝露へと移行していく可能性が高いと考えられる。

4) 本研究の調査結果は、Reed et al.の結果と比較すると hand-to-mouth 行動の回数は小さくなっているが、hand-to-mouth 行動の判定方法が異なり、この判定方法の違いにより、hand-to-mouth 行動の回数に比較的大きな差が生じたのではないかと考えられる。しかし、国別によらず、幼児は hand-to-mouth 行動を頻繁に行っていることがわかった。

## 第 2 章 参考文献

- 2.1 )Cohen Hubal E.A., Sheldon L.S., Burke J.M., McCurdy T.R., Berry M.R., Rigas M.L., Zartarian V.G., and Freeman N.C.G.: Children's exposure assessment: a review of factors influencing children's exposure, and the data available to characterize and assess that exposure. *Environmental Health Perspectives* 108 (6), 475–486. (2000)
- 2.2 ) Groot M.E., Lekkerkerk M.C., Steenbekkers L.P.A.: Mouthing behaviour of young children: an observational study. *H&C onderzoeksraport 3*. (1998)
- 2.3 ) Reed K.J., Jimenez M., Freeman N.C.G. and Liroy P.J.: Quantification of children's hand and mouthing activities through a videotaping methodology, *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology*, 9 (5), 513-520. (1999)
- 2.4 ) Freeman N.: Susceptibility related to differential exposure and/or dose: state of the science. Presented at *The Role of Human Exposure Assessment in the Prevention of Environmental Disease*, 22–24. (1999)
- 2.5 ) Reed K.J.: Quantification of children's hand and mouthing activities through a videotaping methodology [PhD Thesis]. Camden, NJ: Rutgers University and UMDNJ Robert Wood Johnson Medical School. (1998)
- 2.6 ) U.S. EPA (U.S. Environmental Protection Agency): Standard operating procedures (SOPs) for residential exposure assessment. Office of Pesticide Programs, Washington, DC. (1997)
- 2.7 ) U.S. EPA (U.S. Environmental Protection Agency): CHILD-SPECIFIC EXPOSURE FACTORS HANDBOOK (2002)
- 2.8 ) 森口，宇田川，一松：数学公式 1，p.44，岩波書店 (1956)

### 3. 幼児の塗装面接触行動を考慮した、スミアろ紙による拭き取り法の開発

#### 3.1 はじめに

幼児は、色々のものに触れ、握るなど、多くのものに接する機会がある。特に、公園や幼稚園、保育園の園庭では、遊具で遊ぶことが多く、その際、遊具にぶら下がるなど、遊具に触れることで、遊具の塗料が手指に付着する可能性がある。

塗料は様々な所で使われており、もっとも身近な化学物質の一つであるが、これら塗料には有害性重金属が含まれているものもあり、環境への影響も考えられる。塗料に含まれている有害性重金属、特に鉛について分析を行い、多くの鉛が検出された例が報告されている。入江ら<sup>3.1)</sup>は、中学校、小学校、幼稚園、保育園、公園の塗膜中の鉛の分析を行い、その結果、採取した試料の3分の2以上が、アメリカで条例化されている The Residential Lead-Based Paint Hazard Reduction Act で、危害を判断する値として定められた塗膜中の鉛重量% 0.5%を超えていた。このように子供の身の回りで有害物質が使われていた例がある。

最近では、家電製品や自動車などでの鉛フリー化が進んでおり、塗料についても、鉛フリー化の動きがある。日本工業規格では、2003年に鉛・クロムフリー（塗膜中の含有率：鉛0.06%以下、クロム0.03%以下）さび止め塗料について規定している<sup>3.2)</sup>。わが国での塗料全体の生産量は2008年では184万トンであり、そのうちさび止め塗料は5.2万トンであった<sup>3.3)</sup>。さび止め塗料のうち、鉛含有のさび止め塗料は1.2万トン生産された<sup>3.4)</sup>。鉛系顔料（黄鉛）の塗料用途向け出荷量は、1996年度は4518トンであったのに対し、2007年度は849トンと大幅に減少している<sup>3.4)</sup>。

東京都では化学物質が及ぼす子どもへの健康影響を未然に防止するため、東京都独自に「子どもガイドライン」の策定に取り組み、鉛ガイドライン（塗料編）が作成されている。その中で、子供が多く利用する施設や遊具の塗料には、鉛フリーの塗装を使用するよう呼びかけている<sup>3.5)</sup>。しかし、上塗り塗料について鉛に関する規定はなく、遊具で塗られている塗料で古くなっているものがある。

塗料は古くなると、はがれ落ちやすくなり、触ると手に付着する可能性がある。その結果、幼児が手をなめることによって塗料中に含まれる重金属などが子供の体内に取り込まれる恐れがある。

そこで本章では、様々なものに触れる幼児の行動から、接触による重金属曝露量を推定する方法を開発し、その標準的な測定条件を決定する。この測定法として、本研究では拭き取り法を検討する。拭き取り法は放射性的表面汚染測定法で広く普及されている試験法である。この方法は測定対象表面の一定面積を試料採取用ろ紙などで拭き取り、ろ紙に付着した放射性物質の量を測定することで、表面汚染の程度を評価している<sup>3.6)</sup>。本研究では、拭き取り法での各種測定条件について検討する。

### 3.2 拭き取り方法の検討

幼児の行動に近い、標準化可能な塗装面からの重金属量を測定する方法を提案する。本研究ではこの測定法として、接触行動を近似するという観点、および測定の簡便さから、拭き取り法を採用することにした。拭き取り法では、まず塗装面を何らかの拭き取り材で拭き取った後、この拭き取り材に移行した重金属量を何らかの方法で測定する。以下では、拭き取り法を採用する場合の詳細な測定方法について検討する。

- 1) 塗装面から拭き取り材への重金属の移行量を測定する方法として、土壤汚染対策法での土壤中重金属量の測定方法を参考にして、1N 塩酸による抽出方法を採用する。1N 塩酸抽出法は、人体へ吸収され得る重金属量を近似的に測定する方法である<sup>3.7)</sup>。
- 2) 拭き取り法での測定条件の検討項目として、はじめに塗装面を何を用いて拭き取るかについて検討するための実験を行う。塗装面からの重金属移行量の測定に影響が出ないように拭き取る材質そのものに重金属ができるだけ含まれていないものにする。
- 3) いくつかの塗装面を拭き取り、最も多く重金属が検出された場所を、以下の拭き取り効率などの実験用塗装面として選択する。
- 4) 本研究では塗装面を拭き取ったものを塩酸抽出する方法を採用するが、その際、振とう時間により抽出される重金属量に変化があるのかを検討し、あれば十分な量の重金属が検出される振とう時間を決定する。
- 5) 幼児が湿った手、濡れた手で塗装面を触る場合も考えられるので、塗装面を拭き取る際、拭き取り材を濡らした場合と濡らさない場合について、拭き取り材に移行する重金属量に差があるかどうかを確認するための実験を行う。
- 6) 拭き取り回数の影響について検討するための実験を行う。塗装面からの重金属移行量は、拭き取りを繰り返すことによって、変化する場合が考えられる。このことを確認するため、同じ塗装面を 5 回拭き取った時の各回での重金属移行量、同じ塗装面を 1 回拭き取った後きれいに拭き、さらに 2 回拭き取った時の各回での重金属移行量の違いについて調べる。

また、拭き取り法による塗料からの重金属曝露量推定における、塗装面に付着したほこり中の重金属の影響を調べるため、塗料が塗られていない面で拭き取り法によって重金属が検出されるかどうか、塗装面との比較も行う。

拭き取り実験においては、一度拭き取った所は拭き取らないように気をつけた。また、拭き取る力は、約 5kg とした。これは体重 10kg の幼児が例えば鉄棒にぶら下がった時に、一つの手のひらにかかる力というように考えることができることから、妥当な値として採用した。

### 3.3 定量方法

測定元素は、数ヵ所の塗装面を対象とした事前の拭き取り実験により検出された、Cr、Mn、Co、Ni、Cd、Sn、Pb の 7 元素である。

以下の手順で、拭き取り材に移行した重金属を抽出し、定量を行った。

表 3-1 検出限界量  
(単位は拭き取り材試料中  $\mu\text{g}$ )

元素	検出限界量
Cr	$1.4 \times 10^{-1}$
Mn	$2.8 \times 10^{-3}$
Co	$4.8 \times 10^{-4}$
Ni	$2.3 \times 10^{-3}$
Cd	$2.1 \times 10^{-4}$
Sn	$9.8 \times 10^{-3}$
Pb	$4.7 \times 10^{-3}$

- 1) 拭き取り材、あるいは塗装面を拭き取ったものを容積 30ml の PP 製容器に入れ、これに 1N 塩酸 15ml を加えて、25 の恒温槽で、200 回/分で振とうする。
  - 2) 振とう終了後、抽出液を  $0.45 \mu\text{m}$  アセテートフィルターでろ過し、ろ液を試料液とする。
  - 3) 試料液に内標準物質として In (インジウム) を 100ppb となるように加え、ICP-MS (HP4500, YOKOGAWA ANALYTICAL SYSTEMS) で内標準法により測定する。
  - 4) 抽出液の各元素濃度に抽出液量である 15ml を掛けて抽出量元素量を求める。
- 検出限界値は、拭き取り材の抽出操作によるバックグラウンドの標準偏差の 3 倍とした。各元素の検出限界を表 3-1 に示す。

### 3.4 結果と考察

#### 3.4.1 拭き取り材と拭き取り条件を決定するための最適な拭き取り面

拭き取り材としては均質な材質の手に入れやすさを考慮して、RI の汚染検査に用いるスミアろ紙 (スミヤ採集濾紙、製造元アイソトープ設備研究所)、キムワイブ (キムワイブ ワイパー-S-200、製造元クレシア)、ティッシュ (スコッティ、製造元クレシア) の 3 素材を検討した。スミアろ紙は、表面に数字が書かれているろ紙と数字が書かれていないろ紙があるため、両方のろ紙を測定した。塩酸抽出法で 2 時間抽出を行った時の拭き取り材のバックグラウンド濃度の測定結果を表 3-2 に示す。表中で「-」は検出されていない、あるいは検出限界以下である。

表 3-2 よりキムワイブ、ティッシュにはろ紙より多く Mn が含まれていた。数字が書かれているろ紙と数字が書かれていないろ紙では Pb の量が異なることから、数字が書かれているろ紙のインクには Pb が含まれていることがわかる。

表 3-2 に示す結果より、本研究で用いる拭き取り材としては、最も重金属が含まれていない数字の書かれていないスミアろ紙を使用することにした。

表 3-2 各拭き取り材に含まれ得る重金属量（単位は  $\mu\text{g}/\text{枚}$ ）

	Cr	Mn	Co	Ni	Cd	Sn	Pb
ろ紙(数字あり)	-	0.03	-	-	-	-	0.070
ろ紙(数字なし)	-	0.02	-	-	-	-	0.005
キムワイブ	-	1.64	0.0030	0.07	0.0003	-	0.022
ティッシュ	-	0.96	0.0019	0.13	0.0007	0.023	0.037

表 3-3 いくつかの塗装面での重金属抽出量（単位はろ紙 1 枚当たりの抽出量  $\mu\text{g}$ ）

	Cr	Mn	Co	Ni	Cd	Sn	Pb
研究室のドア	-	-	0.002	0.019	-	-	0.12
研究室のドアの横の壁	-	0.007	-	0.003	0.0054	-	0.01
階段の手すり	-	0.135	0.014	0.038	0.0011	0.0098	1.12
玄関のドア	-	0.011	0.003	0.013	0.0004	-	0.16

スミアろ紙を用いて、以下の実験での標準的な拭き取り面として、どの場所の塗装面を拭き取るか実験を行った。京都大学工学部 5 号館（調査当時）の、ある研究室のドア、同研究室のドアの横の壁、同校舎内の階段の手すり、同校舎の玄関のドアの 4 ヲ所の塗装面で拭き取りによる重金属移行量の最も多い場所を決定した。4 ヲ所とも  $100\text{cm}^2$  拭き取った。拭き取った時の気温は、約  $14.5$  であった。

結果を表 3-3 に示す。表 3-3 より Pb 検出量の多さを考慮して、以後の実験では、階段の手すりの塗装面を測定対象とすることに決定した。

### 3.4.2 振とう時間

ろ紙を 1N 塩酸抽出する場合の振とう時間について検討した。振とう時間の検討においては、それぞれの場所の測定について近傍から得た複数のサンプルを用い、別系列（ろ紙）サンプルによる検討を行った。

階段の手すりの塗装面  $50\text{cm}^2$  ずつをろ紙で拭き取り、1N 塩酸 15ml を加えて  $25$  で、10 分、20 分、40 分、1 時間、2 時間、4 時間でそれぞれ振とう抽出した。各振とう条件について 5 ヲ所ずつ測定を行った。拭き取った時の気温は、約  $15$  であった。

Pb、Mn の結果をそれぞれ図 3-1、図 3-2 に示す。Cd は、すべて検出限界に近い値となった。また、Cr、Sn は検出されなかった。また、Mn、Co、Ni は Pb の値と比較して 10 分の 1 以下の値となったので、以下の項では、Pb の結果のみを示す。

振とう時間の長さによる重金属の検出量のきまった変化は見られなかったことから振とう時間としては 10 分あるいは 20 分でも十分と考えられたが、本章では平成 15 年環境省告示第 19 号<sup>3.8)</sup>に従って、振とう時間を 2 時間とした。環境省告示第 19 号は土壤汚染対策法

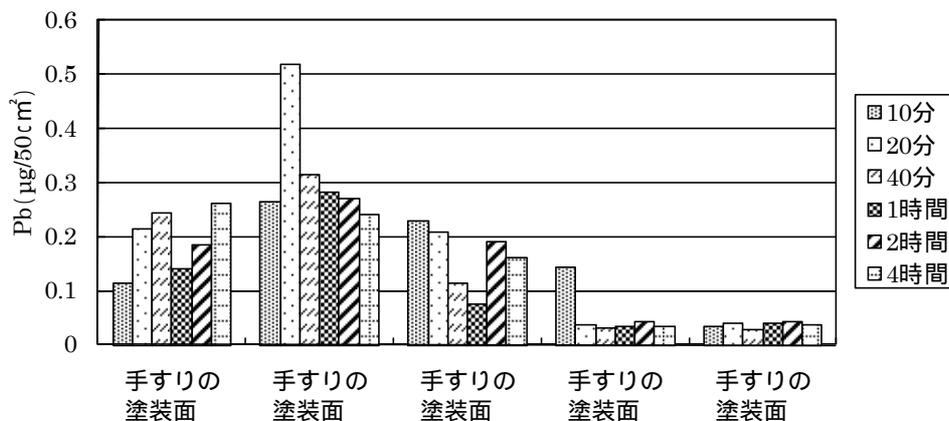


図 3-1 各振とう時間における Pb の値

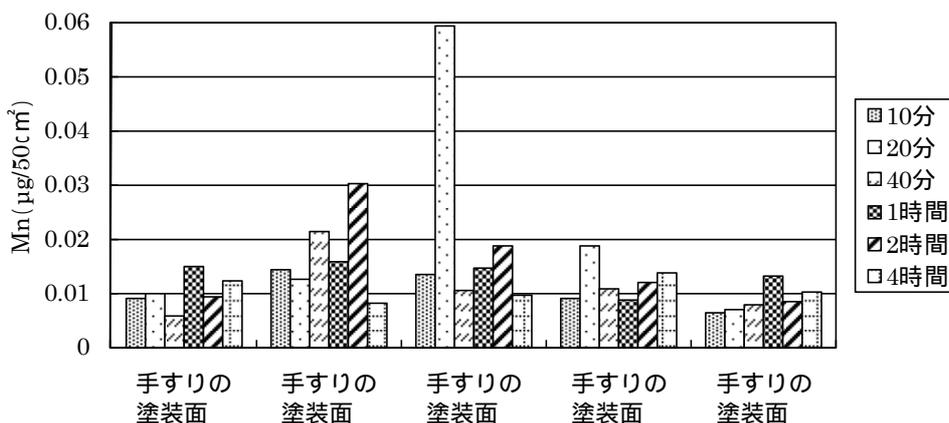


図 3-2 各振とう時間における Mn の値

施行規則（平成 14 年環境省令第 29 号）第 5 条第 4 項第 2 号の規定に基づき、環境大臣が定める土壌含有量調査に係る測定方法を定めたもので、重金属の試料液の作成で、振とう時間を 2 時間としている。

### 3.4.3 拭き取り材を濡らした場合の効果と拭き取り回数

幼児らの手や指には常に湿り気が存在すると思われる。このため、ろ紙で塗装面を拭き取る場合、乾燥したろ紙よりも、湿り気を持ったろ紙を使用の方が、より現実を近似した測定法となる可能性がある。ろ紙を濡らさず塗装面を拭き取る場合と、ろ紙を濡らして塗装面を拭き取る場合では、塗装面からろ紙への重金属移行量に違いがあるかどうか実験を行った。乾燥したろ紙、水道水で濡らしたろ紙、超純水（「Milli-Q gradient A10」（MILLIPORE）により製造）で濡らしたろ紙で、塗装面を 50cm<sup>2</sup> ずつ同じ所を 5 回拭き

取った。また3カ所拭き取った。拭き取った時の気温は、約12であった。

図3-3はPbの結果である。全体的に3カ所ともろ紙を濡らした方が多く検出された。拭き取り回数から見ると、1回目の値が最も大きかった。この理由としては、1回目で塗装面の接触により移行しやすい成分の多くが移行してしまうというメカニズムの他に、1回目は塗装面に付着しているほこりの多くが拭き取られ、このほこりの中にPbなどが多く含まれていたというメカニズムが考えられる。

一般に乾燥したろ紙よりも濡らしたろ紙で拭き取る方が重金属移行量は大きかった。また水道水で濡らした場合よりも超純水で濡らした場合の方が高濃度となる場合が多かった。よって、ろ紙は乾燥している場合よりも濡らした場合の方が、しかも濡らす場合には超純水で濡らす方が塗装面からの重金属移行量が多い。これは超純水のような純度の高い水の方が重金属を溶出しやすいからではないかと考えられるが、そのメカニズムを明らかにするには、さらに実験が必要である。しかし現実の場合を考えると、超純水のような高純度の水が手などについていることは考えられないことから、拭き取り法としては超純水で濡らす方法は採用しないこととした。また、実際に遊具などの塗装面を拭き取った場合、同じような結果が得られるどうかを確認するため、本章での拭き取り方法としては、乾燥したスミアろ紙と水道水で濡らしたスミアろ紙の両方を使用し、拭き取り操作を行うこととした。

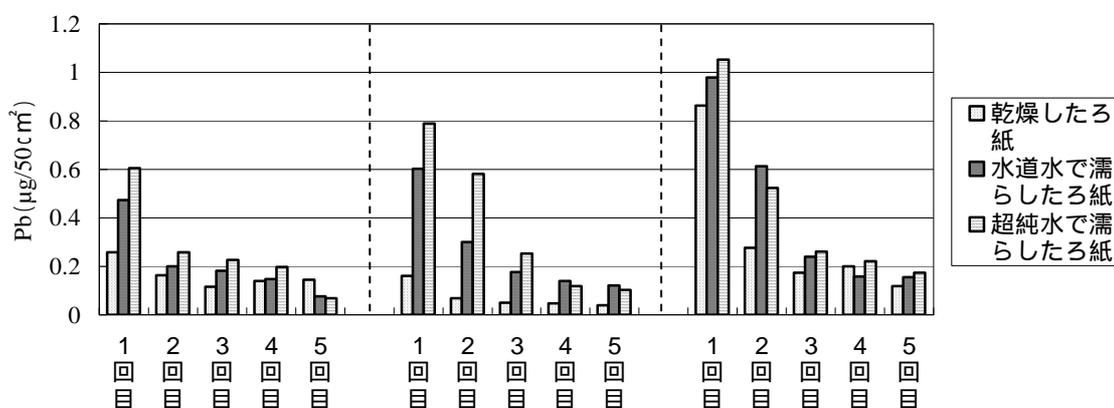


図 3-3 ろ紙を濡らさない場合と濡らした場合の Pb 量の変化

また、遊具などを拭き取る際に、幼児らが同じ場所に何回も触れる場合の重金属移行量を推定するためには、同じ所をろ紙で何回も拭き取った場合に、塗装面からろ紙への重金属移行量にどのような影響が出るかを解析しておく必要がある。同じ所を5回拭き取った場合と1回拭き取った後、水道水できれいに拭き、その後でさらに2回拭き取る場合の塗装面からろ紙への重金属移行量の違いを見るための実験を行った。3カ所について行い、拭き取った面積はそれぞれ50cm<sup>2</sup>である。拭き取った時の気温は、約6であった。

Pbの結果は図3-4のようになった。3カ所とも5回拭き取った時の3~5回目の値はあまり変わらず、きれいに拭いた後の2、3回目も値はあまり変わらなかった。

このことから同じ所を5回拭き取った場合の3~5回目と1回拭き取った後、水道水できれいに拭き、その後でさらに2回拭き取る場合の2、3回目の塗装面からろ紙への重金属移行量の違いはあまり見られない。よって、幼児らが同じ場所に何回も触れる場合の重金属移行量を推定するために同じ所をろ紙で何回も拭き取る場合には、3~5回、あるいは1回拭き取った後、水道水できれいに拭き、その後でさらに2回拭き取るなどの操作をすれば良いと考えられる。

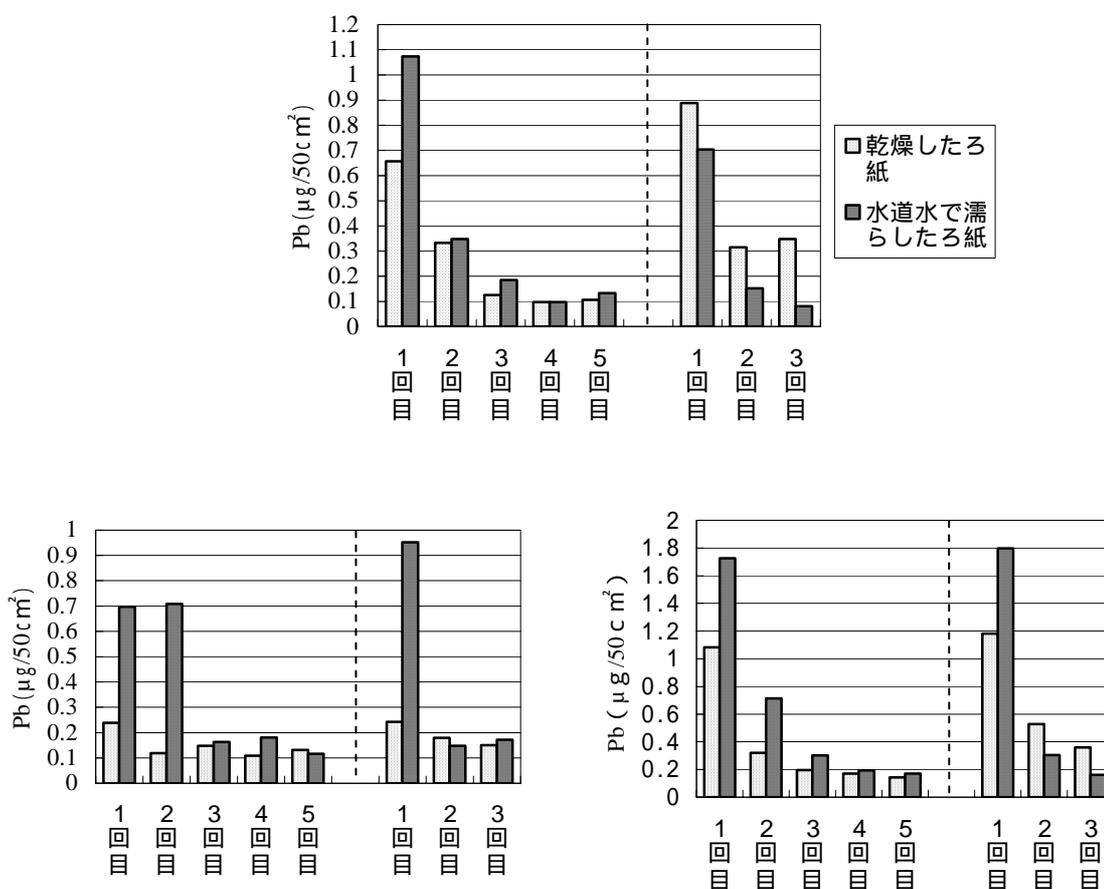


図3-4 拭き取り回数の違い (Pb)

#### 3.4.4 ほこりなどの影響

塗装面ではない面、ここでは塗料が塗られていない窓を拭き取り、拭き取り法によって重金属が検出されるかどうか実験した。京都大学構内の屋内の窓3カ所、屋外の窓3カ所を100cm²ずつ1回目に拭き取った後、水道水できれいに拭き、さらに2回拭き取った。屋内の窓を拭き取った時の気温は、約6であった。また、屋外の窓を拭き取った時の気温は、約3であった。ここではろ紙は、スミアろ紙(スミヤー法濾紙、製造元 Toyo Roshi Kaisha、

Ltd)を使用した。このろ紙もスミアろ紙(スミヤ採集濾紙、製造元アイソトープ設備研究所)と同様、重金属はほとんど含まれていなかった。

結果は、屋内、屋外とも1回目に拭き取ったろ紙には重金属が移行していたが、2、3回目に拭き取ったろ紙からは、重金属はほとんど検出されなかった。

図3-5は、屋内の窓を1回目に拭き取ったものである。単位を $\mu\text{g}/50\text{cm}^2$ に換算して表している。3ヵ所とも重金属が含まれていた。また、水道水で濡らしたろ紙の方が、重金属が多く検出された。図3-6は、屋外の窓を1回目に拭き取ったものである。単位を $\mu\text{g}/50\text{cm}^2$ に換算して表している。Mn、Pbが多く検出された。多くの重金属が水道水で濡らしたろ紙の方が、多く検出された。屋内と屋外で比べると、ほとんどの拭き取り面でMn、Pbは屋外の方が多く検出された。

これらのことから、1回目は窓に付着しているほこりの多くが拭き取られ、このほこりの中にPbなどが多く含まれていたというメカニズムが考えられる。よって、塗装面を拭き

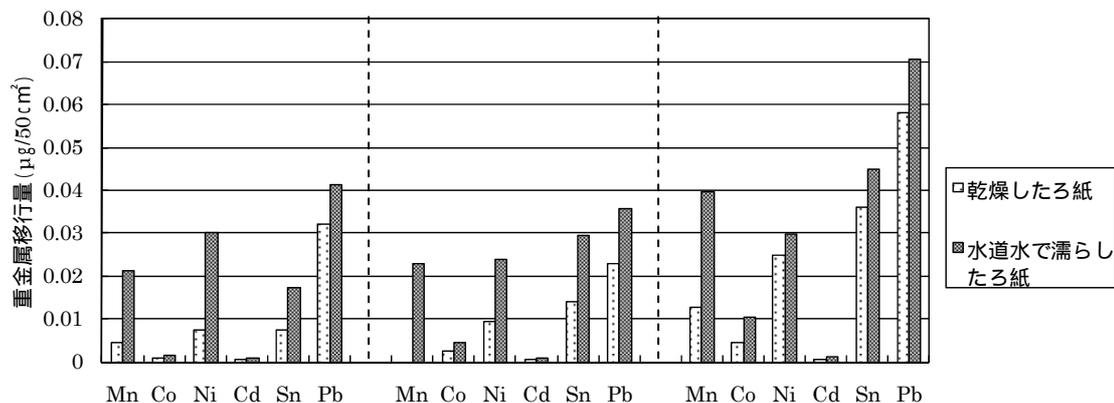


図 3-5 屋内の窓を1回目に拭き取った時の重金属移行量

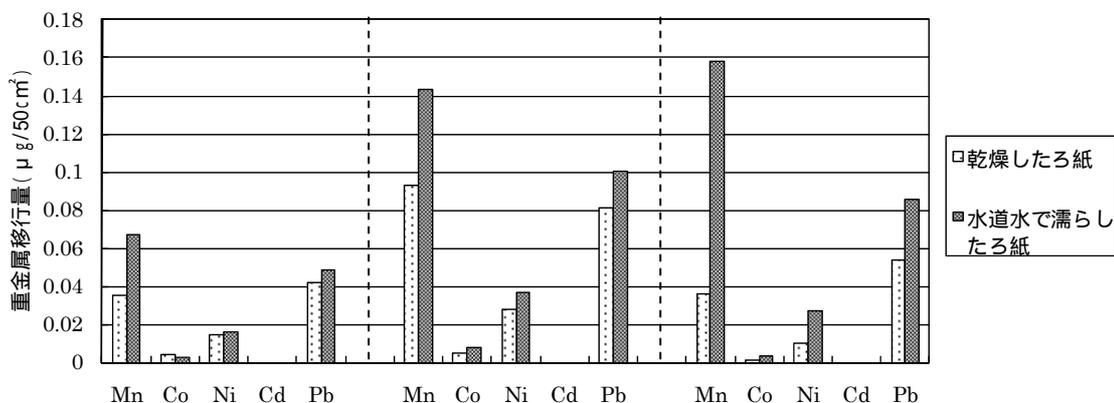


図 3-6 屋外の窓を1回目に拭き取った時の重金属移行量

取って検出される重金属は、実はこれらのほこりに由来している可能性も考えられる。

しかし、屋内の窓のほこり中の重金属量と階段の手すりを 1 回目に拭き取った時の重金属量を比較すると、階段の手すりを 1 回目に拭き取った時の重金属量は屋内の窓のほこり中の重金属量の、最小でも約 10 倍あり、値が大きい。また、塗装面から Pb などが検出される場合には、同じ所を 4 回、5 回と拭き取っても、やはり Pb などが検出され続ける。よって、ほこり中の重金属の影響も無視できないが、本研究の方法で塗装面を拭き取り、多くの重金属が検出された場合には、塗料からろ紙に移行した重金属の影響が大きいと考えられる。

### 3.4.5 まとめ

塗装面から手や指などへの接触による重金属移行量を測定する方法は、以下の方法に決定した。表面に数字が書かれていないスミアろ紙を用い、約 5kg の力で塗装面を拭き取り、乾燥したろ紙と水道水で濡らしたろ紙の両方を用いて拭き取る。また、同じ所に複数回接触する場合の影響を解析するためには、同じところをろ紙で 3~5 回拭き取る、あるいは 1 回拭き取った後、水道水できれいに拭き、その後でさらに 2 回拭き取るなどの操作を行う。

## 3.5 拭き取り法を用いた調査例

### 3.5.1 調査内容

3.4 で決定した測定法を用いて、保育園、公園の遊具を拭き取り、測定を行った。

幼児の行動観察で協力していただいた K 保育園の遊具を拭き取った。拭き取った遊具、遊具を拭き取った面積、遊具の塗料の色、塗装の状態を表 3-4 に示す。

公園の拭き取りは 2 ヶ所で行い、それぞれ公園、公園とする。公園は、奈良県五條市にある公園で、設置年数は調査当時で約 2、3 年になる。公園は、和歌山県橋本市にある公園で、近くの住民によると、設置年数は調査当時で約 12、3 年になる。公園、公園の拭き取った遊具、拭き取った遊具の塗料の色と塗装の状態をそれぞれ表 3-5、表 3-6 に示す。

表 3-4 保育園で拭き取った遊具

	面積(cm <sup>2</sup> )	塗料の色	塗装の状態
すべり台の手すり (階段)	100	青	はがれている
すべり台の手すり (すべるところ)	400	青	はがれている
うんてい	100	赤	はがれていない
うんてい	100	黄	はがれていない
ジャングルジム	100	黄	少しはがれている
鉄棒の支え	100	赤	はがれていない

表 3-5 公園 で拭き取った遊具

	面積(cm <sup>2</sup> )	塗料の色	塗装の状態
すべり台の手すり (階段)	100	白	はがれていない
すべり台の手すり (すべるところ)	100	青	はがれている
ブランコの支え	100	黄	少しはがれている

表 3-6 公園 で拭き取った遊具

	面積(cm <sup>2</sup> )	塗料の色	塗装の状態
うんてい	100	白	はがれている
つり輪	100	緑	はがれている
乗り物の取っ手	100	黄	少しはがれている
円形のジャングルジム	100	赤と青	はがれている

### 3.5.2 結果と考察

#### (1) 保育園

それぞれの遊具について、同じ塗装面を 5 回ずつ拭き取った。

測定した結果、すべての遊具について Cr、Sn、Cd は、検出限界以下、あるいは検出されなかった。また、Pb が最も多く検出された。小学校などの遊具の塗膜成分中に多くの Pb が検出された例が報告されており<sup>3.1)</sup>、今回の拭き取り法による結果でも同じ傾向を示している。

図 3-7 は Pb の結果で、図の左側は 1 回目に拭き取った値であり、右側は 3 回目に拭き取った値である。すべり台の階段の手すりからは多くの Pb が検出された。

塗装の状態から見ると、塗装がはがれている方が Pb の量が多く、塗料の色から見ると、ここではすべり台の階段の青色の塗料から最も多く Pb が検出されたが、うんていの黄色や鉄棒の赤色の塗料からも検出されており、Pb は様々な色の塗料に含まれていることがわかる。なお、同じうんていで比較すると、赤色より黄色の塗料の方がやや多く検出された。

今回の調査では、すべり台の階段など、ろ紙を乾燥させた場合の方が多く Pb が検出された場合もあり、3.4.3 での結果と異なった。これは塗装面の状態などによって、必ずしもろ紙を濡らして拭き取った方が、ろ紙への重金属移行量が多いとは限らないことを意味している。拭き取り回数についても 3.4.3 での結果と異なり、すべり台の階段やすべり部分の手すりでは、1 回目より 3 回目の方が、検出された Pb の量が多くなっている。これらの結果は拭き取った塗装面の状態が、はがれかけている状態などに関係していると思われ、この

ような場合は、拭き取り回数を増やすと、かえってはがれた塗料の微粉末がろ紙に移行しやすくなり、Pbが高濃度で検出されるという結果になったのではないかと考えられる。いずれにせよ、フィールドの塗装面からの重金属移行量を拭き取り法で推定する場合は、拭き取り材の状態や拭き取り回数の違いによる重金属抽出量の違いに関して、注意が必要である。

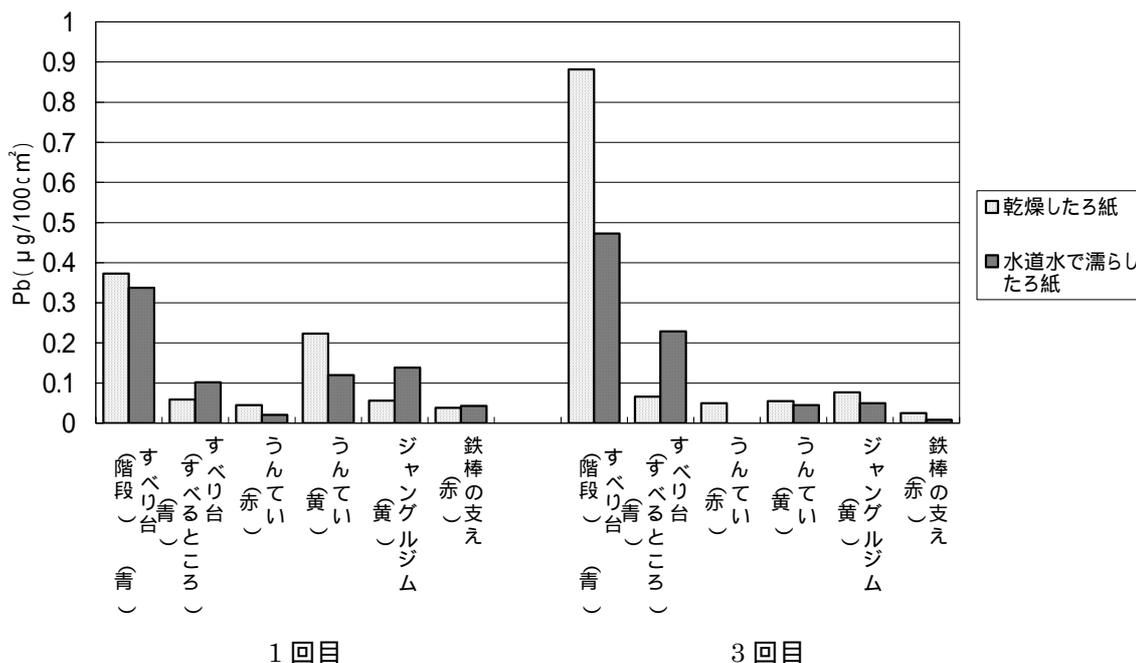


図 3-7 保育園の遊具を拭き取った時の Pb の値

## (2) 公園

遊具の塗装面について同じ箇所をそれぞれ5回ずつ拭き取った。遊具は、1回拭き取った後、水道水できれいに拭き、さらに2回拭き取った。Cr、Sn、Cd、Niは検出限界以下、あるいはほとんど検出されなかった。

図 3-8 の左側は公園の遊具を1回目に拭き取った Pb の結果である。塗料の色から見ると、ブランコの支えに用いられていた黄色の塗料で最も多く検出されている。またその検出量はすべり台から検出された量より、一桁大きい値であった。

公園では、特に円形のジャングルジムの塗装がはがれていた。公園の遊具で1回目に拭き取った Pb 量を図 3-8 の右側に示す。塗装の状態から見ると、今回の測定結果からは塗装がはがれている方が Pb は多く検出される傾向が見られた。また、塗料の色から見ると、ここでは赤と青の塗料で最も多く検出された。なお、ここで円形のジャングルジムから検出された  $4 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  という値は、今回のフィールド調査での最大値であった。

公園は公園に比べ、設置年数が少ないが、その公園の遊具から大きな値が得られた

ことから、比較的最近設置された遊具であるからといって、塗料中重金属含有量が少ないというわけではないことがわかる。また、赤と青の塗料（公園の円形のジャングルジム）が最も多く検出されたが、公園にあるすべり台の青の塗料は  $0.5 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以下である。2番目に多く検出されたのは図 3-8 から黄色の塗料（公園のブランコの支え）であるが、Pb などの移行量が高濃度となる色としては、特に決まった色があるわけではないことが推察された。

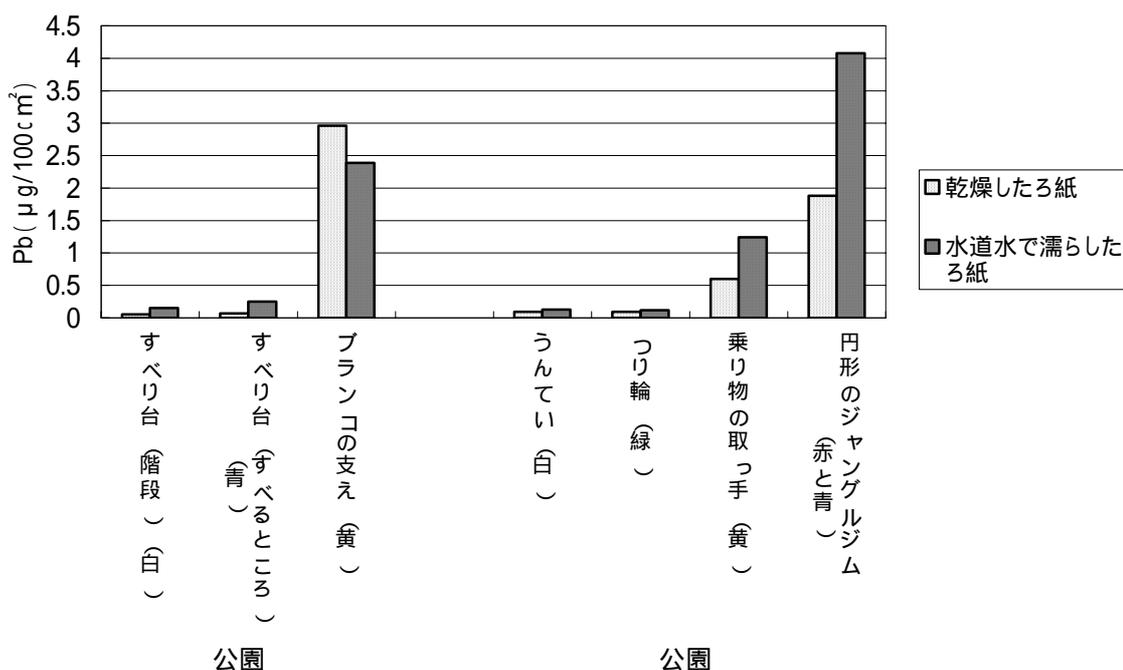


図 3-8 公園の遊具を 1 回目に拭き取った時の Pb の値

公園のジャングルジムから最大で  $4 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  の鉛が検出された。この調査から 1 年後、この公園では遊具の塗料が全て新しく塗り替えられ、最も多く鉛が検出されたジャングルジムもピンク色の塗料に塗り替えられた。そこで、塗料が新しく塗り替えられたことで鉛移行量に変化が生じるのかを確認するため拭き取り法により測定した。ジャングルジムの塗装面  $100\text{cm}^2$  を約 5kg の力で同じ個所を 3 回拭き取り、拭き取り材は、乾燥したる紙、水道水で濡らしたる紙の両方を用いた。結果を図 3-9 に示す。

図 3-9 より、塗料が塗り替えられる前は  $1 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以上の鉛が検出されていたが、塗り替えられた後は全て  $0.05 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以下となった。公園の調査より比較的新しく設置された遊具からでも鉛が検出されたことから、ジャングルジムに新しく塗られた塗料には鉛がほとんど含まれていないことがわかる。

よって、遊具から多くの鉛が検出されたとしても、鉛が含まれていない塗料で塗り替えることによって、接触による重金属移行量を減少させることができると考えられる。

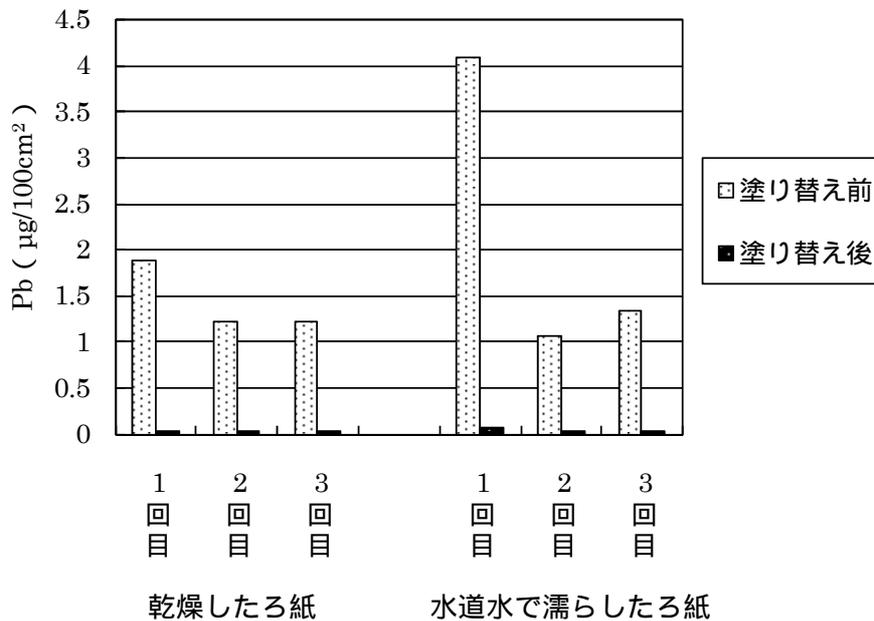


図 3-9 塗り変え前後の遊具からの鉛移行量

### 3.6 スクリーニングとしてのリスク評価の試み

今回の調査結果を元に、幼児の遊具などへの接触による重金属曝露量を推定する。調査結果より、ほとんど鉛だけを検出した場合が多かったので、鉛が最も曝露の可能性が高い重金属だと考えて、ここでは鉛に関してのみ推定を行うことにする。

曝露量評価を行う上では、安全側の数値を採用するものとする。よって、塗装面から幼児の手や指などへの移行量の推定値としては、今回の拭き取り調査での最大値を採用する。今回の調査結果で最大の検出量は、公園の円形のジャングルジムであり、その値は濡らしたる紙で約  $4.0 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  であった。ジャングルジムは直接手で握って遊ぶ遊具であり、この遊具で遊ぶ幼児はかなりの面積に接触するものと考えられる。接触面積は、幼児の手の面積とする。Amirsheybani<sup>3.9)</sup>らは年齢ごとに手の大きさを測定しており、身長 100cm の幼児の手の大きさは約  $50\text{cm}^2$  であることが報告されていることから、幼児の手の面積を  $50\text{cm}^2$  とする。ここではおよその値として、幼児がつかむジャングルジムの棒の面積を  $50\text{cm}^2$ 、このジャングルジムで 1 日当たり 10 分間、遊ぶと仮定して、6 秒毎に新たな場所を握るものとする。すると、この幼児が接触する面積は  $50 \times 10 \times (60/6) = 5000 \text{cm}^2$  となる。接触した面積から手や指に移行した鉛が全て手や指に付着しているわけではないと考えられるが、ここでは安全側に考えて、接触した面積から移行する鉛は、全て手や指に付着するとする。1 日当たり、接触によりこの幼児の手や指にジャングルジムから移行する鉛量は、

$$4 \mu\text{g}/100\text{cm}^2 \times 5000\text{cm}^2 = 200 \mu\text{g}$$

となる。これら全てが経口摂取へと移行するわけではないが、ここでも安全側を考え（例

例えば非常に手や指をよく舐める癖のある幼児である場合などを仮定し、手や指についた鉛の全てが経口摂取へ移行すると考える。本研究の鉛濃度測定法である 1N 塩酸抽出法は、消化器系に入った場合に溶出吸収される鉛量を近似して測定していると考えられるため、これら全量が幼児の体内に吸収されると考えることが妥当である。この幼児の体重を 16kg とすると、この幼児の鉛摂取量は

$$200 \div 16 = 12.5 \text{ } \mu\text{g/kg}$$

となる。

この幼児がほぼ毎日、このジャングルジムで遊ぶと考えると、この鉛摂取量と TDI を比較することで、リスクの大きさを評価できる。鉛は人体への蓄積性があることから、消化管からの吸収率が高く、最も感受性が高い乳児の代謝研究に基づき、耐容一日摂取量(TDI)を体重 1kg 当たり  $3.5 \mu\text{g}$  と算出している<sup>3,10)</sup>。この幼児がジャングルジムへの接触によって摂取する鉛量は TDI の約 3.6 倍となる。

今回のリスク評価で用いた仮定は、手指に付着した鉛量が全て体内に移行するとしており、鉛の体内への移行率を考慮していないため、リスクを過大評価していると考えられる。TDI の約 3.6 倍となった鉛摂取量は推定されうる最大のリスクに近いとみなすことができ、実際のリスクについてはさらなる調査が必要である。

ここで行った接触によるリスク評価法は、リスクを過大に評価する可能性が高いと考えられるが、サンプリング自体は誰でも可能であるという測定法の簡便さから、より詳細なリスク評価が必要かどうかを判断するための第 1 段階でのスクリーニング手法として考えると、きわめて有効な方法ではないかと考えられる。

### 3.7 おわりに

本章では、幼児らの塗装面への接触に起因する、重金属の直接曝露に注目し、曝露量を推定するための測定法の開発と、実フィールドでの実態調査を行った。この測定法として、拭き取り法を検討し、標準的な測定条件を決定した。その結果、以下のような知見・結論が得られた。

1) 塗装面から拭き取り材への重金属の移行量を測定する方法として、土壌汚染対策法での土壌中重金属量の測定方法を参考にして、1N 塩酸による抽出方法を採用した。拭き取り法での測定条件の検討項目として、はじめに塗装面を何を用いて拭き取るかについて検討し、拭き取り材としては、塗装面からの重金属移行量の測定に影響が出ないように、拭き取る材質そのもののバックグラウンド重金属濃度が最小であった、表面に数字の書かれていないスミアろ紙に決定した。

2) 本研究では塗装面を拭き取ったものを塩酸抽出する方法を採用したが、その際、振とう時間により抽出される重金属量に変化があるのかを実験により検討した。その結果、振とう時間の長さによる重金属の検出量のきまった変化は見られなかったことから、本章では環境省告示第 19 号に従って、振とう時間を 2 時間とした。

- 3) 塗装面を拭き取る際、拭き取り材を濡らした場合と濡らさない場合について、拭き取り材に移行する重金属量に差があるかどうかを確認するための実験を行った結果、京都大学5号館の階段の手すりについては、乾燥したろ紙よりも濡らしたろ紙で拭き取る方が重金属移行量は大きい場合が多かった。
- 4) 同じ塗装面を5回拭き取った場合の3~5回目と、1回拭き取った後、水道水できれいに拭き、その後でさらに2回拭き取った場合の2、3回目の塗装面からろ紙への重金属移行量の違いはあまりみられなかった。よって、幼児らが同じ場所に何回も触れる場合の重金属移行量を推定するため同じ所をろ紙で何回も拭き取る場合には、3~5回、あるいは1回拭き取った後、水道水できれいに拭き、その後でさらに2回拭き取るなどの操作をすれば良いと考えられる。
- 5) 対照実験として、塗料が塗られていない窓を拭き取り、重金属が検出されるかどうか実験を行った。その結果、屋内の窓のほこりを1回目に拭き取った時の重金属量に比べ、階段の手すりを1回目に拭き取った時の重金属量が最小でも10倍と大きかった。ほこり中の重金属の影響も無視できないが、本研究の方法で塗装面を拭き取り、多くの重金属が検出された場合には、塗料からろ紙に移行した重金属の影響が大きいと考えられる。
- 6) 本研究で開発した測定法を用いて、公園の遊具を拭き取り、測定した結果、遊具の塗料中に鉛が含まれているものもあった。塗装がはがれている方が鉛は多く検出される傾向が見られたがサンプル数が少ないため、一般的な結論を導くには不十分であると考えられた。また塗料の色についても必ずしも決まった色からの検出量が多いわけではないと推察された。なお、今回の調査での鉛量の最大値は、公園のジャングルジムで $4\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ であり、憂慮すべきレベルのものが存在することが明らかとなった。鉛が多く検出されたジャングルジムの塗装面は新しく塗り替えられ、塗り替え後の塗装面からは鉛は $0.05\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ となり小さい値となったことから、鉛が多く検出されたとしても鉛が含まれていない塗料で塗り直すことで鉛移行量を減少することができる。
- 7) 今回の調査結果を元に、この幼児の手指にジャングルジムから移行する1日当たりの鉛量を試算すると、 $200\mu\text{g}$ となった。非常に手や指をよく舐める癖のある幼児である場合などを仮定し、手や指についた鉛の全てが経口摂取へ移行すると考えると、この幼児がジャングルジムへの接触によって摂取する鉛量はTDIの約3.6倍となる。ここで用いた仮定はリスクを過大評価している可能性が高いが、この幼児がほぼ毎日、このジャングルジムで遊ぶと考えると、塗装面に由来する鉛摂取のリスクは憂慮すべきレベルとなる可能性があり、より詳細な調査が必要であると考えられる。

このように本研究の方法によって、幼児の塗装面への接触行動による重金属移行量の大きな推定を行うことにより、塗装面からの接触曝露によるリスクのスクリーニングが可能である。また、本章では遊具などの塗装面を拭き取ったが、この拭き取り法ではほこりなどが付着している表面の拭き取りにも応用可能であると考えられる。

### 第3章 参考文献

- 3.1) 入江和夫, 前田典子, 吉田啓子, 鹿庭正昭: 学校, 公園遊具から収集した塗膜中の鉛分析. 日本家政学会誌, 48 (12), 1103-1109. (1997)
- 3.2) 日本規格協会: JIS K5674 鉛・クロムフリーさび止めペイント (2008)
- 3.3) 経済産業省: 平成 20 年化学工業統計年報 (2008)
- 3.4) 厚生労働省: 化学物質のリスク評価に係る企画検討会 (第 5 回) 資料 4 鉛含有塗料の実態について  
< <http://www.mhlw.go.jp/shingi/2010/03/dl/s0317-5f.pdf> > (accessed Nov 2010)
- 3.5) 東京都環境局: 化学物質の子どもガイドライン - 鉛ガイドライン (塗料編) -
- 3.6) 日本規格協会: JIS Z4504 放射性表面汚染の測定方法 - 線放出核種 (最大エネルギー0.15MeV 以上) 及び 線放出核種 (2008)
- 3.7) 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, 42, 29-38. (2005)
- 3.8) 環境省: 平成 15 年環境省告示第 19 号  
< <http://www.env.go.jp/water/dojo/law/kokuji/04.pdf> > (accessed Jan 2006)
- 3.9) Amirshaybani H.R., Crecelius G.M., Timothy N.H., Pfeiffer M., Sagers G.C., Manders E.K.: The natural history of the growth of the hand: I. Hand area as a percentage of BSA. Plastic and reconstructive surgery, 107:726-733. (2001)
- 3.10) 環境省: 化学物質ファクトシート 2008 年度版  
< <http://www.env.go.jp/chemi/communication/factsheet.html> > (accessed Sep 2009)

## 4. 幼児の身の回りに存在する重金属の接触曝露

### 4.1 はじめに

幼児の身の回りには様々な金属が存在する。幼児は、色々なものに興味を示し、多くのものに触れることから、その表面に金属が付着、あるいはそのもの自体に金属が含有している場合、幼児が触れることにより、金属が手指に付着し、さらにその手を口に入れることによって、体内に入る可能性がある。幼児の重金属曝露経路として重要であるものは、土壌、ほこり、遊具の塗膜などがある。

そこで本章では、第3章で開発した拭き取り法を用いて、幼児の身の回りに存在し、幼児が触れる可能性の高い、様々なものに含まれている金属を定量的に把握する。幼児が屋外で遊ぶ場合、土壌や遊具に触れる機会が多く、遊んだ後の手指には土壌、遊具の塗膜由来の重金属が付着していると考えられる。屋内で過ごした場合でも、壁や床などの様々な表面に触れることがあり、ほこり由来などの重金属が手指に付着する可能性がある。このように幼児の身の回りに存在する重金属が、接触により手指に付着する可能性があることから、幼児の手指に重金属が付着しているかを確認する必要がある。幼児が屋内で過ごした場合、屋外で遊んだ後の手指を拭き取り、普段の生活の中でどのくらい手指に重金属が付着しているのかを把握し、接触による重金属曝露の危険性の有無について検討する。

第3章で開発した拭き取り法では、塗装面を対象に実験を行ったが、ほこりなどの非塗装面でも同様に調査可能であることから、本章では、塗装面の他に幼児の触れる可能性が高い、ほこりが付着している非塗装面などの拭き取り調査も行う。

幼児が有害金属の摂取を避けるためには、まず幼児の手指に付着した金属の起源を特定することが重要である。

また、手を洗うことにより、手指に付着した土壌や塗料のかけらなどが洗い流されれば、結果として手指からの有害金属の摂取量も少なくなると考えられる。しかし、手指に付着している土壌などは微小であるため、洗った手指に微小粒子が残っている可能性がある。よって、手を洗わない場合と洗った場合の、手指に付着した金属量の変化を調査し、有害金属摂取リスク低減という観点から、手を洗った場合の効果についても明らかにする。

### 4.2 調査内容

幼児の身近に存在する金属が接触によって手指に移行する量を把握するため、2009年10月京都市内にあるT幼稚園にご協力をいただき、遊具、屋内の拭き取り調査を行った。幼児が直接接触する、遊具などの塗装面の他に、机、イス、床、窓などの非塗装面も拭き取り、拭き取り材に移行した金属の測定を行った。

また、幼児が園庭などの屋外で遊ぶ場合、砂や土壌に触れる機会が多いことから、園庭の砂、土壌を採取した。土壌は、第2章の子供の行動観察でご協力いただいたK保育園、T幼稚園の2ヶ所の園庭から採取した。

幼児の手指の拭き取りは、K保育園、T幼稚園で調査を行った。T保育園では、2009年

10月に調査を行い、登園時、屋外で遊んだ後、屋内で過ごした後の幼児の手指を拭き取り、普段の生活環境での幼児の手指に付着している金属量を測定した。K保育園では、2006年3月、2007年11月に拭き取り調査を行った。2006年3月の調査では、幼児が30分遊んだ後の手指を拭き取り、2007年11月の調査では、30分幼児が遊んだ後、手を洗う前と手を洗った後の2つのグループに分け、それぞれ手指を拭き取った。

#### 4.3 測定方法

遊具の塗装面、ほこりなどに含まれている金属量は、スミアろ紙を用いた拭き取り方法により、遊具の塗装面などを拭き取り、拭き取り材に移行した元素量を測定した。

幼児の手指に付着している金属量は、幼児の手指を、精製水のみで湿らせてあるコットンパッド（DAISAN製）で拭き取り、その拭き取り材に移行した金属量から求めた。

拭き取り材中の各種元素量を測定する方法は、第3章の抽出方法と同様、抽出操作の手軽さや安全性を考慮し、濃硝酸などを用いた全量分析法ではなく、土壤汚染対策法での土壤中重金属量の測定方法を参考にして、1N塩酸による抽出方法を採用した。1N塩酸抽出法は、人体へ吸収され得る重金属量を近似的に測定する方法<sup>4.1)</sup>であり、手指に付着した重金属の内、人体に吸収されやすい量をおおよそ推定可能である。手指に付着した重金属が手をなめることで体内に入る可能性があることから、1N塩酸が妥当であると考えた。

測定条件は、第3章で決定したものであるが、振とう時間は、第3章では環境省告示第19号の2時間<sup>4.2)</sup>としていたが、振とう時間の違いによる重金属抽出量の差は見られなかったため、本章以降は20分とした。

以下の手順で、遊具の塗装面、ほこりなどに含まれている金属、子供の手指に付着している金属を採取し、測定した。

- 1) 遊具の塗装面、ほこりなどの非塗装面などをスミアろ紙で拭き取り、拭き取り材をPP製容器に入れ、保存する。屋内で過ごしていた子供、屋外で遊んだ後の子供の両手の指、手のひらを精製水コットンパッドで拭き取り、拭き取り材をPP製容器に入れ、保存する。精製水コットンは、1人の子供の両手の指、手のひらを拭き取るのに1枚使用した。
- 2) 拭き取ったスミアろ紙、精製水コットンが入ったPP製容器に、有害金属測定用塩酸(和光純薬工業(株)製)を希釈して作成した1N塩酸15mlずつ加え、25℃の恒温槽で、200回/分で20分間振とうする。
- 3) 振とう終了後、抽出液を0.45μmアセテートフィルターでろ過し、ろ液を試料液とする。
- 4) 各試料液に内標準物質としてInを100ppbとなるように加え、ICP-MSで内標準法により測定する。
- 5) 抽出液の各元素濃度に抽出液量である15mlを掛けて抽出液中元素量を求める。

測定元素は、Na、Al、K、Ca、Cr、Mn、Fe、Zn、Co、Ni、Cd、Pb の 12 元素とした。

#### 4.4 拭き取り調査の結果

T 幼稚園の屋外、屋内の拭き取り調査の結果を示す。図 4-1 に屋外の拭き取り面から拭き取り材に移行した Pb の量で  $0.1 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以上検出されたものを示す。図 4-1 で「タイル」以外は遊具である。これらは、幼児が触れる可能性が高いところを拭き取ったものであるから、幼児が触れることで手指に移行する可能性がある。

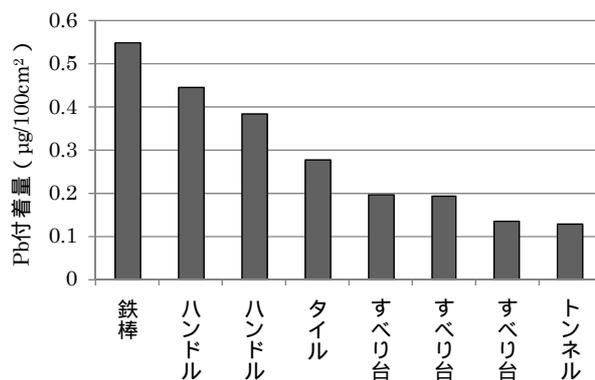


図 4-1 屋外の拭き取り結果 (Pb)

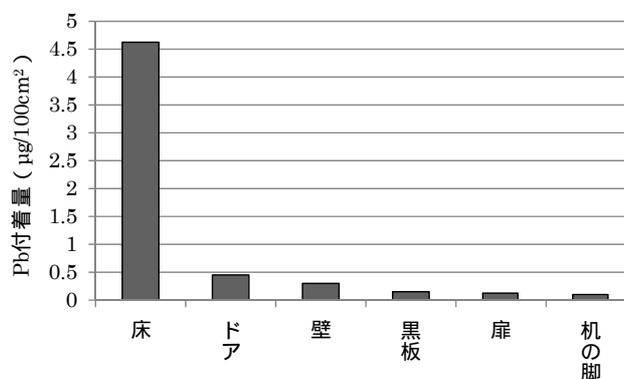


図 4-2 屋内の拭き取り結果 (Pb)

図 4-2 に屋内で  $0.1 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以上 Pb が検出された拭き取り面の結果を示す。屋外だけでなく屋内でも幼児が触れる可能性が高いところに Pb が付着していることがわかる。最大で床から  $4.5 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  検出された。部屋の端の床面から Pb が検出されたことからほこりに Pb が含まれていたのではないかと考えられる。Pb の他に重金属が多く検出された拭き取り面を表 4-1 に示す。「-」は検出限界以下を示す。イスの拭き取り面には Pb はあまり付着していなかったが Ni が多く付着していた。

このように幼児が触れる可能性が高いところには金属が多く付着している面もあり、接触によって手指に移行する可能性がある。

表 4-1 金属が多く検出された拭き取り面（単位： $\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ ）

	屋内			屋外		
	イス (座るところ)	イス(脚)	窓枠	柵	トンネル	遊具
Na	4.48	1.07	5.32	1.57	1.31	3.69
Mg	-	-	0.50	-	1.47	0.82
Al	0.26	-	0.14	0.99	7.50	3.06
K	6.45	1.20	3.23	1.28	4.27	5.31
Ca	3.99	-	5.75	1.27	46.13	22.26
Mn	0.07	-	-	5.75	0.63	0.19
Fe	27.75	1.86	0.17	40.14	6.48	2.87
Co	0.068	0.002	-	0.033	0.009	0.003
Ni	14.99	2.62	0.05	0.33	-	-
Zn	0.13	0.26	0.51	0.11	0.56	0.37
Pb	0.01	0.01	0.02	0.03	0.13	0.08

#### 4.5 幼児の手指に付着した金属

##### 4.5.1 調査内容

幼児の手指に付着している金属を定量的に把握するため、K 保育園、T 幼稚園の幼児の手指を拭き取り調査を行った。

遊んだ後の幼児の手指に付着している金属量を把握するため、2006 年 3 月に K 保育園の 0 歳児クラス 6 人、1 歳児クラス 10 人、2 歳児クラス 12 人、3 歳児クラス 17 人、4 歳児クラス 18 人、5 歳児クラス 6 人の計 69 人が 30 分間保育園の園庭で遊んだ後、幼児の両手のひら、指を拭き取った。

園庭などの屋外や屋内など、幼児が過ごす場所によって手指の金属付着量は異なると考えられる。そこで幼児の手指に付着した金属量の変化を調べるため、T 幼稚園では、2009 年 10 月には T 幼稚園の 3～5 歳児クラスの幼児を対象に、登園時、園庭で遊んだ後、帰宅前の幼児の手指を拭き取った。拭き取り調査人数を表 4-2 に示す。

登園時の拭き取り調査は、家であるいは登園中に手指に金属が付着する可能性があることから登園時の幼児の手指も拭き取った。

表 4-2 幼児の拭き取り人数 (T 幼稚園)

	登園時	遊んだ後	帰る前
3 歳児	18	22	18
4 歳児	16	16	16
5 歳児	20	24	20

#### 4.5.2 遊んだ後の手指に付着した金属

遊んだ後の手指に付着した Pb 量の結果を図 4-3 に示す。横軸の 0、0、・・・は 0 歳児クラスの 1 人目、2 人目、・・・というように、手指を拭き取った幼児のクラスの年齢と番号を示している。図 4-3 より遊んだ後の幼児の手指には、年齢によらず Pb が付着していることがわかる。

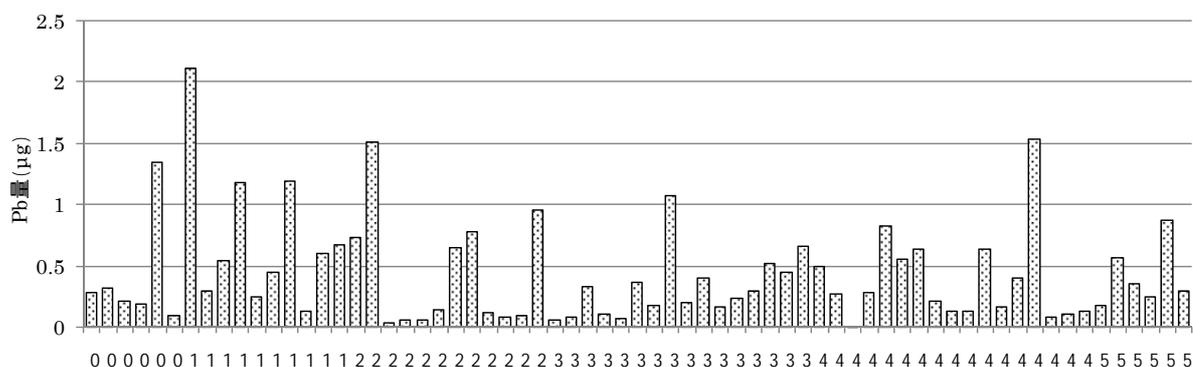


図 4-3 幼児の手指に付着した Pb 量

年齢別に金属付着量の平均値を求めたのが図 4-4 である。年齢別には、Al、Fe、Mn、Ni で 0 歳児と 5 歳児に金属付着量が多く見られた。手のひらの大きさから見ると、0 歳児、1 歳児は手のひらが小さいにも関わらず、多くの金属が付着している。これは、0 歳児、1 歳児は砂や土壌を直接接触して遊ぶが多いため、砂や土壌に接触している時間が他の年齢の幼児よりも長いことが考えられる。このように必ずしも年齢が高く手の大きな幼児の方が金属付着量も多いとは限らないことがわかる。

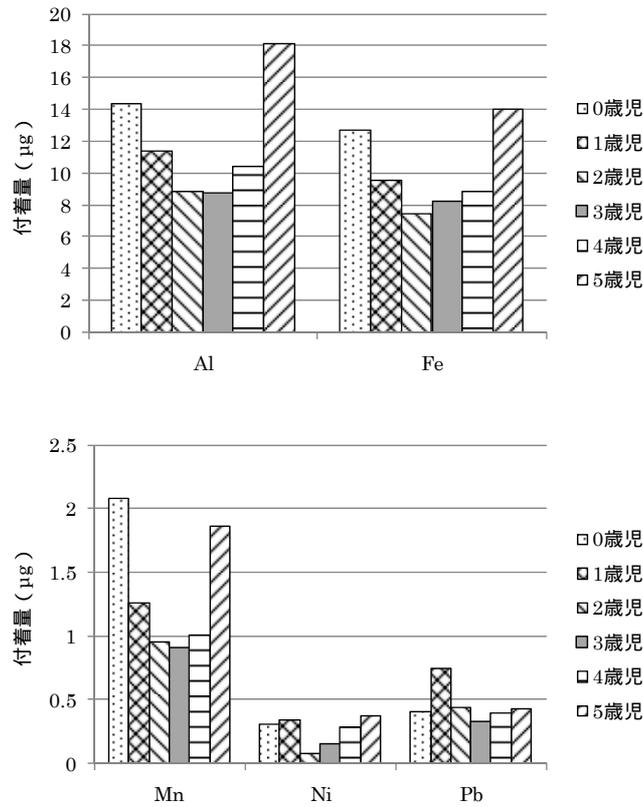


図 4-4 年齢別の金属付着量（平均）

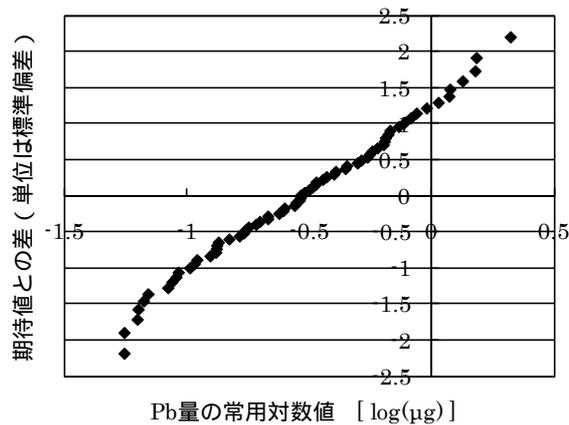


図 4-5 子供の手指に付着した Pb 量（正規分布プロット）  
（縦軸の単位は正規分布での 1 標準偏差）

幼児の手指に付着した Pb 量の分布を図 4-5 に示す。図 4-5 は正規分布プロットで、横軸は Pb 付着量(μg)の常用対数値、縦軸は標準偏差を 1 単位とした時の期待値との差を表して

いる。図 4-5 では Pb 付着量対数値がほぼ直線に乗っていることから、Pb 付着量がおおよそ対数正規分布で表されることがわかる。図 4-5 に示す正規分布プロットデータの線形近似式は、

$$y = 2.32x + 1.24$$

で表される (y は標準偏差を 1 単位とした時の期待値との差、x は Pb 付着量(μg)の常用対数値を表す)。これより Pb 付着量(μg)の常用対数値は、y=0 として平均値が -0.53、近似式の直線の傾きの逆数として、標準偏差が 0.43 の正規分布となる。またこの近似式より求めた、Pb 付着量対数値と Pb 付着量の 50 パーセンタイル値、95 パーセンタイル値、99 パーセンタイル値を表 4-3 に示す。

遊んだ後の幼児の手指には 95 パーセンタイル値で 1.45 μg が付着していた。

表 4-3 遊んだ後の幼児の手指に付着した Pb 量

	Pb 量の 対数値	Pb 量 (μg)
50 パーセンタイル	-0.53	0.29
95 パーセンタイル	0.16	1.45
99 パーセンタイル	0.45	2.82

#### 4.5.3 屋内、屋外で過ごした場合の金属付着量の違い

T 幼稚園の拭き取り調査で、屋外だけでなく屋内でも金属が検出されたが、その量は屋内外や場所によって異なった。幼児の手指に付着した金属も屋内や屋外で過ごした場合で異なると考えられる。よって、登園時、遊んだ後、帰る前の幼児の手指を拭き取り、屋外、屋内で過ごした場合の金属付着量を調査した。

3~5 歳児の手指を登園時、遊んだ後、帰る前に拭き取り、それぞれ拭き取り材に移行した金属量を測定した。帰る前は屋内で過ごしており、屋外では遊んでいない。金属付着量の平均値の結果を図 4-6 に示す。

Co、Cd は検出限界以下、あるいはほとんど付着していない幼児がほとんどであった。Na、K、Ca は登園前から手指に付着しており、屋内外別でもあまり変化はなかった。これは、Na、K、Ca は幼児の身の回りに多く存在し、どの状況においても手指に付着しやすい金属であるためと考えられる。Mg、Al、Fe、Mn、Pb は遊んだ後の手指に最も多く付着していることがわかる。Ni は帰る前の手指に多く付着していた。4.4 の拭き取り結果より、イスなどから多くの Ni が検出された。これは幼児が座るイスであり、屋内で過ごす場合はイスに触れる機会が多いことから、幼児の手指に多くの Ni が付着した可能性がある。よって、幼児の身近に重金属が存在すれば、それに触れることで手指に移行する可能性が高い。

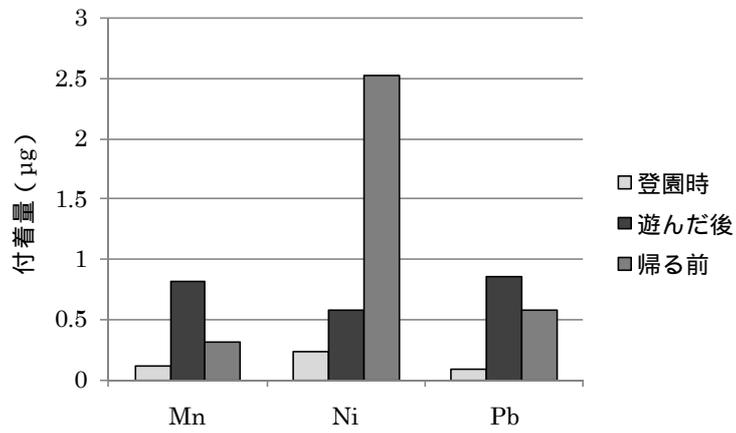
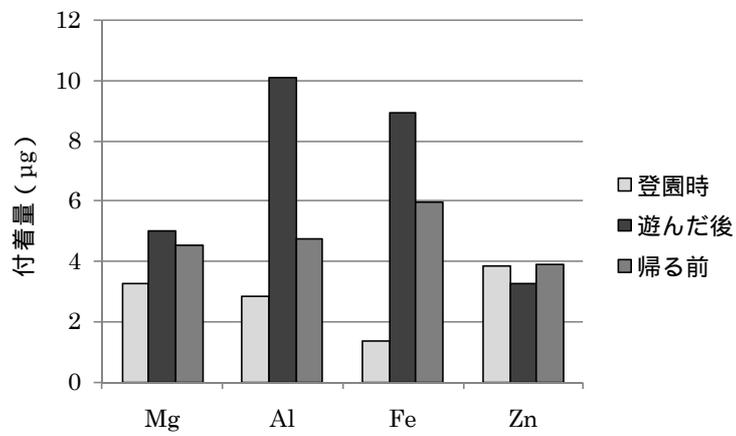
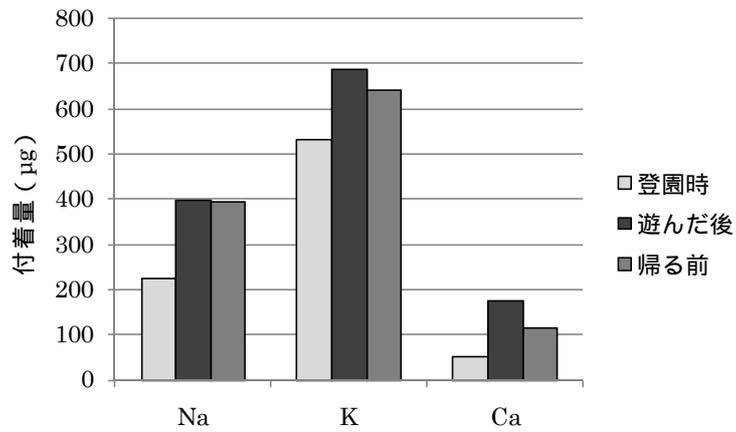


図 4-6 幼児の手指に付着した金属量 (屋内外)

## 4.6 幼児の手指に付着した土壌量推定のための検討

### 4.6.1 検討内容および測定方法

屋外で土壌や砂などに触れて遊んだ場合、手指には多くの土壌が付着するため、手指をなめることにより手指に付着した土壌中の金属が摂取されると考えられる。接触による土壌摂取量を推定するためには、まず手指に付着した土壌量を把握する必要がある。手指に付着した重金属量から土壌付着量を推定できるかどうか検討した。

幼児の手指はコットンを用いて拭き取り、拭き取り材中の金属量を測定したことから、土壌も同じように、既知の量の土壌を含ませた拭き取り材を、1N 塩酸抽出法で抽出する。本研究では既知の量の土壌を含ませた拭き取り材を、1N 塩酸抽出法で抽出し、いくつかの元素の抽出量と土壌量との関係を求め、直線性の良い関係を示すことができれば、それらの元素量から、手指を拭き取った拭き取り材中土壌量を求めることができると考えた。

手に付着した土壌の9割以上が粒径100 $\mu\text{m}$ 以下である研究報告から<sup>4.1)</sup>、本研究でも100 $\mu\text{m}$ 以下の土壌を用いて、土壌量と各元素量との関係を求めることにした。幼児が園庭で遊ぶ場合、直接触れる可能性が高い表層土を採取した。K 保育園の園庭の3ヶ所から表層数cmの土壌を採取し、採取した土壌を1つに集め混ぜ合わせた。ここでは200mg以下の土壌を用いて、土壌量と各元素量との関係を求めた。土壌汚染対策法では、有害物質について、汚染土壌の直接曝露に係る土壌含有量基準を、人の1日当たりの土壌摂取量を用いて算定しており、子供200mg/day、大人100mg/dayと設定されている<sup>4.3)</sup>。接触による土壌摂取量は200mg以下であると考え、この値を用いた。

土壌量と1N 塩酸抽出による各元素量との関係は、以下のようにして求めた。

- 1) 混合した土壌を網目が100 $\mu\text{m}$ のふるいにかかけ、粒径100 $\mu\text{m}$ 以上の粒子を排除した後105 $^{\circ}\text{C}$ で24時間以上乾燥させる。
- 2) 乾燥させた後、10mg、20mg、50mg、100mg、200mgの土壌をはかり取り、それぞれを幼児の手指の拭き取りに用いる精製水コットン1枚ずつに含ませ、30mlのPP容器に保存する。
- 3) 3.3の定量方法と同様の方法で試料液を作成し、ICP-MSにより測定する。
- 4) 測定した金属量と土壌量との関係を求め、直線性の良い関係を示すことを確認する。
- 5) 直線性を示した金属の抽出量と土壌量の線形近似式を求める。
- 6) 求めた線形近似式を用いて、幼児の手指に付着した金属量から土壌付着量を求める。

測定元素は、幼児の手指に付着した重金属と同様にNa、Al、K、Ca、Cr、Mn、Fe、Zn、Co、Ni、Cd、Pbの12元素とした。

### 4.6.2 土壌量推定のための最適な元素の決定

土壌量と各元素抽出量の相関係数、回帰直線の傾きを表4-4に示す。ほとんどの元素で、土壌量と各元素抽出量の相関係数は0.99以上であった。しかし、Na、K、Znは土壌量との相関係数がそれぞれ0.83、0.89、0.97であった。図4-7に、土壌量と元素抽出量が直線

性の良い関係を示す例として Al を、図 4-8 にあまり良い直線性を示さない例として Na を示す。K も Na と同じような傾向を示した。図 4-8 より、土壌量に対する Na、K 含有量の値が飽和しているように見えることから、この原因としては、これらの元素に対する測定器の定量可能なダイナミックレンジが小さかったことが主たる原因ではないかと考えられる。また、表 4-4 より土壌量と Pb 抽出量に直線性の良い関係が見られたが、第 3 章の園庭の遊具の塗装面の拭き取り結果から塗膜に Pb が含まれており、Pb は遊具の塗料などに起因する手指への付着なども考えられることから、手指に付着した土壌量の推定に用いる元素としては適当ではないと考えられる。これらのことから、本研究の場合、土壌量の推定に用いる元素としては Na、K、Zn、Pb は不向きであるとして、抽出量と土壌量との間に十分な直線性が見られた Al、Ca、Cr、Mn、Fe、Co、Cd によって、幼児の手指を拭き取った拭き取り材に付着している土壌量が定量可能であると判断した。相関係数が 0.99 以上で土壌量と金属濃度の直線性の良い元素を用いれば土壌量を推定できると考えられるが、土の平均的な組成として Bowen<sup>4.4)</sup>による土の元素組成が用いられており、土の元素組成より、Al が多く含まれていることから、本研究では、測定した元素から求める土壌量の安定性を考慮して、Al の抽出量を用いて、拭き取り材中の土壌量を推定することにした。

表 4-4 各元素の抽出元素濃度と土壌量の相関

元素	土壌量と抽出元素濃度との	
	相関係数	回帰直線の傾き
Na	0.83	$4.5 \times 10^{-2}$
Al	1.0	$4.1 \times 10^{-1}$
K	0.89	$4.5 \times 10^{-2}$
Ca	1.0	$1.6 \times 10$
Cr	0.99	$3.3 \times 10^{-3}$
Mn	1.0	$1.0 \times 10^{-1}$
Fe	1.0	$5.7 \times 10^{-1}$
Co	1.0	$1.3 \times 10^{-3}$
Ni	1.0	$3.7 \times 10^{-3}$
Zn	0.97	$1.6 \times 10^{-2}$
Cd	1.0	$5.9 \times 10^{-5}$
Pb	1.0	$1.3 \times 10^{-2}$

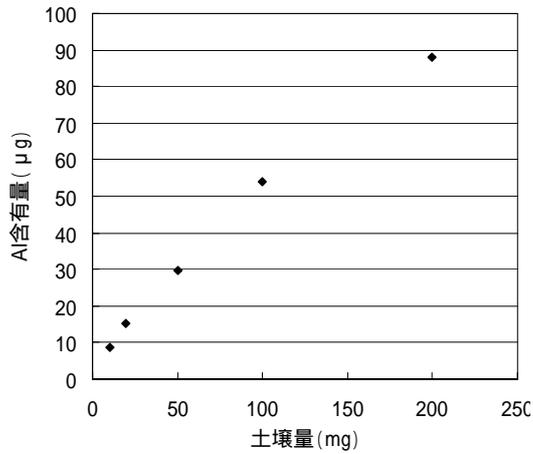


図 4-7 土壤に含まれている Al 量

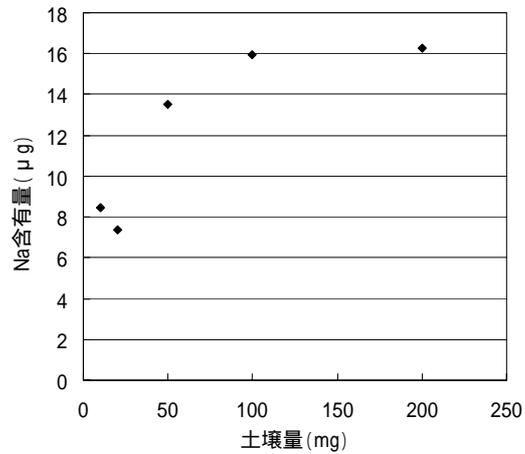


図 4-8 土壤に含まれている Na 量

#### 4.6.3 手指に付着した土壌量の推定

4.5 で測定した K 保育園の幼児の手指に付着した Al 量から土壌付着量を推定する。Al から求めた土壌付着量を図 4-9 に示す。

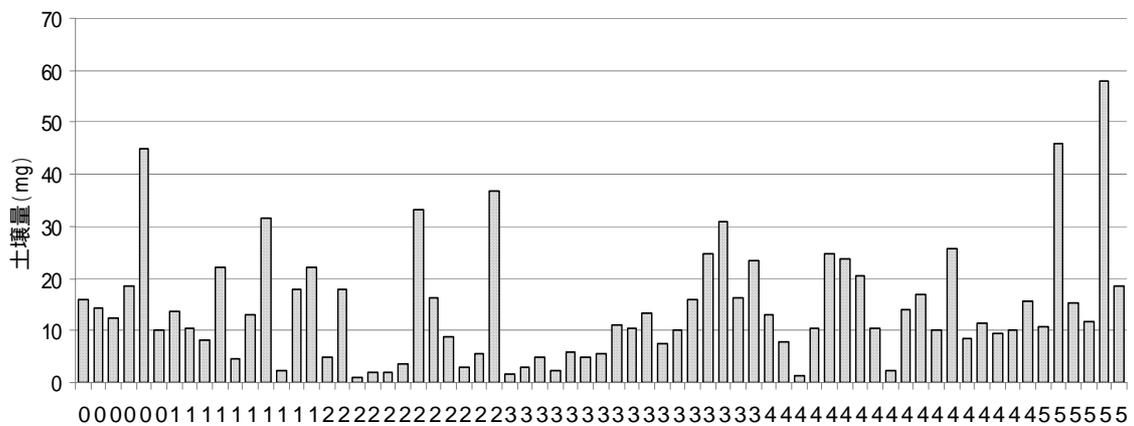


図 4-9 遊んだ後の幼児の手指に付着した土壌量

図 4-9 より、遊んだ後の幼児の手指には土壌が多く付着していると考えられる。土壌付着量の平均値、中央値、95 パーセンタイル値を表 4-5 に示す。幼児の手指には 95 パーセンタイル値で 35.5mg の土壌が付着していると推定される。

表 4-5 幼児の手指に付着した土壌量

	平均値	中央値	95 パーセン タイル値	最大値	最小値
土壌量 (mg)	14.28	11.40	35.49	58.08	0.98

#### 4.7 手洗いによる接触経由の有害物質摂取リスク低減の効果

##### 4.7.1 調査内容

手洗いによる接触経由の有害物質摂取リスク低減の効果を明らかにするため、2007年11月にK保育園に協力していただき、幼児の手指の拭き取り調査を行った。

3歳児クラス24人、4歳児クラス23人、5歳児クラス22人の計69人の幼児が、30分間保育園の園庭で遊んだ後、2つのグループ(手を洗う前、手を洗った後)に分かれてもらい、手を洗う前(3歳児クラス11人、4歳児クラス12人、5歳児クラス11人)、手を洗った後(3歳児クラス13人、4歳児クラス11人、5歳児クラス11人)の保育園児の両手のひら、指を拭き取り、手を洗う前と手を洗った後の手指に付着している金属量について調査を行った。

##### 4.7.2 測定結果

手を洗う前、手を洗った後に幼児の手指に付着していたPbの結果を図4-10、図4-11に示す。手を洗う前の幼児の手指にはPbが付着しており、最大で7.9 $\mu$ gであった。手を洗った後に拭き取った幼児の手指にはあまりPbが付着しておらず、約半数が検出限界以下あるいは検出されなかった。

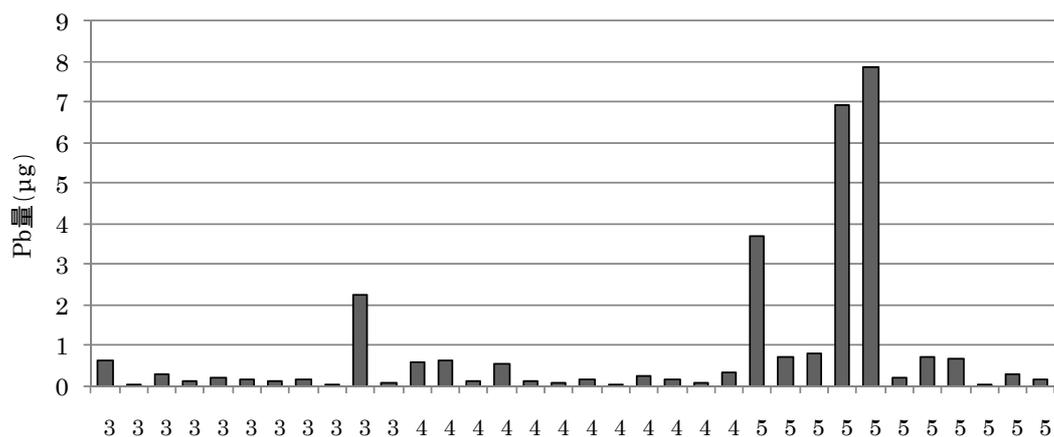


図 4-10 手を洗う前の幼児の手指に付着していた Pb 量

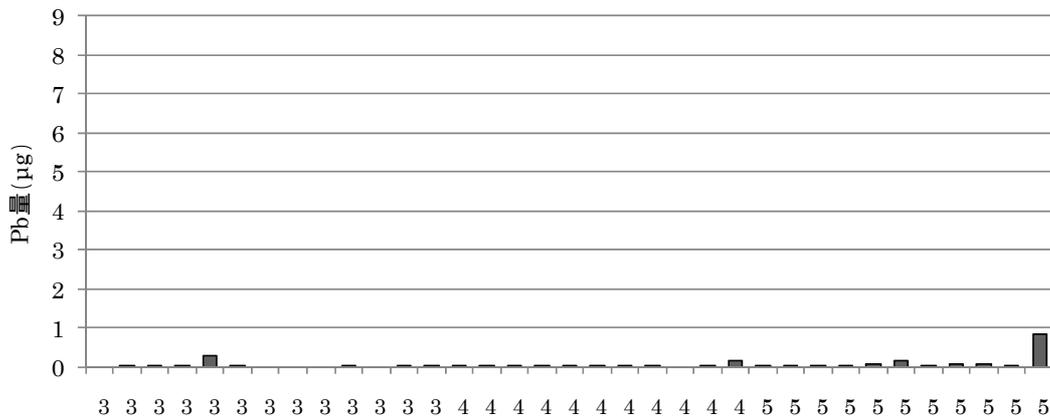


図 4-11 手を洗った後に手指に付着していた Pb 量

幼児の手指に付着していた金属の 50 パーセンタイル値、95 パーセンタイル値を求めると表 4-6 のようになった。表 4-6 の「 - 」は、ほとんどが検出されていない、あるいは検出限界以下であったことを示す。Cr、Cd は、手を洗う前でも、ほとんどが検出されていない、あるいは検出限界以下であり、検出していてもごく微量であった。表 4-6 より、手を洗う前の保育園児の手指には金属が多く付着しているが、手を洗った後の幼児の手指に付着している金属は少ない。

そこで、手を洗うことで、手指に付着している元素がどれだけ洗い流されるのかを求める。

$$\text{洗浄率(\%)} = \{(\text{手を洗う前}) - (\text{手を洗った後})\} / (\text{手を洗う前}) \times 100$$

とすると、洗浄率はほとんどの元素において 50 パーセンタイル値で 80% 以上、95 パーセンタイル値で 85% 以上となった。Na、Co は 50 パーセンタイル値で 74.2% 以上、60.1% 以上となったが、洗浄率を求める際、手を洗った後の値は検出限界値を用いたため、実際にはこれらの値よりはるかに大きい。Ni は 95 パーセンタイル値で 67.3% であったが、これは手を洗う前に付着している量がもともと少なかったため、洗浄率が他の元素と比較して小さくなったと考えられる。

以上より、手指に金属が付着していても、手を洗うことで、ほとんどが手指には残らず、除去されることがわかった。手を洗うことは、重金属の経口摂取のリスクの低減に大きな効果がある。

表 4-6 幼児の手指に付着した金属量と手洗いによる洗浄率

元素	手を洗う前 ( $\mu\text{g}$ )		手を洗った後 ( $\mu\text{g}$ )		洗浄率 ( % )	
	50 $^{\circ}$ -セタイル	95 $^{\circ}$ -セタイル	50 $^{\circ}$ -セタイル	95 $^{\circ}$ -セタイル	50 $^{\circ}$ -セタイル	95 $^{\circ}$ -セタイル
Na	$1.5 \times 10^2$	$4.7 \times 10^2$	-	-	>74.2	>91.7
Al	6.4	$3.2 \times 10$	1.1	4.6	82.8	85.6
K	$3.5 \times 10^2$	$8.7 \times 10^2$	-	-	>91.7	>96.7
Ca	$1.3 \times 10^2$	$1.1 \times 10^3$	$1.4 \times 10$	$1.3 \times 10^2$	89.2	88.2
Mn	$4.6 \times 10^{-1}$	5.6	$4.2 \times 10^{-2}$	$3.2 \times 10^{-1}$	90.9	94.3
Fe	3.9	$5.0 \times 10$	$2.3 \times 10^{-1}$	3.5	94.1	93.0
Co	$8.0 \times 10^{-3}$	$6.1 \times 10^{-2}$	-	-	>60.1	>94.7
Ni	$1.3 \times 10^{-1}$	$5.2 \times 10^{-1}$	$1.8 \times 10^{-2}$	$1.7 \times 10^{-1}$	86.2	67.3
Zn	-	$3.0 \times 10$	-	-		>96.8
Pb	$2.8 \times 10^{-1}$	3.6	$1.5 \times 10^{-2}$	$3.5 \times 10^{-1}$	94.6	90.3

#### 4.8 鉛同位体比、元素比から見た、幼児の手指に付着した重金属の起源推定

##### 4.8.1 測定内容

幼児は遊んでいるときに遊具や土壌、砂など様々なものに触れ、それらに付着、あるいは含有している元素が手指に移行する。接触による有害金属摂取のリスクを低減するためには、有害金属の起源を明らかにすることが重要である。鉛の起源を明らかにする方法の1つとして、鉛同位体比が用いられている。

鉛同位体比を求めることで幼児の手指に付着している鉛の起源を推定する。幼児が屋外で遊ぶ場合、幼児が直接接触する可能性が高い、園庭の土壌、砂場の砂、遊具の塗膜に着目して、これらの鉛同位体比、幼児の手指に付着している鉛の同位体比を求めた。また、K保育園の遊具の塗装面を拭き取った結果、最大で約  $0.9 \mu\text{g}/100 \text{ cm}^2$  の鉛が拭き取り材に移行した。塗料は古くなるとはがれ落ちやすくなるため、遊具が設置されている付近の土壌に塗料の破片が落ちている可能性も考えられる。よって、この最大濃度を示した遊具が設置されている付近の土壌も採取した。

幼児の手指に付着している元素比、土壌、砂、遊具の塗膜中の元素比を比較することで手指に付着している元素の起源が推定できる可能性がある。よって元素比を求めることで幼児の手指に付着した元素の推定を行った。

##### 4.8.2 測定方法

園庭の土壌、砂は幼児が直接接触する表層土を採取し、4.6と同様にふるいを用いて粒径  $100 \mu\text{m}$  以下の土壌を用いた。4.6の土壌付着量推定では、最大で  $58\text{mg}$  の土壌が手指に付着していたことから、ここでは  $100\text{mg}$  以下の土壌を用いることにした。  $100 \mu\text{m}$  以下の土壌を  $10\text{mg}$ 、 $20\text{mg}$ 、 $50\text{mg}$ 、 $100\text{mg}$  量りとり、それぞれの土壌を幼児の手指の拭き取りに使用し

たコットンパッドに含ませ、拭き取り材中の金属量を測定した。園庭の土壌 15 か所、砂場の砂 3 か所、遊具付近の土壌 3 か所を採取した。遊具の塗膜は、スミヤろ紙を用いて塗装面 100 cm<sup>2</sup>を約 5kg の力で拭き取り、拭き取り材に移行した金属量を求めた。

鉛同位体比は、質量数 207 と 206 の比、質量数 208 と 206 の比を用いた。鉛同位体比を測定するにあたり、標準物質として、SRM981 (National Institute of Standard and Technology, USA) を使用した。SRM981 は鉛同位体比が保証されており、試料の測定値と SRM981 の保証値から計算される補正係数を用いて試料の鉛同位体比測定値を補正した。補正は、比較標準化法<sup>4.5)</sup>を用いて行った。

#### 4.8.3 測定結果

園庭の土壌、砂場の砂、遊具付近の土壌、遊具の塗膜中の鉛の同位体比の結果を図 4-12 に示す。図 4-12 では、50mg、100mg の土壌、砂に含まれている鉛の同位体比の結果を示している。幼児の手指に付着していた鉛の同位体比の結果を図 4-13 に示す。手を洗う前と洗った後では鉛同位体比の分布には、差は見られなかった。

図 4-12、図 4-13 より、遊具の塗膜中の鉛の同位体比の分布と、幼児の手指に付着している鉛の同位体比の分布を比較することで幼児の手指に付着している鉛の起源を推定する。図 4-13 の丸で囲んだところは遊具の塗膜中の鉛の同位体比の分布である。塗膜中の鉛同位体比と手指に付着している鉛の同位体比の分布が等しい幼児らがいることから、この幼児らの手指に付着している鉛は遊具の塗膜由来の可能性が高い。ほとんどの幼児の手指に付着していた鉛が、遊具の塗膜中の鉛ではなく、園庭の土壌、砂場の砂、遊具付近の土壌、あるいは、他の起源の可能性であることが考えられる。

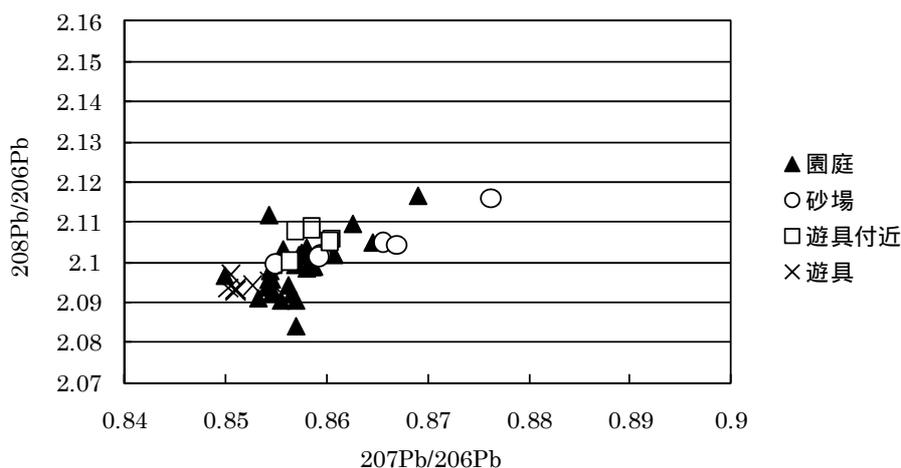


図 4-12 土壌、砂、遊具の塗膜中の鉛の同位体比

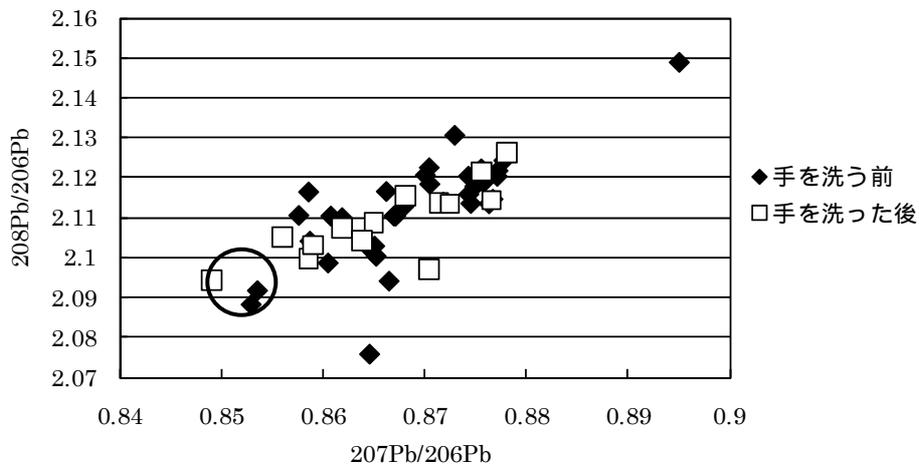


図 4-13 幼児の手指に付着している鉛の同位体比

幼児は遊んでいる間に土壌や砂に触れていることから、土壌の主要成分である Al、Fe、Mn に着目して、手指に付着している金属がどの場所の土壌由来であるかを推定する。園庭の土壌、砂場の砂、遊具付近の土壌 10mg、20mg、50mg、100mg 中に含まれている Al、Mn、Fe の量の関係について、図 4-14、図 4-15、図 4-16 に示す。図 4-14、図 4-15、図 4-16 より、砂場の砂、遊具付近の土壌に含まれている Mn 量と Al 量、Mn 量と Fe 量、Al 量と Fe 量、園庭の土壌に含まれている Mn 量と Al 量にはそれぞれ十分な直線性が見られた。また、園庭の土壌中の Mn 量と Fe 量、Al 量と Fe 量は少しばらついてはいるが、直線性が見られた。図 4-14 を見ると、Mn 量と Al 量の比が園庭、砂場、遊具付近でほぼ等しくなったが、図 4-15、図 4-16 より園庭は砂場と遊具付近とは Mn 量 / Fe 量、Al 量 / Fe 量の値が異なることがわかった。

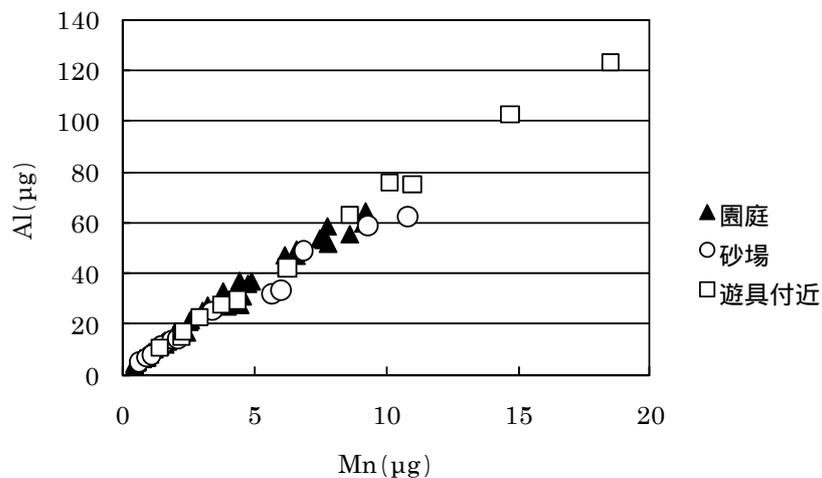


図 4-14 土壌、砂に含まれた Mn、Al 量

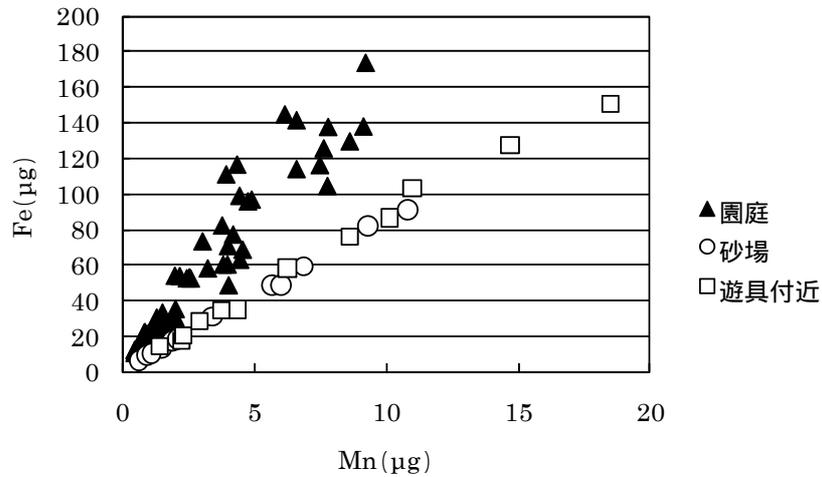


図 4-15 土壌、砂に含まれた Mn、Fe 量

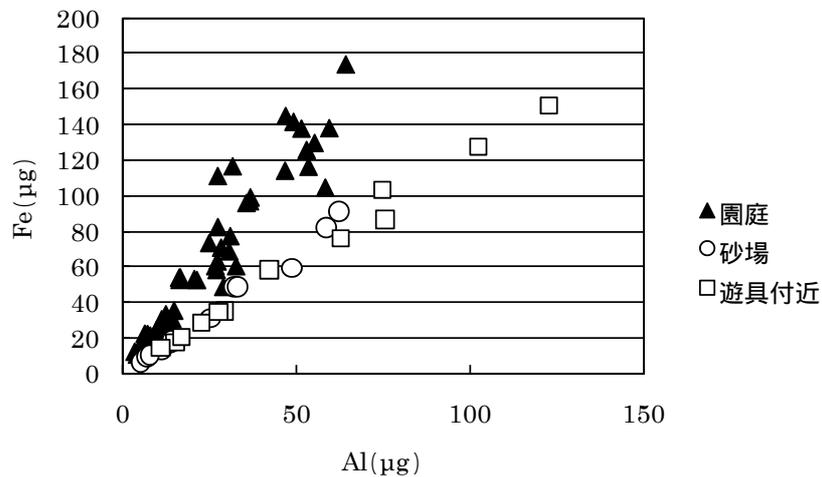


図 4-16 土壌、砂に含まれた Al、Fe 量

これにより、幼児の手指に付着した Mn 量、Fe 量、Al 量から、Mn 量 / Fe 量、Al 量 / Fe 量を求め、土壌、砂の Mn 量 / Fe 量、Al 量 / Fe 量の値を比較することで、幼児の手指に付着している金属の起源を推定できると考えられる。そこで園庭の土壌、砂場の砂、遊具付近の土壌中の Mn 量と Fe 量、Al 量と Fe 量の回帰直線の傾き、幼児の手指に付着した Mn 量と Fe 量、Al 量と Fe 量の回帰直線の傾きを求め、比較した。

手を洗う前、手を洗った後の手指に付着していた Mn 量と Fe 量、Al 量と Fe 量の回帰直線の傾きと相関係数、園庭の土壌、砂場の砂、遊具付近の土壌中の Mn 量と Fe 量、Al 量と Fe 量の回帰直線の傾きと相関係数を表 2 に示す。表 2 より、手を洗う前の手指に付着した Al 量と Fe 量の回帰直線の傾きと土壌、砂に含まれている Al 量と Fe 量の回帰直線の傾きを比較すると、手を洗う前の手指に付着した Al 量と Fe 量の回帰直線の傾きは砂場の砂、遊具付近の土壌とほぼ等しくなった。手を洗う前の Mn 量と Fe 量の回帰直線の傾きは 6.9

となり、傾きが 8.4 となった砂場の砂や遊具付近の土壌と完全に等しいとは言えないが、それに近い値となった。園庭の土壌と手指に付着していた園庭の土壌とは全く異なる値となった。

表 4-7 より Mn 量と Fe 量、Al 量と Fe 量の回帰直線の傾きが砂場の砂や遊具付近の土壌の回帰直線の傾きとほぼ等しい、あるいはそれに近い値となったことから、手を洗う前の手指に付着していた金属の起源は砂場の砂や遊具付近の土壌である可能性が高い。

表 4-7 Mn 量と Fe 量、Al 量と Fe 量の回帰直線の傾き

	Mn 量と Fe 量との		Al 量と Fe 量との	
	相関係数	回帰直線の傾き	相関係数	回帰直線の傾き
手を洗う前	0.98	6.9	0.97	1.3
手を洗った後	0.91	$1.0 \times 10$	0.78	$7.6 \times 10^{-1}$
園庭	0.95	$1.7 \times 10$	0.96	2.5
砂場	1.0	8.4	0.99	1.4
遊具付近	1.0	8.4	1.0	1.2

#### 4.9 幼児の手指に付着した土壌量

##### 4.9.1 測定内容

幼児は屋外で土壌や砂に触れて遊ぶ場合が多い。大人よりも土壌や砂に接触する機会が多く、手指に多くの土壌が付着し、その手をなめることで手指に付着した土壌が体内に入る可能性がある。有害物質で汚染された土壌で遊んだ場合、手指に付着した土壌が hand-to-mouth 行動により体内に入ることで、有害物質を摂取する危険性がある。接触による有害物質摂取リスク低減のためには、手指に付着している土壌量を把握する必要がある。

4.6 より、土壌量と抽出元素量との間に直線性の良い関係を示す元素により幼児の手指に付着している土壌量を推定できることがわかった。その結果、Al、Ca、Cr、Mn、Fe、Co、Cd によって、幼児の手指を拭き取った拭き取り材に付着している土壌量が定量可能であると判断した。しかし、手指に付着している Cr、Co、Cd の量が検出限界以下、あるいは微量である幼児が多かったためこれらの元素から土壌付着量を求めると誤差が大きくなる可能性が考えられ、土壌量を求めるには不適と考えた。4.7 より、土壌中や幼児の手指に付着している Al、Fe、Mn 量から手指に付着している土壌がどの場所の土壌由来であるかを推定できたことから、これらの土壌に含まれている Al、Fe、Mn と手指に付着している Al、Fe、Mn から、幼児の手指に付着している土壌量を推定する。

##### 4.9.2 測定方法

幼児の手指に付着している土壌は 4.7 より砂場の砂や遊具付近の土壌である可能性があ

ることから、砂や遊具付近の土壤に含まれている Al、Fe、Mn 量と幼児の Al、Fe、Mn 付着量を比較することで、幼児の土壤付着量を求める。

幼児の手指はコットンを用いて拭き取り、拭き取り材中の金属量を測定したことから、土壤も同じように、既知の量の土壤を含ませた拭き取り材を、1N 塩酸抽出法で抽出する。土壤中の Al、Fe、Mn 量と土壤量との関係を求め、直線性の良い関係を示すことができれば、これらの元素量から、手指を拭き取った拭き取り材中土壤量を求めることができると考えられる。

4.7 で用いた砂場の砂 3 試料、遊具付近の土壤 3 試料から、以下のように土壤中金属量と土壤量との関係を求めた。

- 1) 採取した砂、土壤をそれぞれ網目が 100  $\mu\text{m}$  のふるいにかけて、粒径 100  $\mu\text{m}$  以上の粒子を排除した後、土壤を 105  $^{\circ}\text{C}$  で 24 時間以上乾燥させる。
- 2) 乾燥させた後、10mg、20mg、50mg、100mg の土壤をはかり取り、それぞれを幼児の手指の拭き取りに用いる精製水コットン 1 枚ずつに含ませ、30ml の PP 容器に保存する。
- 3) 3.3 の定量方法と同様の方法で試料液を作成し、ICP-MS により測定する。
- 4) 測定した金属量と土壤量との関係を求め、直線性の良い関係を示すことを確認する。
- 5) 直線性を示した金属の抽出量と土壤量の線形近似式を求める。
- 6) 求めた線形近似式を用いて、幼児の手指に付着した金属量から土壤付着量を求める。

#### 4.9.3 土壤中金属量と土壤量の関係性

10mg、20mg、50mg、100mg の土壤中の抽出元素量と土壤量の相関係数の結果を、表 4-8 に示す。土壤量と Al、Fe、Mn 抽出量との相関係数は、すべての試料で 0.99 以上であり、直線性のよい関係を示した。表 4-8 には参考として土壤量と Cd、Pb 抽出量の相関係数を示す。Cd、Pb は相関係数があまり小さくなく、直線性を示さない試料もあった。よって、Al、Fe、Mn を用いて、幼児の土壤付着量を推定する。

表 4-8 土壤量と各元素の抽出元素量との相関係数

採取地点	Al	Fe	Mn	Cd	Pb
遊具付近	0.99	1.0	1.0	0.99	1.0
遊具付近	1.0	1.0	1.0	0.59	1.0
遊具付近	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
砂場	1.0	1.0	1.0	0.96	0.98
砂場	1.0	0.99	0.99	0.98	1.0
砂場	1.0	1.0	1.0	0.97	0.87

Al、Fe、Mn について土壤量と抽出元素量との回帰直線の傾きを表 4-9 に示す。場所によって土壤中の金属含有量がばらついていることがわかったが、幼児が砂場の砂、遊具付近

の土壌を平均的に触れているとして、土壌量と元素抽出量との回帰直線の傾きの平均値を用いて、土壌付着量を求めることにした。

表 4-9 土壌量と各元素の抽出元素量との回帰直線の傾き

採取地点	Al	Fe	Mn
遊具付近	1.294	1.558	0.189
遊具付近	1.090	1.342	0.154
遊具付近	0.783	1.073	0.114
砂場	0.497	0.604	0.069
砂場	0.602	0.850	0.097
砂場	0.636	0.923	0.110
平均値	0.817	1.058	0.122
中央値	0.710	0.998	0.112

以上をまとめると

$$y = 0.817x \quad (y : \text{Al 抽出量}, x : \text{土壌量})$$

$$y = 1.058x \quad (y : \text{Fe 抽出量}, x : \text{土壌量})$$

$$y = 0.122x \quad (y : \text{Mn 抽出量}, x : \text{土壌量})$$

となり、これらを用いて幼児の手指に付着している Al、Fe、Mn 量から、手指に付着している土壌量を求める。

#### 4.9.4 土壌付着量

4.9.3 で得られた Al、Fe、Mn の土壌量と抽出元素量との関係式を用いて、幼児の手指に付着している土壌量を求めた。表 4-10 に土壌付着量を示す。

表 4-10 各元素付着量から求めた  
幼児の手指に付着した土壌量

	Al	Fe	Mn
	から求めた土壌量 (mg)		
平均値	11.46	8.81	9.24
中央値	8.07	3.85	3.46
最大値	53.28	51.81	68.36
最小値	0.41	0.14	0.38
95 <sup>th</sup> -セタイル値	27.38	25.61	29.16

表 4-10 より Al、Fe、Mn から求めた土壌量は、95 パーセンタイル値を見ると差は見られなかったことから、これらの元素によって土壌量が推定できることがわかった。Al、Fe、Mn から求めた土壌量を平均すると、遊んだ後の手指に付着した土壌量は 95 パーセンタイル値で約 28mg であった。4.6 で、3 か所の園庭の土壌を混合させた試料を用いて、Al から求めた土壌量は 95 パーセンタイル値で約 35mg であり、今回の調査で求めた土壌量と比較してあまり変わらない。よって、幼児の手指に付着している土壌量を求める場合、手指に付着している土壌がどの場所の土壌であるか特定できない場合でも、数か所の土壌を採取することによっておおよその土壌付着量が推定できる。

手指に多く金属が付着している場合、土壌中の金属、幼児の手指に付着している金属から手指に付着している土壌量を求めることができ、幼児が屋外で遊んだ後の幼児の手指には、95 パーセンタイル値で約 30mg の土壌が付着していることがわかった。

#### 4.10 おわりに

本章では、幼児の身の回りに存在する金属、幼児の手指に付着した金属に着目して、接触による重金属曝露に関する様々な検討を行った。第 3 章で提案した拭き取り法を用いて、幼児が触れる可能性の高い様々な表面から接触により移行する可能性がある金属量から身近な金属の存在の有無を明らかにし、手指に付着している金属の起源の推定、土壌付着量の推定、手洗いによる有害金属摂取リスク低減効果について検討を行った。

以下に本章で得られた知見・結論を示す。

- 1) 第 3 章で提案した拭き取り法により、屋外だけでなく、屋内の拭き取り調査を行った結果、塗装面だけでなく、ほこりなどの非塗装面にも Pb などの重金属が検出され、幼児の身近なところに重金属が存在することがわかった。
- 2) 遊んだ後の幼児の手指を精製水のみで湿らせたコットンで拭き取った結果、幼児の手指には年齢に関係なく、多くの重金属が付着しており、95 パーセンタイル値で 1.45  $\mu\text{g}$  の Pb が付着していた。
- 3) 幼児の状況別に手指を拭き取った結果、ほとんどの元素で、屋内で過ごすよりも屋外で遊んだ後の手指に多く付着していたが、元素によっては屋内で過ごす方が多く付着しているものもみられた。よって、幼児の身の回りに存在する金属の有無により、手指に付着する金属量に差がみられることがわかった。
- 4) 有害金属摂取リスクの低減という観点から、手洗いによる金属付着量の変化を確かめた。その結果、遊んだ後の手指には多くの金属が付着していたが、手を洗った後の手指には付着していた金属量は少なかった。このことから手指に多く金属が付着していても手を洗うことにより除去されることがわかった。
- 5) 鉛同位体比を用いて、手指に付着していた鉛の起源の特定を試みた結果、塗料由来の鉛が付着している幼児もいたが、ほとんどが土壌、砂由来であった。元素比から幼児の手指に付着した土壌がどの場所の土壌であるかを推定した結果、今回の調査では幼児の手指に

は砂場の砂や遊具付近の土壌が付着していると推定できた。

6) 遊んだ後の幼児の手指に付着している土壌量を、土壌中金属、手指に付着している金属から推定できるか検討した。その結果、Al、Fe、Mn から土壌付着量が求めることができ、遊んだ後の幼児の手指には、95 パーセンタイル値で約 30mg の土壌が付着していることがわかった。

#### 第 4 章 参考文献

- 4.1) 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, 42, 29-38. (2005)
- 4.2) 環境省: 平成 15 年環境省告示第 19 号  
< <http://www.env.go.jp/water/dojo/law/kokuji/04.pdf> > ( accessed Jan 2006 )
- 4.3) 環境省: 土壌汚染対策法に係る技術的事項についての考え方の取りまとめ案
- 4.4) Bowen H.J.M., Environmental Chemistry of the Elements, Academic Press, London, pp333. (1979)
- 4.5) 加田平賢史, 森脇洋, 山本攻, 鶴保謙四郎, 新矢将尚: ICP-MS を用いた鉛同位体比分析における補正法の検討, 生活衛生, 49(5), 288 - 296. (2005)

## 5. アジア諸国の都市間における幼児の重金属接触曝露調査

### 5.1 はじめに

第4章で、幼児の身の回りには鉛をはじめとする多くの重金属が存在することがわかった。また、幼児の手指には、重金属が付着しており、特に遊んだ後の手指には多くの重金属が付着していた。hand-to-mouth 行動により、手指に付着した重金属が体内に入る可能性がある。幼児の行動は、人種・民族、年齢、経済状況、社会的因子に影響することが知られており<sup>5.1)</sup>、幼児の有害物質への曝露は都市によって異なるのではないかと考えられる。

そこで本章では、アジア諸国の生活環境の異なる都市間において、幼児の接触による重金属への曝露状況を明らかにし、接触による重金属曝露のリスク評価を行う。さらにリスク低減のための有効な方法について提案をする。調査は、クアラルンプール(マレーシア)、クアラルンプール(マレーシア)、バンコク(タイ)、マニラ(フィリピン)の4都市で、各都市それぞれ1つあるいは2つの幼稚園を対象に行った。

### 5.2 調査内容

生活環境の異なる都市間において、幼児の手指に付着した金属量を把握するため、クアラルンプール、クアラルンプール、バンコク、マニラの4都市の幼稚園に協力していただき、3~6歳児を対象に手指の拭き取り調査を行った。クアラルンプール、クアラルンプールではそれぞれ2ヶ所の幼稚園で、バンコク、マニラでは1ヶ所の幼稚園で調査を行った。幼児は屋内で過ごしている時や屋外で遊んでいる時にhand-to-mouth 行動をしていることから、屋内で過ごした場合、屋外で遊んだ後の幼児の手指を拭き取り、手指に付着している金属量を測定した。

また、幼児の触れる可能性の高い表面に付着している、あるいはそれ自体に含まれている金属を定量的に把握するため、それぞれの幼稚園の遊具をはじめ、屋内外の様々な塗装面や表面を拭き取り、拭き取り材に移行した金属量を測定した。屋外で遊ぶ場合、多くの幼児は土壌や砂を触るので、土壌や砂を採取し、土壌や砂に含まれている金属量を測定した。

### 5.3 測定方法

第4章と同様に、遊具の塗装面やほこりはスミヤク紙を用いて、幼児の手指の拭き取りは精製水コットンを用いて拭き取り、採取した。抽出方法も第4章と同様に、振とう時間を20分とした。

### 5.4 結果と考察

#### 5.4.1 クアラルンプール

##### (1) 土壌、塗料、ほこりに含まれた金属

クアラルンプールの2ヶ所の幼稚園で、ほこりなどの拭き取り調査を行った。2ヶ所の幼

稚園をそれぞれクアラルンプール、クアラルンプールとする。クアラルンプールでは屋内、屋外で拭き取り調査を行い、幼児が触れる可能性の高い、様々な表面を拭き取り、拭き取り材に移行した金属の測定を行った。また、園庭などの土壌を採取した。クアラルンプールでは、地面はコンクリートで覆われており、周囲に採取できる土壌はなく、園庭も非常に離れた場所にあったため、拭き取り調査は屋内のみとなった。

クアラルンプールで、Pbが $1\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ 以上検出された拭き取り面の結果を図5-1、図5-2に示す。

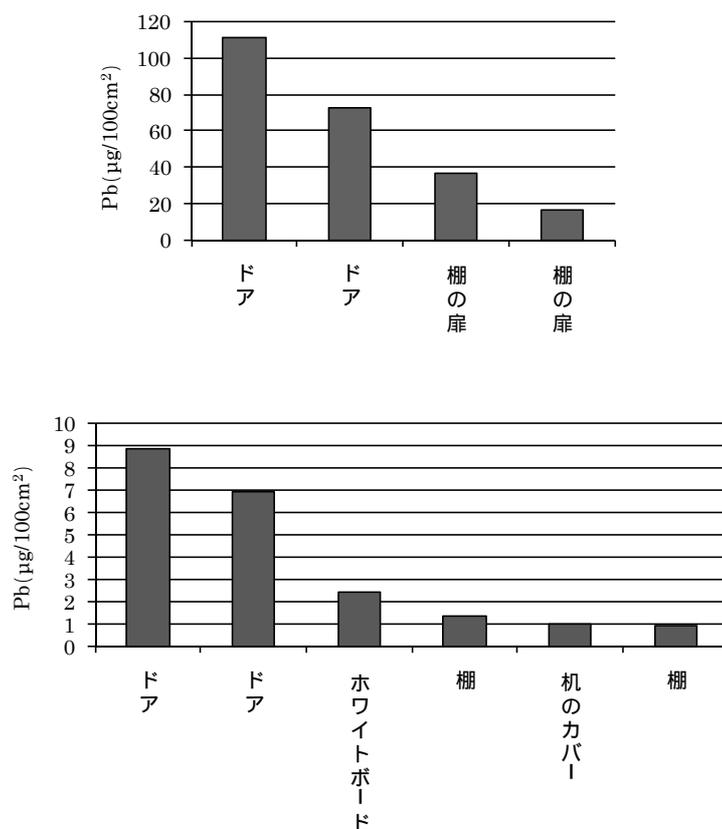


図5-1 屋内の拭き取り面から検出されたPb量（クアラルンプール）

クアラルンプールの屋内では、ドアから最もPbが多く検出され、その値は $111\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ であった。屋外で最も多くのPbが測定されたのは校門の $38.9\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ であった。校門やドアは幼児が最も出入りする場所にあるので、ほとんどの幼児が1日に一度は触ると言ってもよい。校門やドアに触れることでこれらのPbが手指に付着する可能性が高い。また、幼児だけではなく大人も校門やドアに触れるので大人の手指にも付着する可能性が考えられる。屋内では棚からも多くのPbが測定され、屋外では遊具、特にすべり台から多くのPbが検出された。

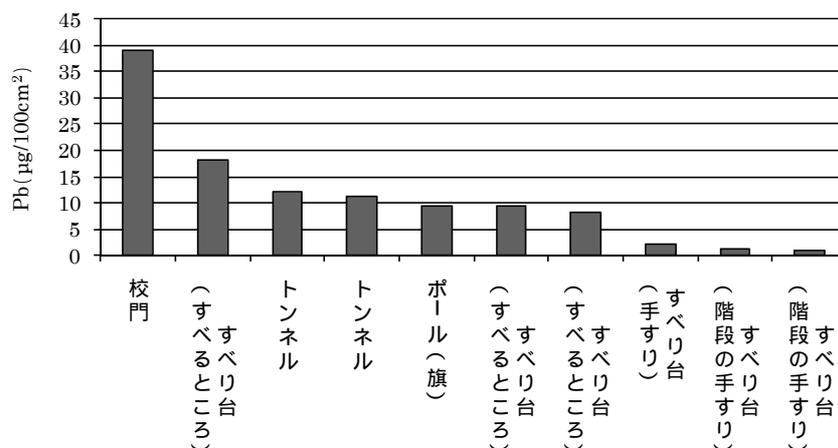


図 5-2 屋外で Pb が多く検出された拭き取り面 (クアラルンプール )

表 5-1 拭き取り材に移行した元素の総量に対する Al、Fe、Pb の割合

塗装面	測定した元素の総量に対する各元素の割合 (%)			非塗装面	測定した元素の総量に対する各元素の割合 (%)		
	Al	Fe	Pb		Al	Fe	Pb
ドア	2.1	2.5	62.2	机のカバー	2.1	5.1	1.4
ドア	3.2	4.5	52.8	机のボード	4.2	6.9	2.2
棚の扉	7.0	7.5	13.8	机の下	7.6	7.9	0.8
棚の扉	5.3	6.7	9.8	バスケット	3.0	3.9	0.8
ドア	2.7	3.7	9.5	棚の取っ手	4.7	5.4	0.3
ドア	2.6	2.9	10.4	ドアノブ	3.1	10.9	3.7
棚	4.2	6.7	1.3	絵具のふた	4.9	4.4	0.2
棚	3.9	6.1	1.2	机	6.5	6.6	0.7
壁	7.9	6.5	0.8	机	2.8	2.9	0.4
靴箱	6.3	6.0	0.2	机	5.3	4.9	0.6
平均	5.0	4.9	10.3	平均	3.4	5.1	0.5
標準偏差	4.6	2.0	19.1	標準偏差	1.7	3.0	0.7

屋内で Pb が多く検出した拭き取り面は、ドアや棚、棚の扉など塗料が塗られているものが多かったことから、これらの拭き取り材に移行した Pb は、塗料由来の可能性が高いが、ほこりの影響も考えられる。そこで、塗装面、非塗装面の拭き取り結果から、測定した元

素 (Na、K、Ca、Mg、Al、Mn、Fe、Co、Ni、Zn、Cd、Pb) の総量に対する Pb の割合を比較し、塗装面と非塗装面で Pb の割合が異なれば、塗装面から検出された Pb は塗料由来であると考えられることから、塗装面、非塗装面から検出された Pb の割合を求めた。拭き取り材に移行した元素の総量に対する Al、Fe、Pb の割合を表 5-1 に示す。表 5-1 には塗装面、非塗装面それぞれ Pb が多く検出された上位 10 か所の拭き取り面の割合を示した。平均、標準偏差は塗装面、非塗装面それぞれ測定全体から求めた。表 5-1 より Al、Fe の割合は、塗装面と非塗装面であまり変わらないが、Pb の割合は大きく異なった。表 5-1 の結果より測定した元素の総量に対する元素の割合で Pb が 9%以上検出されたドア、柵の扉などは塗料由来の可能性が高い。

土壌中の Pb 量の結果を図 5-3 に示す。最大で 1.9  $\mu\text{g}/50\text{mg}$  の Pb が園庭の土壌に含まれていた。校門やすべり台の下の土壌 50mg 中に 1~2  $\mu\text{g}$  の Pb が含まれており、測定したクアラルンプールの土壌の中では比較的多かった。

図 5-2 の校門やすべり台の拭き取り結果から、校門やすべり台の塗装面から多くの Pb が検出されたが、これらは塗料由来の他に土壌由来の Pb の可能性も考えられる。そこで、屋内と同様に、測定した元素の総量に対する Al、Fe、Pb の割合を求めた。土壌が各塗装面に付着していれば、拭き取り材には土壌由来の金属が移行するので、拭き取り面と土壌の各元素の割合はほぼ等しくなり、土壌と塗装面の各元素の割合が異なれば、塗装面から検出された Pb は塗料由来であると考えられる。結果を表 5-2 に示す。校門やすべり台の塗装面からの Pb の割合が校門やすべり台付近の土壌中の Pb の割合よりもはるかに大きいことから、校門やすべり台の塗装面から測定された Pb は、塗料由来の可能性が高い。また、これらの塗装面は塗膜がはがれやすくなっていたため、触れると手指に付着しやすく、塗膜の破片が付近の土壌に落ちる可能性がある。

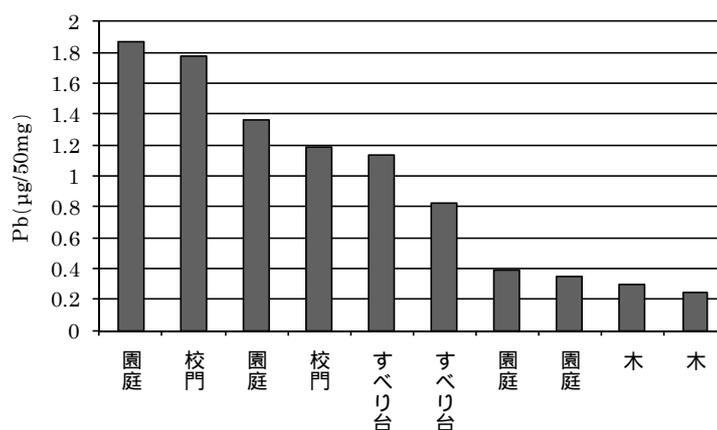


図 5-3 土壌中の Pb 量 (クアラルンプール)

表 5-2 測定した元素の総量に対する Al、Fe、Pb の割合

拭き取り面	測定した元素の総量に対する各元素の割合 (%)			土壌	測定した元素の総量に対する各元素の割合 (%)		
	Al	Fe	Pb		Al	Fe	Pb
校門	2.7	6.9	73.0	校門	21.5	17.1	0.8
すべり台 (滑るところ)	10.1	17.2	46.6	校門	22.8	18.2	0.8
すべり台 (滑るところ)	9.3	26.8	42.8	すべり台 付近	20.7	26.1	0.4
すべり台 (滑るところ)	10.8	25.6	40.7	すべり台 付近	20.1	22.9	0.8
すべり台 (手すり)	5.9	15.7	10.2	園庭	8.4	8.6	0.1
すべり台 (階段の手すり)	5.9	13.0	5.0	園庭	9.0	8.9	0.1
すべり台 (階段の手すり)	7.6	13.6	5.4	園庭	22.6	25.9	0.4
トンネル	13.7	13.7	18.3	園庭	25.2	22.5	0.4
トンネル	11.5	9.8	24.4	木の下	14.8	10.1	0.4
ポール(旗)	1.9	19.5	43.1	木の下	13.7	11.3	0.3
平均	8.0	16.2	30.9	平均	17.9	17.2	0.4
標準偏差	3.8	6.3	22.0	標準偏差	6.0	7.0	0.3

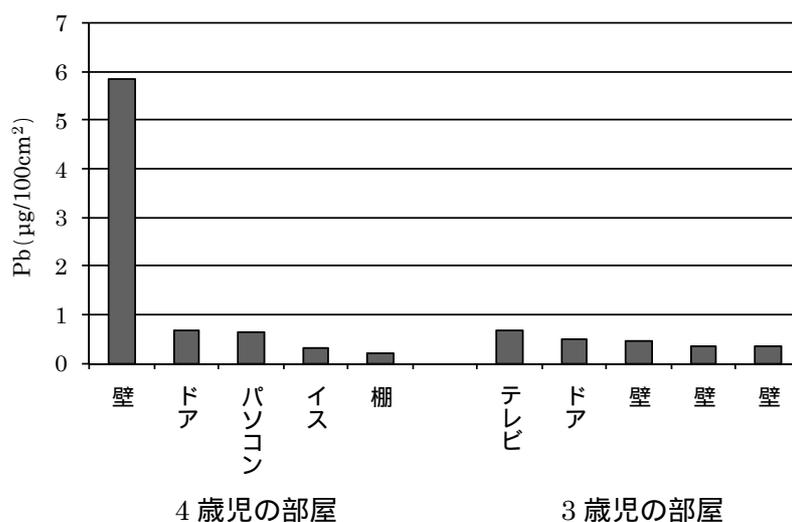


図 5-4 室内で Pb が多く検出された拭き取り面 (クアラルンプール)

クアラルンプール では2ヶ所の部屋の拭き取り調査を行った。Pbが $0.2\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ 以上検出された拭き取り面の結果を図5-4に示す。クアラルンプール では、最大で $5.9\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ のPbが4歳児の部屋の壁から検出された。この壁は幼児が出入りするドアの横の壁であり、幼児が触れる可能性が十分にある。その他は $1\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ 以下であった。

クアラルンプールの拭き取り結果から、屋内ではドアや壁などから、屋外からは校門やすべり台からPbが多く検出された。ドアや壁に塗られている塗膜に多くPbが含まれていると考えられ、幼児が触れることによりPbが手指に移行する可能性が高い。また、校門やすべり台の塗膜から多くPbが検出されたが、これら塗膜の破片が付近の土壤に落ちることで土壤が汚染されると予想される。塗膜の破片は接触により手指に付着し、手指をなめることで幼児の体内に入る可能性がある。

このように幼児の身の回りには様々な元素が存在し、特に幼児にとって注目すべきPbは幼児だけでなく大人も触れる場所にも多く存在していることがわかった。

## (2) 幼児の手指に付着した金属

幼児の手指の拭き取り調査は、2ヶ所の幼稚園で行った。2ヶ所の幼稚園の、手指の拭き取りを行った子供の人数を表5-3に示す。クアラルンプールの2ヶ所の幼稚園では、園庭が小さく、遊具も少なかつたため、屋内で過ごしている時の幼児の手指を拭き取った。拭き取り調査を行う前に幼児は屋外で遊んでいない。

表5-3 幼児の手指の拭き取り人数(クアラルンプール)

クアラルンプール			クアラルンプール		
年齢	性別	人数(人)	年齢	性別	人数(人)
5歳	男	2	3歳	男	8
	女	5		女	7
6歳	男	10	4歳	男	9
	女	9		女	6

結果を表5-4、表5-5に示す。幼児の手指には様々な元素が付着していることがわかる。Crは、全ての幼児で検出限界以下であった。クアラルンプールの2ヶ所の幼稚園で平均値あるいは中央値を比較すると、多くの元素でクアラルンプールの方が、若干大きな値となった。手指の拭き取り調査を行う前に幼児は屋外で遊んでおらず、登園後は屋内で過ごしていたことから、これらの元素は登園前から付着していた、あるいは登園後の屋内で付着したと考えられる。

拭き取り調査で、クアラルンプールから屋内外で多くのPbが検出された。クアラルンプール、の幼児の手指に付着していたPbの平均量あるいは中央値を比較すると、クアラルンプールの方が多かった。このことから、幼児の身の回りに多くの金属が存在して

表 5-4 幼児の手指に付着していた金属  
(クアラルンプール)

	平均値 ( $\mu\text{g}$ )	中央値 ( $\mu\text{g}$ )	最大値 ( $\mu\text{g}$ )	最小値 ( $\mu\text{g}$ )
Mg	13.71	12.69	53.97	2.28
Al	9.41	8.48	20.85	3.69
K	291.08	279.82	683.96	106.81
Ca	342.17	253.67	2220.66	58.91
Mn	0.28	0.28	0.53	0.08
Fe	5.96	5.14	11.68	1.84
Co	0.05	0.02	0.24	0.01
Ni	0.66	0.58	2.30	0.27
Zn	12.70	9.57	42.89	3.64
Cd	-	0.01	0.08	below DL
Pb	1.28	1.06	3.65	0.32

表 5-5 幼児の手指に付着していた金属  
(クアラルンプール)

	平均値 ( $\mu\text{g}$ )	中央値 ( $\mu\text{g}$ )	最大値 ( $\mu\text{g}$ )	最小値 ( $\mu\text{g}$ )
Mg	10.99	7.97	43.97	2.84
Al	8.34	7.26	26.22	2.08
K	278.91	255.47	697.51	41.91
Ca	250.33	159.66	1371.18	31.72
Mn	0.24	0.23	0.71	0.05
Fe	5.34	4.35	22.70	1.42
Co	-	0.03	0.36	below DL
Ni	-	0.19	0.52	below DL
Zn	16.35	6.78	170.48	1.66
Cd	-	0.03	0.12	below DL
Pb	0.90	0.66	4.27	0.22

いれば、幼児の手指に付着する金属も多くなることがわかり、hand-to-mouth 行動により摂取してしまう可能性が高い。しかし、最大値ではクアラルンプールの方が大きく、登園前の環境の違いなどにより、特異的に Pb 付着量が多くなる幼児も存在していると考えら

れる。

#### 5.4.2 クアラトレンガヌ

##### (1) 土壌、塗料、ほこりに含まれた金属

クアラトレンガヌでは、2ヶ所の幼稚園の屋内外で拭き取り調査を行った。それぞれの幼稚園をクアラトレンガヌ、クアラトレンガヌとする。幼児が直接触れる可能性が高い、様々な表面を拭き取り、拭き取り材に移行した金属を測定した。また、園庭の土壌中の金属量を測定した。

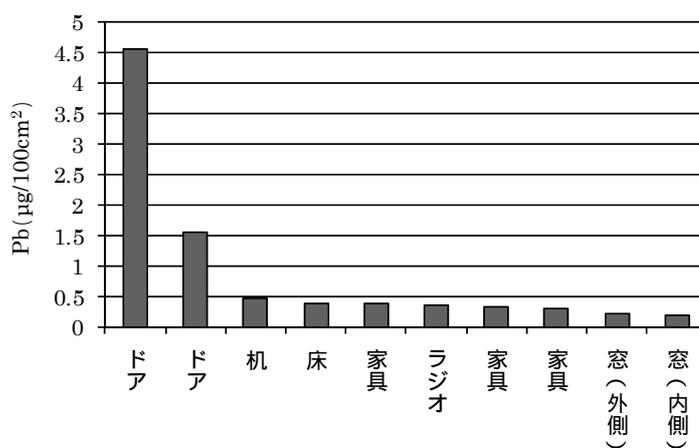


図 5-5 屋内で Pb が多く検出された拭き取り面 (クアラトレンガヌ )

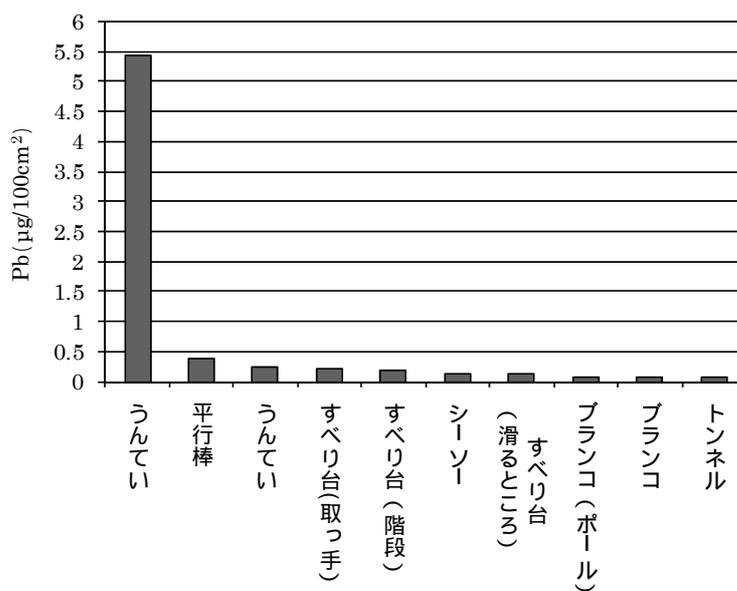


図 5-6 園庭で Pb が多く検出された拭き取り面 (クアラトレンガヌ )

クアラトレンガヌ の屋内からは、クアラルンプールと同様に、ドアに多く Pb が付着しており、最大で  $4.6 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  であった。しかし、ドア以外では  $1 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以下となり、Pb は多く測定されなかった。園庭の遊具は、うんていから  $5.4 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  の Pb が検出されたが、その他の遊具は低い値となった。

クアラトランガヌ の遊具を拭き取った結果、拭き取り材に移行した重金属量は少なく、最も多く Pb が検出した遊具はブランコの  $0.2 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  であった。屋内でもほとんどの元素で拭き取り材に移行した重金属量は少なく、Pb は全ての拭き取り面で  $0.05 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以下であった。しかし、ドアノブから  $6.5 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  の Ni が、棚からは  $1.1 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  の Ni が検出された。

## (2) 幼児の手指に付着した金属

クアラトレンガヌでは、2ヶ所の幼稚園で調査を行った。2ヶ所の幼稚園で、手指の拭き取りを行った子供の人数を表 5-6 に示す。クアラトレンガヌ では屋内で過ごしている時の幼児の手指を拭き取り、クアラトレンガヌ では、15 分間屋外で遊んだ後の幼児の手指を拭き取った。

手指の拭き取り結果を表 5-7、表 5-8 に示す。2ヶ所の幼稚園の平均値、中央値を比較すると、多くの元素でクアラトレンガヌの方が大きくなり、屋内で過ごすよりも屋外で遊んだ後の方が手指に多くの金属が付着していた。しかし、Pb はクアラトレンガヌの方が小さくなった。これは、クアラトレンガヌの屋内の拭き取り調査で検出された Pb 量は最大で  $4.5 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  で、 $0.2 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以上検出された拭き取り面が存在したが、クアラトレンガヌの屋外の拭き取り調査で拭き取り材に移行した Pb 量は全て  $0.2 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以下と小さくなったことから、遊んだ後の手指には、屋内で過ごすよりも Pb は付着しなかったのではないかと考えられる。

このように幼児の身の回りに重金属があまり存在しなければ、幼児の手指に付着する重金属量も少ないことがわかる。

表 5-6 幼児の手指の拭き取り人数 (クアラトレンガヌ)

クアラトレンガヌ

年齢	性別	人数(人)
4 歳	男	-
	女	1
5 歳	男	8
	女	12
6 歳	男	5
	女	6

クアラトレンガヌ

年齢	性別	人数(人)
5 歳	男	3
	女	5
6 歳	男	9
	女	4

表 5-7 幼児の手指に付着していた金属  
(クアラトレンガヌ)

	平均値 ( $\mu\text{g}$ )	中央値 ( $\mu\text{g}$ )	最大値 ( $\mu\text{g}$ )	最小値 ( $\mu\text{g}$ )
Mg	6.17	6.18	12.46	0.95
Al	6.12	5.68	12.84	2.80
K	256.15	230.53	435.28	122.63
Ca	260.49	231.23	582.31	74.88
Mn	0.14	0.13	0.27	0.05
Fe	3.66	3.29	9.53	1.72
Co	-	0.00	0.01	below DL
Ni	-	0.12	0.36	below DL
Zn	4.87	3.55	22.80	1.50
Cd	-	0.03	0.14	below DL
Pb	0.91	0.87	2.33	0.32

表 5-8 幼児の手指に付着していた金属  
(クアラトレンガヌ)

	平均値 ( $\mu\text{g}$ )	中央値 ( $\mu\text{g}$ )	最大値 ( $\mu\text{g}$ )	最小値 ( $\mu\text{g}$ )
Mg	5.85	4.83	12.39	1.60
Al	8.87	8.55	15.28	2.49
K	147.66	139.43	314.58	42.47
Ca	132.28	133.80	259.52	42.67
Mn	0.19	0.19	0.42	0.04
Fe	8.16	7.67	14.29	2.12
Co	-	0.00	0.02	below DL
Ni	0.19	0.19	0.35	0.05
Zn	6.22	4.61	20.65	1.71
Cd	-	0.01	0.03	below DL
Pb	0.85	0.66	1.93	0.18

### 5.4.3 バンコク

#### (1) 土壌、塗料、ほこりに含まれた金属

園庭の拭き取り結果を図 5-7 に示す。園庭の中央に砂場があり、砂場と園庭の外側を柵で囲っている。図 5-7 の「柵」は園庭の外側の柵を、「柵（内側）」は砂場の柵を表している。柵から多くの Pb が検出された。この柵は緑色の塗料が塗られており、塗装面は古く、はがれやすくなっていた。遊具からは  $0.5 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以下となり低い値になった。

柵から多くの Pb が検出されたが、柵に土壌が付着している可能性も考えられる。よって、測定した元素の総量に対する Al、Fe、Pb の割合を求めた。表 5-9 に砂、遊具付近の土壌、柵、遊具の塗装面の結果を示す。

表 5-9 より柵から検出された Pb の割合は砂に含まれた Pb の割合よりもはるかに大きいことから、柵から検出された Pb は塗料由来が考えられる。また、この柵の塗装面は古くはがれやすくなっていたことから、幼児が触れることで塗膜の破片が手指に付着する可能性が高い。

屋内では、机や柵などの家具類、ドアや壁、床、窓枠など、様々な表面を拭き取った。その結果、最大で柵から  $3.9 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  の Pb が検出されたが、ドアや壁などのほとんどの拭き取り面で  $0.1 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以下で、Mn、Co、Ni、Cd などの重金属も  $0.1 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以下となった。

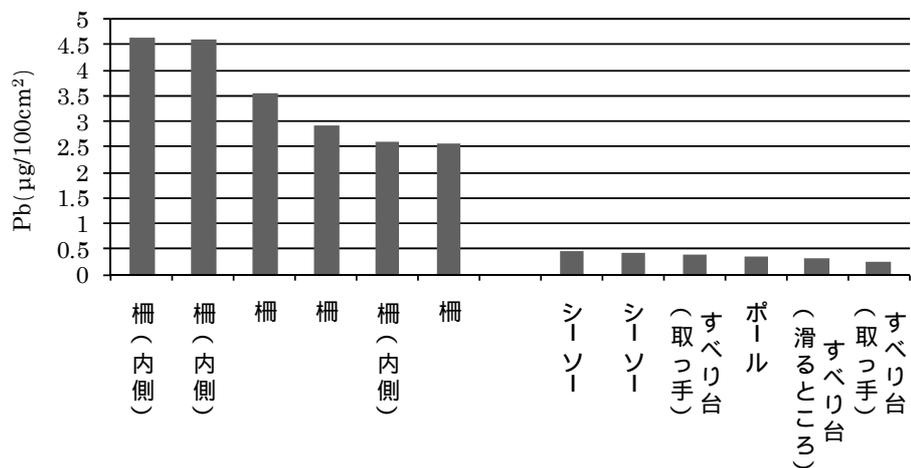


図 5-7 屋外の拭き取り結果 (Pb)

表 5-9 測定した元素の総量に対する Al、Fe、Pb の割合

塗装面	測定した元素の総量に対する各元素の割合 (%)			土壌、砂	測定した元素の総量に対する各元素の割合 (%)		
	Al	Fe	Pb		Al	Fe	Pb
柵 (内側)	8.1	13.8	9.57	砂場	6.1	53.3	0.07
柵 (内側)	7.6	15.2	5.61	砂場	5.7	57.4	0.09
柵 (内側)	7.5	13.7	5.40	砂場	5.3	56.3	0.09
柵	5.6	10.9	6.18	砂場	5.6	53.0	0.10
柵	5.0	12.1	5.02	砂場	6.7	41.8	0.11
柵	6.6	10.7	6.71	砂場	6.2	54.5	0.07
シーソー	1.2	16.4	0.94	シーソー	5.8	34.7	0.15
シーソー	0.3	28.8	1.25	すべり台 (取っ手)	5.9	30.7	0.12
すべり台 (取っ手)	2.3	9.8	2.69	すべり台 (取っ手)	6.7	45.2	0.12
すべり台 (すべるところ)	0.5	10.1	0.69	すべり台 (すべるところ)	6.4	43.3	0.14
ポール	1.1	35.7	0.81	ポール	5.0	49.6	0.09

(2) 幼児の手指に付着した金属

バンコクでは、1ヶ所の幼稚園で調査を行った。拭き取り調査を行った子供の人数を表 5-10 に示す。バンコクでは、屋外で遊んだ後の手指を拭き取った。

表 5-11 より遊んだ後の手指には、様々な金属が付着しているのがわかる。Mg、Al、Mn、Fe が多く付着していることから、手指には土壌や砂が多く付着している可能性が高い。遊んだ後の手指には Pb が付着していたが、園庭では柵の塗装面や砂、土壌から Pb が検出されたことからこれらの Pb が付着していると考えられる。

表 5-10 幼児の手指の拭き取り人数 (バンコク)

年齢	性別	人数(人)	年齢	性別	人数(人)
2 歳	男	2	4 歳	男	10
	女	-		女	10
3 歳	男	10	5 歳	男	23
	女	12		女	6

表 5-11 幼児の手指に付着していた金属  
(バンコク)

	平均値 ( $\mu\text{g}$ )	中央値 ( $\mu\text{g}$ )	最大値 ( $\mu\text{g}$ )	最小値 ( $\mu\text{g}$ )
Mg	45.10	42.57	117.91	10.75
Al	22.58	18.58	104.24	2.53
K	317.46	301.38	843.76	65.88
Ca	171.86	155.33	585.43	9.18
Mn	11.23	6.94	74.95	0.61
Fe	103.10	84.94	422.23	8.01
Co	0.14	0.10	1.02	0.01
Ni	0.64	0.47	3.91	0.12
Zn	20.43	16.76	77.98	6.12
Cd	-	0.02	0.07	below DL
Pb	2.04	1.37	10.60	0.16

#### 5.4.4 マニラ

##### (1) 土壌、塗料、ほこりに含まれた金属

マニラでは、1ヶ所の幼稚園で調査を行った。この幼稚園では、遊び場が3カ所あったので3カ所の遊び場の遊具などを拭き取った。それぞれ園庭 A、園庭 B、園庭 C とする。園庭の配置を図 5-8 に示す。園庭 A は校舎の裏側にあり、園庭 B、C は道路に面して設置されている。

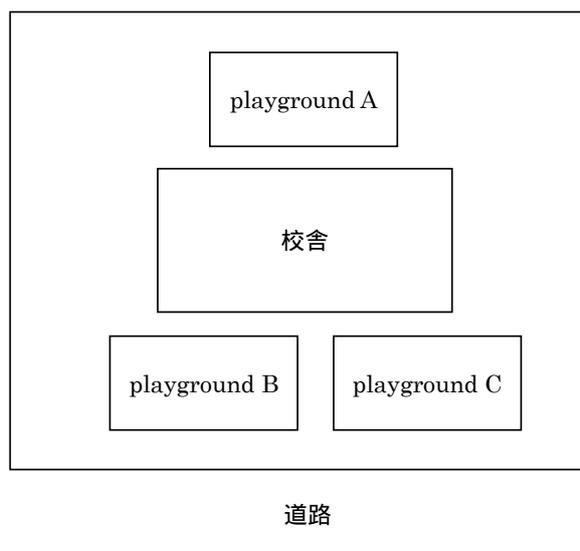


図 5-8 園庭の配置

園庭 A、B、C の遊具などの拭き取り、測定した Pb の結果を図 5-9、図 5-10、図 5-11 に示す。園庭 A、園庭 B では、遊具などから非常に多くの Pb が検出されたが、園庭 C の遊具からは A、B と比較してあまり検出されなかった。図では園庭 A、B では Pb 量が  $1\mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以上、園庭 C では  $0.1\mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以上であった拭き取り箇所の結果を示した。園庭 A の遊具は、拭き取り調査当時、比較的新しく設置されたものであり、塗料も新しく塗られたものであった。

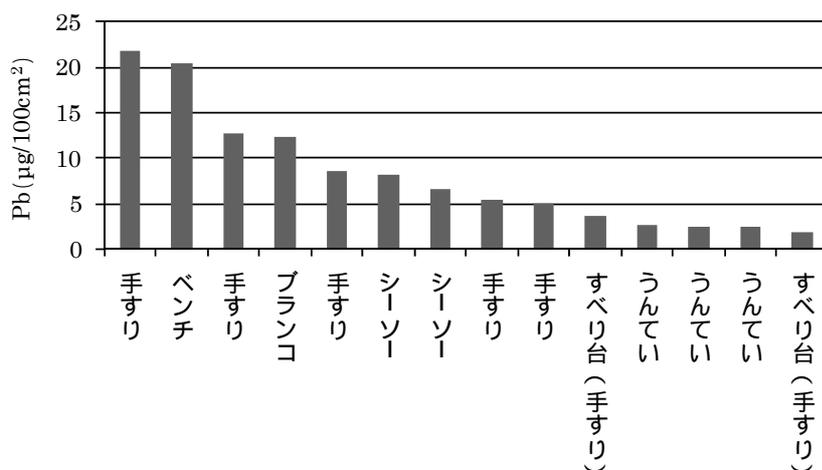


図 5-9 園庭 A の拭き取り結果 (Pb)

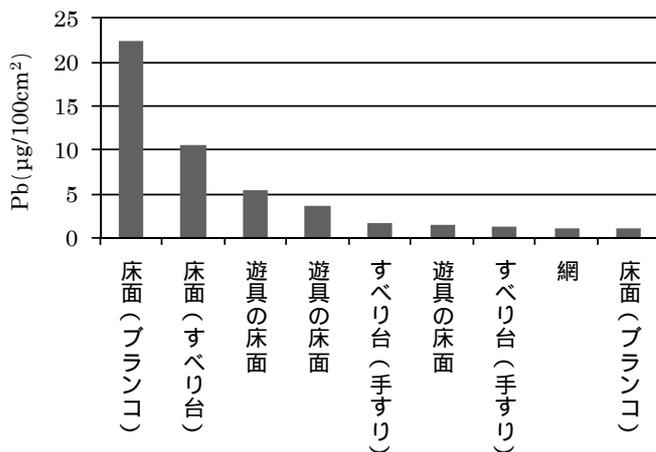


図 5-10 園庭 B の拭き取り結果 (Pb)

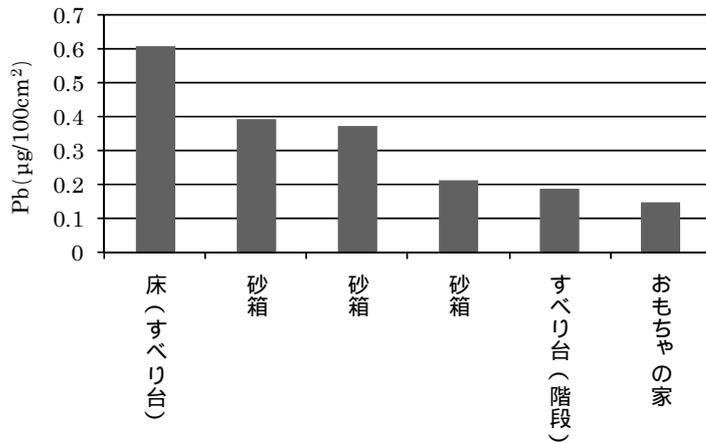
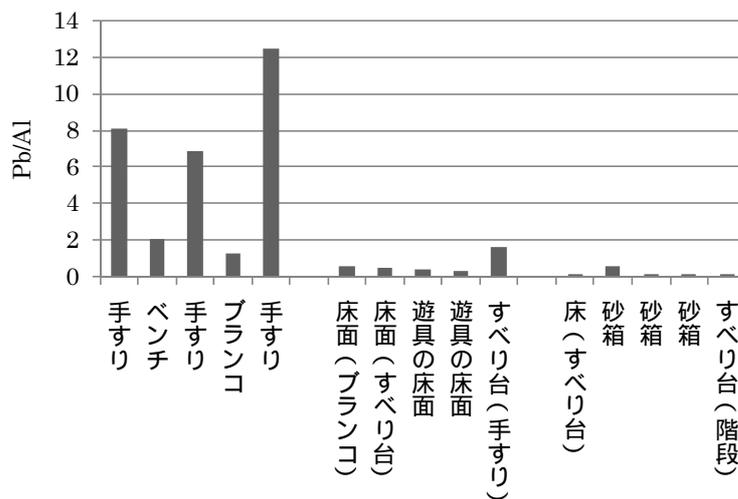


図 5-11 園庭 C の拭き取り結果 (Pb)



園庭 A                      園庭 B                      園庭 C

図 5-12 遊具に付着していた Al 量と Pb 量の比

園庭 B の遊具の拭き取り結果でブランコやすべり台などの床面から多くの Pb が測定された。これらの床面は幼児の靴裏面と接触する機会が多いことから、靴に付着した土壌が床面に落ち、その床面を拭き取った可能性が考えられる。よって床面から検出された Pb は土壌由来である可能性も考えられる。そこで、土壌に含まれている Al に着目して、遊具の拭き取り結果から、Pb が多く検出された遊具から Al 量と Pb 量の比を求めた。結果を図 5-12 に示す。園庭 A、園庭 B の遊具を比較すると、移行した Pb の量は、あまり変わらなかったが、Pb/Al では園庭 B の遊具が小さい値となった。また、園庭 B の遊具と比較すると、床

面の Pb/Al が手すりよりも小さくなった。このことから園庭 B で Pb が多く検出された遊具のうち、床面から検出された Pb は土壌由来のものが多いことがわかる。

園庭 A、B、C で採取した土壌、砂に含まれている金属の平均値の結果を図 5-13 に示す。図 5-13 より園庭によって土壌中の金属量が大きく異なることがわかった。園庭 A の遊具が設置されている地面は土壌ではなく、やわらかいプラスチック素材で覆われており、その周りを土壌で囲んである。園庭 B、C は通路を挟んで設置されており、距離的にも近いが、遊具の拭き取り結果、土壌含有量の結果に差が見られた。

園庭 B の土壌には Pb が多く含まれていたことから、園庭 B の遊具の床面から検出された Pb は土壌由来の可能性が高まった。園庭 A の遊具から多くの Pb が検出されたが園庭 A の土壌に含まれていた Pb 量は園庭 B と比較してかなり小さいこと、園庭 A、園庭 B の土壌に含まれている Al 量があまり変わらないのに対して、園庭 A の遊具から検出された Al 量と Pb 量の比が園庭 B よりはるかに大きいことから、園庭 A の遊具から検出した Pb は、土壌由来ではなく、遊具の塗膜に含まれている Pb である可能性が高い。

園庭別に、遊具の塗装面から検出された Pb 量が異なり、土壌、砂中の Pb 量も大きく差が見られたことから、園庭によって幼児の手指に付着する Pb 量が異なる可能性が高い。

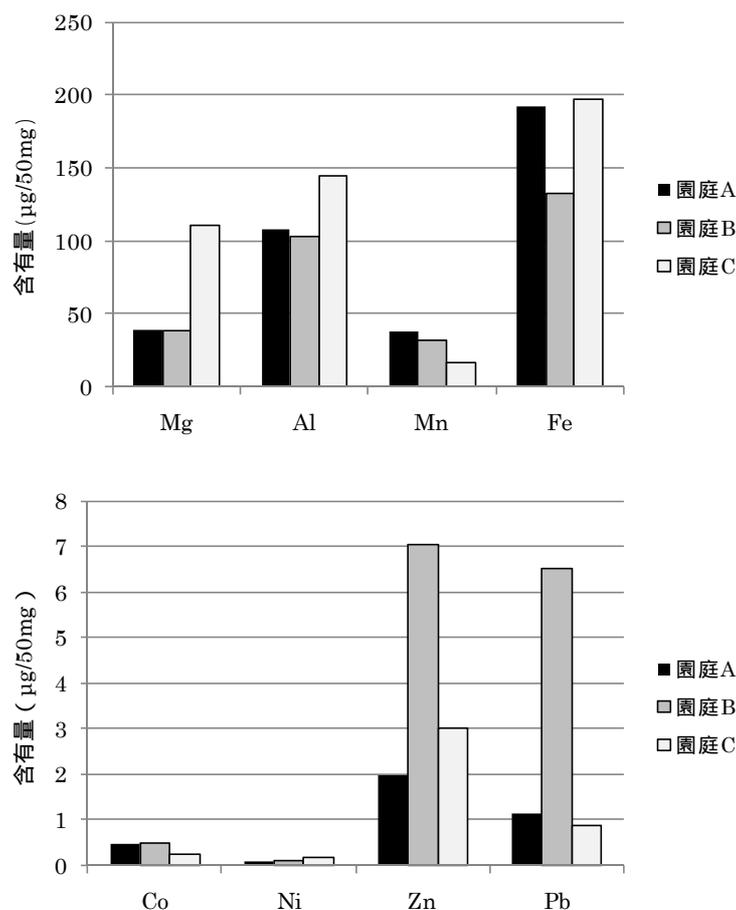


図 5-13 園庭の土壌中金属量 (平均)

屋内の拭き取り面から検出された Pb の主な結果を図 5-14 に示す。部屋 A は園庭 A で遊んだ幼児の部屋、部屋 B、C も同様に園庭 B、C で遊んだ幼児の部屋である。部屋 A、B の拭き取り面から多くの Pb が検出された。部屋 A、B ではほとんどの拭き取り面で  $0.1 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以上であったが、部屋 C では半数以上が  $0.1 \mu\text{g}/100\text{cm}^2$  以下であった。このように部屋によって Pb 量が異なったことから、過ごす部屋によって手指に付着する金属量が異なると考えられる。

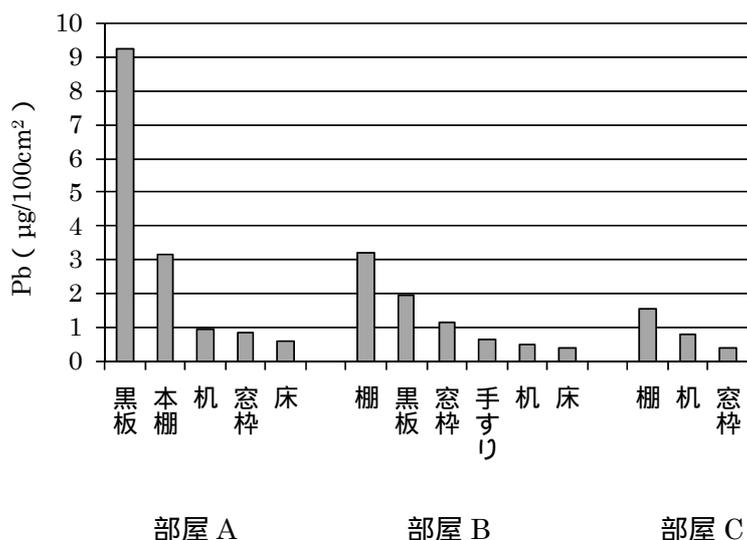


図 5-14 屋内の拭き取り結果 (Pb)

(2) 幼児の手指に付着した金属

手指の拭き取りを行った幼児の人数を表 5-12 に示す。マニラでは、拭き取り調査を行った園庭 A、園庭 B、園庭 C でそれぞれ分かれて遊んでもらい、遊んだ後の手指を拭き取った。

拭き取り結果を表 5-13 に示す。園庭別での幼児の金属付着量の平均値を図 5-15 に示す。

表 5-12 幼児の手指の拭き取り人数 (マニラ)

年齢	性別	人数 (人)			
		園庭 A	園庭 B	園庭 C	合計
3 歳	男	-	-	1	1
	女	-	-	1	1
4 歳	男	3	5	8	16
	女	4	4	17	25
5 歳	男	6	8	-	14
	女	10	9	-	19

表 5-13 幼児の手指に付着していた金属  
(マニラ)

	平均値 ( $\mu\text{g}$ )	中央値 ( $\mu\text{g}$ )	最大値 ( $\mu\text{g}$ )	最小値 ( $\mu\text{g}$ )
Mg	14.99	11.65	66.80	4.01
Al	10.08	8.21	58.38	1.66
K	234.35	205.59	637.99	45.60
Ca	268.59	185.54	2250.35	65.44
Mn	1.41	1.07	9.23	0.25
Fe	12.49	10.18	71.73	1.91
Co	-	0.05	0.20	below DL
Ni	-	0.11	1.18	below DL
Zn	10.93	9.08	48.96	2.12
Cd	-	0.01	0.17	below DL
Pb	3.80	2.92	12.43	0.17

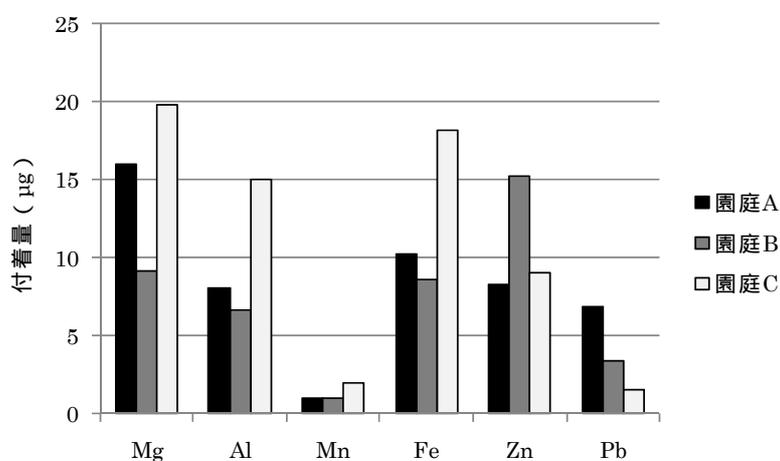


図 5-15 幼児の手指に付着した金属の平均量 (園庭別)

図 5-15 より園庭によって幼児の手指に付着している金属量が異なることがわかった。土壌、砂、遊具の塗料中の金属が園庭によって異なり、それに伴って遊んだ幼児の手指に付着していた金属量も異なっていた。特に Pb で見た場合、土壌中濃度が最大であった園庭 B よりも、遊具の塗装面からの移行量が最大であった園庭 A の方が付着量が多かった。このことから幼児らの鉛曝露量への遊具面塗料からの寄与が小さくないことがわかる。このように園庭の土壌、砂に含まれた金属量、遊具に付着していた金属量に対応して、多くの元素が手指に付着していることがわかった。

よって、重金属で汚染された場所で遊んだ場合、接触によって手指には多くの重金属が付着し、hand-to-mouth 行動をすることにより摂取される可能性が高い。

### 5.5 都市別による比較

幼児の手指に付着した金属量の中央値、土壌中の金属量の中央値を都市別に比較した結果を図 5-16、図 5-17 に示す。京都、京都は、第 4 章で拭き取り調査を行った K 保育園、T 幼稚園である。クアラトレンガヌ、バンコク、マニラ、京都、京都は園庭で遊んだ後の手指の結果を示している。Mg、Al、Fe、Mn、Zn は、バンコクが他の都市よりも多く幼児の手指に付着していた。バンコク、マニラの土壌に含まれている Mg、Al、Fe、Mn の量を比較すると、マニラの方がバンコクよりも多く含まれているが、手指に付着している Mg、Al、Fe、Mn の量はバンコクの方がはるかに大きいことからバンコクの幼児の遊んだ後の手指には多くの土壌が付着していると考えられる。Pb はマニラで最も多く手指に付着していた。マニラでは、他の都市と比較して、遊具から多くの Pb が検出されたことから、遊具の塗装面に多くの Pb が含まれていれば、触れることで多くの Pb が手指に移行することがわかる。

Al、Fe、Mn は土壌の主要成分であることから各都市の土壌中 Al、Fe、Mn の量から 1 人の幼児の手指に付着している土壌量を算出した。幼児は園庭の色々な場所の土壌に平均的に触れているとして、土壌に含まれている各元素量の平均値を用いて求めた。各都市で幼児の手指に付着している Al、Fe、Mn の量から求めた土壌付着量の結果を表 5-14 に示す。クアラルンプール、クアラトレンガヌは、屋外で遊んでいないが、ここでは参考として手指に付着している Al、Fe、Mn が園庭の土壌由来であった場合を仮定して土壌量を求めた。表 5-14 よりバンコクの幼児の手指には 1 人あたり中央値で 28.4mg の土壌が付着していたと考えられる。バンコクは、他の都市の幼児よりも多く土壌や砂が手指に付着していた可能性が高いが、これはバンコクでは、園庭の中心に砂場があり、幼児は遊んでいる間に土壌や砂に触れる機会が多いため、手指に多く土壌や砂が付着したのではないかと考えられる。また、マニラでは土壌量が小さくなった。園庭別の幼児の土壌付着量を表 5-15 に示す。これは、園庭 A の遊具を設置している地面は土壌ではなく、やわらかいプラスチック素材で覆われており、その周りを土壌で囲んであることから園庭 A で遊ぶ場合、土壌に触れる機会が少なくなるためと考えられる。しかし、園庭 B、園庭 C の地面は土壌や砂であり、園庭 C は砂場があることから園庭 B、C で遊んだ幼児の手指には多くの土壌や砂が付着すると予想したが、砂場のない園庭 B は園庭 A と同程度しか付着していないことがわかった。このことから、第 4 章と同様に、手指に付着する土壌量としては砂場の影響が大きいことがわかる。

Pb は、マニラが多く手指に付着していた。マニラでは、3 つの園庭のうち、2 つの園庭の遊具の塗膜や土壌に多くの Pb が含まれていたことから、それらの Pb が手指に付着したと考えられる。手指に付着していた土壌量は他の都市に比べて小さかったが、多くの Pb が

付着していたことから、遊具の塗装面から多くの Pb が付着している可能性が考えられる。

これらのことより幼児の遊ぶ環境中で Pb が多く存在すると、それだけ多くの Pb が手指に付着することがわかる。

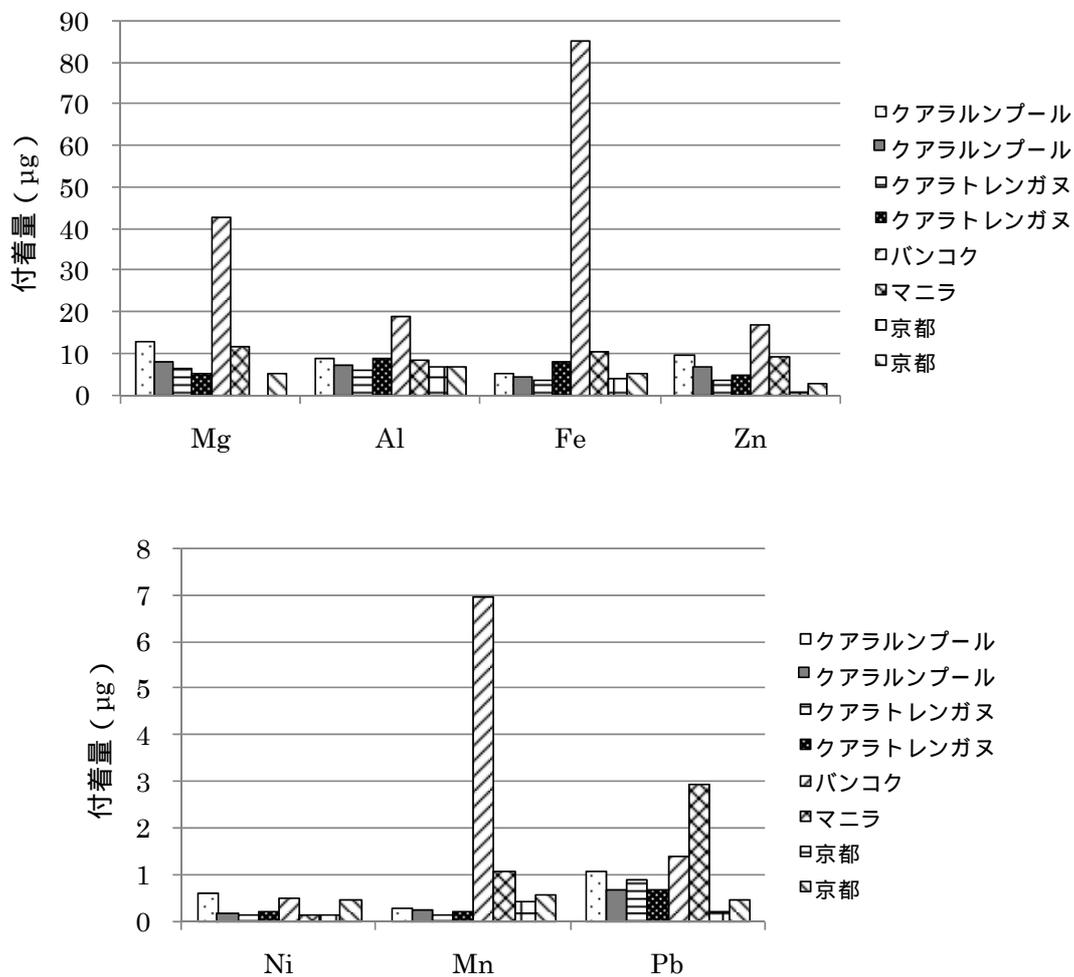


図 5-16 幼児の手指に付着した金属量（都市別）

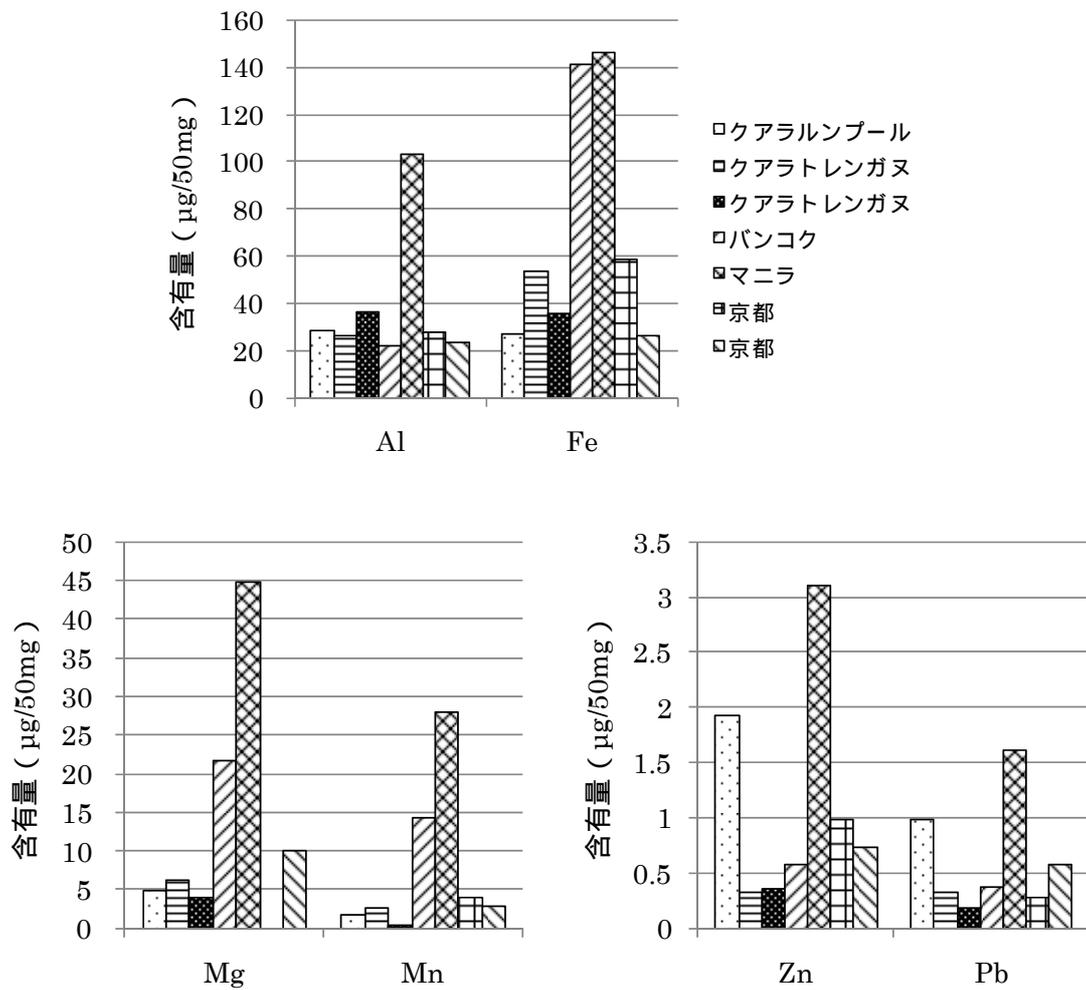


図 5-17 土壌中の金属量（都市別）

表 5-14 Al、Fe、Mn から算出した土壌付着量（単位：mg）

	平均値	中央値	最大値	最小値
クアラ Lumpur	6.1	5.6	12.5	2.0
クアラ トレンガヌ	3.6	3.3	7.8	1.6
クアラ トレンガヌ	13.6	13.2	26.7	3.2
バンコク	37.5	28.4	193.4	3.1
マニラ	3.5	2.8	21.0	0.6
京都	9.8	5.1	57.8	0.3
京都	17.2	10.5	117.2	1.0

表 5-15 Al、Fe、Mn から算出した土壌付着量

(単位：mg)

	平均	中央値	最大値	最小値
園庭 A	2.61	2.49	5.83	0.73
園庭 B	2.73	2.52	5.62	0.65
園庭 C	5.34	3.86	22.11	0.67

### 5.6 環境データからの考察

マレーシア、タイ、フィリピンの各都市での幼児の手指の拭き取り調査で、幼児の手指には様々な金属が付着していることがわかった。また、幼児の身の回りに多くの金属が存在すると、幼児の手指にも多く付着していることがわかった。特に鉛は幼児にとって注目すべき元素であり、生活環境中に多く存在し、幼児の手指にも付着していた。そこで、各都市の幼児の鉛曝露について環境データから考察する。

わが国では、1970 年まで有鉛ガソリンが使用されており、鉛の主要な曝露源であった。しかし、1970 年以降、ガソリンへの鉛添加量は大幅に減少し、1975 年にレギュラーガソリンの無鉛化が実施され、1987 年には、ハイオクガソリンを含めて完全にガソリンが無鉛化された。<sup>5.2) 5.3)</sup> その結果、東京都における大気中鉛濃度は、1969 年では  $1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  を超える地点もあったが、1977 年では  $0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以下となり大幅に減少した<sup>5.4)</sup>。現在まで減少し続けており、2003 年度の日本全国における大気中鉛濃度のモニタリング結果では、幾何平均値は  $0.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以下となっている<sup>5.5)</sup>。大気中鉛濃度の減少に伴い、幼児の血中鉛濃度も減少傾向にある。瀬戸ら<sup>5.6)</sup>は、1970 年代における東京都民の血中鉛濃度の推移について報告している。1970 年の調査では、0~14 歳児の血中鉛濃度の平均値は約  $10 \mu\text{g}/\text{dL}$  となり高い値となったが、1978 年の調査では 7~14 歳児の血中鉛濃度の平均値は約  $6 \mu\text{g}/\text{dL}$  となり減少している。近年では、2004 年~2005 年の調査により、290 人の 0~15 歳児を対象に調査を行った結果、幾何平均で  $1.4 \mu\text{g}/\text{dL}$  となり、非常に小さな値となっている<sup>5.5)</sup>。

東南アジア諸国でも、1980 年代ごろまで鉛の曝露源は主に有鉛ガソリンであったことから、1990 年代に有鉛ガソリンの対策が進められている。

マレーシアでは、自動車が必要な鉛の排出源であり、1980 年代は大気環境基準（ガイドライン）を超えるほど大気中鉛濃度は高かった。しかし、1985 年自動車ガソリン中の鉛化合物規制に関する環境規則が定められ<sup>5.7)</sup>、1991 年に無鉛ガソリンの使用の推奨、1998 年に有鉛ガソリンの段階的廃止が促進され、その結果 1988 年の  $1.73 \mu\text{g}/\text{m}^3$  から 2000 年の  $0.053 \mu\text{g}/\text{m}^3$  となり、大気中の鉛濃度は大幅に減少した<sup>5.8)</sup>。

タイでは、1980 年代終わりまで有鉛ガソリンが使用されていたが 1990 年代初めに無鉛ガソリンの使用が促進され、1995 年には完全に有鉛ガソリンの使用が廃止された。その結果、1991 年の  $1.55 \mu\text{g}/\text{m}^3$  から 1996 年の  $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  となり、大気中の鉛濃度は大幅に減少

している<sup>5.9)</sup>。

フィリピンでは、1990年代初めまで大気中の鉛濃度は高く、1987年では大気環境基準(ガイドライン)  $1 \mu\text{g} / \text{Nm}^3$  を超える  $1.28 \mu\text{g} / \text{Nm}^3$  が測定された。1993年に初めて有鉛ガソリンが規制され、2000年末に有鉛ガソリンは段階的に廃止された<sup>5.10)</sup>。その結果、2003年には大気中の鉛濃度は大気環境基準(ガイドライン)を大幅に下回った。しかし、2005年には大気環境基準(ガイドライン)  $1 \mu\text{g} / \text{m}^3$  を上回る  $1.89 \mu\text{g} / \text{m}^3$  が測定された地点もあり、鉛曝露源となっている可能性がある<sup>5.11)</sup>。

有鉛ガソリンの廃止により、幼児の血中鉛濃度にも大きな変化が見られた。バンコクでは、有鉛ガソリンの全廃前の1993年には子供の血中鉛濃度が平均で  $9 \mu\text{g} / \text{dl}$  であったのが、2000年には  $5.42 \mu\text{g} / \text{dl}$  に減少した。また、血中鉛濃度がアメリカ CDC で懸念レベルとされている  $10 \mu\text{g} / \text{dl}$  以上である子供の割合が1993年の27.9%から2000年には3.12%まで減少した<sup>5.12)</sup>。マニラでは、2000年には血中鉛濃度が  $10 \mu\text{g} / \text{dl}$  以上である子供の割合が90.3%と非常に高かったが、2003年には34.6%と大幅に減少した<sup>5.13)</sup>。フィリピン全体では、2003~2004年の調査で、血中鉛濃度は平均で  $7.1 \mu\text{g} / \text{dL}$  であったが、22%は血中鉛濃度が  $10 \mu\text{g} / \text{dl}$  以上であった<sup>5.14)</sup>。

有鉛ガソリン廃止後のマレーシアの幼児の血中鉛濃度について示す。

Hashim et al.<sup>5.15)</sup>は、マレーシアの7~11歳の子供を対象に、都市の大きさ別に、子供の血中鉛濃度を測定している。Kuala Lumpurは都市部、Kemamanは中程度の都市部、Setiuは田舎として、3つの地域で調査が行われた。クアラトレンガヌはKemamanとSetiuに挟まれて位置している。呼吸域の鉛濃度を測定した結果、Kuala Lumpurは  $95 \text{ng} / \text{m}^3$ 、Kemamanは  $27 \text{ng} / \text{m}^3$ 、Setiuは  $15 \text{ng} / \text{m}^3$  と都市部で鉛濃度が高く、鉛に曝露されやすい。血中鉛濃度の調査結果は、表5-16のようになり、都市部の方が血中鉛濃度が高いことがわかった。

表 5-16 子供の血中鉛濃度

	人数	平均 ( $\mu\text{g} / \text{dL}$ )	最大値 ( $\mu\text{g} / \text{dL}$ )	最小値 ( $\mu\text{g} / \text{dL}$ )
Kuala Lumpur	179	5.26	18.50	0.88
Kemaman	112	2.81	12.30	0.14
Setiu	55	2.49	5.18	0.05

Hashim et al.<sup>5.15)</sup>より作成

このように鉛曝露源となっていた有鉛ガソリンの廃止政策により、幼児の血中鉛濃度が減少し、鉛曝露に対するリスクが大幅に減少した。しかし、これらの鉛がほこり、土壌、水に残留しており、特に交通量が多い地域で見られると指摘されている<sup>5.16)</sup>。

本研究の調査で、マニラでは屋内外の拭き取り結果から多くの鉛が検出され、土壌の鉛

含有量も他の都市に比べて高い値となった。

有鉛ガソリンは燃焼することで鉛が大気中に放出される。大気中に放出された鉛は、土壤や河川の底質に強く吸着されることがわかっている<sup>5.17)</sup>。マレーシア、タイでは有鉛ガソリンの廃止後、大気中の鉛濃度は非常に小さな値となっている。フィリピンでも大気中の鉛濃度は非常に小さな値となったが、2005年には都市部で大気環境基準（ガイドライン）を超えた地点があった。これらの有鉛ガソリン起源の鉛がほこり、土壤に残留している可能性がある。

さらに塗料中の鉛が新たに重要な問題となっていることが報告されている。血中鉛濃度の基準を超えている幼児は家で使用されている塗料に曝露されている可能性があり、有鉛ガソリン以外の鉛汚染源、特に塗料中の鉛を取り除く必要があると勧告している<sup>5.12)</sup>。拭き取り結果から、日本、クアラルンプール、クアラトレンガヌ、バンコク、マニラ全ての都市で、塗装面の鉛付着量が高いところがあり、新たに重要な鉛の曝露源となる可能性が高い。

塗料中の鉛含有量に関する情報が少ないことから、Clark et al.<sup>5.18)</sup>は、マレーシアで販売されている塗料中の鉛濃度を測定している。その結果、72%の塗料が、アメリカで新たに販売されている塗料に定められている鉛濃度 0.06% (600ppm) を超えていた。最大値で 14.3% (143,000ppm) となり、この塗料を使用して、家が建てられていたことがわかっている。本研究で行ったマレーシアの屋内の拭き取り調査で、ドアや棚、壁などから多くの鉛が検出されており、同様の結果を示していることから、鉛が含まれている塗装面に触れることで多くの鉛が手指に付着する可能性が高い。

#### 5.7 重金属接触曝露によるリスク評価

幼児が遊んだ後の手指には、様々な元素が付着していた。フィリピンの調査から、土壤や遊具の塗膜に含まれていた元素量が多ければ、接触によってそれだけ多くの元素が幼児の手指に付着することがわかった。そこで、幼児が遊んでいるときに hand-to-mouth 行動をした場合の、塗装面、土壤などへの接触による重金属曝露量を推定する。

また、屋内で過ごしていた場合でも幼児の手指には、多くの元素が付着していたことから、屋内で過ごしているときに hand-to-mouth 行動をした場合の、塗装面、ほこりなどへの接触による重金属曝露量を推定する。

曝露量評価を行う上では、安全側の数値を採用するものとする。よって、手指に付着していた元素が摂取される量の推定値として、今回の拭き取り調査での最大値を用いて求める。

今回の調査で、屋外で遊んだ後、最大でフィリピンの幼児に 12.4  $\mu\text{g}$  の鉛が手指に付着していた。これは両手の拭き取り結果であるから、片手には平均で 6.2  $\mu\text{g}$  の鉛が付着していたことになる。今回のリスク評価では、遊んでいる間、常に 12.4  $\mu\text{g}$  (片手には 6.2  $\mu\text{g}$ ) の鉛が付着していると仮定する。

子供の手の大きさと手のひらの面積が測定されており<sup>5.19)</sup>、子供の平均の手の大きさ 85.646 (cm<sup>2</sup>) で手のひらの面積 50.675 (cm<sup>2</sup>) であった。これから指の面積を求めると 34.971 (cm<sup>2</sup>) となる。よって、手全体に対する指の面積の割合は、 $34.971 \div 85.646 \times 100 = 40.8\%$  である。1 回手指をなめる場合、指の半分を口に入れると仮定すると、口に入れる指の面積は手全体の約 20% である。

1 回手指をなめることにより手指に付着している鉛の 20% が経口摂取へ移行すると仮定する。30 分園庭で遊び、その間に 1 回片手の手指をなめた場合、摂取される鉛量は、 $6.2 \times 0.2 = 1.24 \mu\text{g}$  である。1 日 3 回屋外で遊んだ場合、 $1.24 \times 3 = 3.72 \mu\text{g}$  である。

この幼児の体重を 16kg とすると、体重 1kg あたりの摂取量は、 $3.72 \div 16 = 0.233 \mu\text{g/kg}$  である。この幼児がほぼ毎日園庭で遊ぶと考えると、この鉛摂取量と TDI (耐容一日摂取量) を比較することで、リスクの大きさを評価できる。

鉛は人体への蓄積性があることから、消化管からの吸収率が高く、最も感受性が高い乳児の代謝研究に基づき、TDI を体重 1kg 当たり  $3.5 \mu\text{g}$  と算出している<sup>5.20)</sup>。

鉛の経口曝露は、食品、土壌・粉じん、飲料水からの摂取が考えられ、経口曝露量全体に対する、食品、土壌・粉じん、飲料水からの摂取それぞれの寄与率は、幼児の場合、食品摂取の寄与は約 82%、土壌・粉じんは約 9%、飲料水は約 9% である<sup>5.5)</sup>。わが国の鉛の土壌含有基準の設定において、汚染土壌からの鉛摂取量を TDI の概ね 10% となるように算定されている<sup>5.21)</sup>。このことから TDI の 10% が土壌・粉じん経由の摂取量と考えられ、土壌・粉じん経由の TDI は、 $3.5 \times 0.1 = 0.35 \mu\text{g/kg/day}$  と算出でき、土壌・粉じん経由の TDI と接触による鉛摂取量を比較する。

これにより、1 日 3 回園庭で遊び、1 回遊ぶごとに 1 回手をなめる幼児が、1 回遊ぶごとに  $12.4 \mu\text{g}$  鉛が両手の手指に付着した場合、接触経由の鉛摂取量  $0.233 \mu\text{g/kg/day}$  は、土壌・粉じん経由の TDI  $0.35 \mu\text{g/kg/day}$  の約 70% となった。

幼児の hand-to-mouth 行動の回数は Reed et al.<sup>5.22)</sup> の観察結果より平均で約 9 回 / 時間であった。EPA は曝露量評価をする際、hand-to-mouth 行動の回数にこの値を用いることを推奨している<sup>5.23)</sup>。また、第 2 章で幼児の hand-to-mouth 行動の観察結果から、国別によらず、手指をなめていることがわかった。よって幼児が 1 時間に 9 回手指をなめるとして鉛接触曝露量を求める。

30 分遊んでいる間に片手に  $6.2 \mu\text{g}$  ずつ鉛が付着し、30 分間に 4.5 回手指をなめる幼児の場合を考える。複数回手指をなめる場合、片方の同じ手だけでなく片方ずつ両手をなめたとして求める。1 回あたり指の半分を口に入れると仮定すると、摂取される鉛量は、 $6.2 \times 0.2 \times 4.5 = 5.58 \mu\text{g}$  である。1 日 3 回園庭で遊ぶ場合、 $5.58 \times 3 = 16.74 \mu\text{g}$  となり、体重 16kg の幼児の、体重 1kg あたりの摂取量は  $16.74 \div 16 = 1.05 \mu\text{g/kg}$  である。よって 9 回 / 時間手指をなめる幼児が 1 日 3 回園庭で遊んだ場合、接触による鉛摂取量は  $1.05 \mu\text{g/kg/day}$  となり、これは土壌・粉じん経由の TDI  $0.35 \mu\text{g/kg/day}$  の 3.0 倍となった。

また、Reed et al.<sup>5,22)</sup>の観察結果から、手指をなめる回数は90パーセンタイル値で20回/時間であった。上記と同様に20回/時間手指をなめる幼児の接触による重金属摂取量を求める。

屋内で過ごした場合の手指には最大で4.27 $\mu$ gの鉛が付着していたことから屋内で手指に付着した鉛も手指をなめることにより摂取する可能性がある。そこで、屋外、屋内で過ごした場合の接触による鉛摂取量を求める。手指に付着した鉛量は、屋外、屋内ともに手指の拭き取り調査の最大値を用いることにする。以下に曝露条件を示す。

(曝露条件)

- ・1回遊んだ後の手指には12.4 $\mu$ g(片手あたり6.2 $\mu$ g)の鉛が付着し、常にこの量の鉛が付着している。
- ・1度屋内で過ごしているときの手指には4.27 $\mu$ g(片手あたり2.14 $\mu$ g)の鉛が付着し、常にこの量の鉛が付着している。
- ・屋外では1回30分、1日3回遊ぶ。(合計:1時間30分)
- ・屋内では1回1時間、1日4回過ごす。(合計:4時間)
- ・hand-to-mouth行動は、1時間あたり1~20回行う。
- ・手指を1回なめる場合、手の面積の20%をなめる。

曝露条件で、屋外で過ごす時間、屋内で過ごす時間をそれぞれ30分、1時間としたが、これは幼児の手指の拭き取り調査で、屋外では30分遊んだ後の手指を、屋内では1時間過ごした後の手指を拭き取ったことからこの値を用いた。

結果を表5-17に示す。9回/時間手をなめる幼児の鉛の摂取量は土壌・粉じん経由のTDI 0.35 $\mu$ g/kg/dayの6.1倍となった。

第3章で行ったリスク評価では、両手の手指に付着した鉛の全てが経口摂取へ移行すると考え、接触による鉛摂取量を求めた。本章でも、第3章で行ったリスク評価と同様に、手指に付着した鉛の全てが経口摂取へ移行すると考えると、接触による鉛摂取量は、1回30分屋外で遊んだ場合、12.4 $\mu$ gとなる。これは、20回/時間、どちらか片方の手をなめて、手指に付着している量の20%が常に幼児の経口摂取となる場合と等しい値である。

つまり、1回あたり手指をなめる面積を手の面積の20%とし、常に同じ量の鉛が手指に付着していると仮定した場合、Reed et al.<sup>5,22)</sup>の推奨する頻度で手指をなめる幼児が、30分屋内外で過ごした場合の接触による鉛摂取量を求めると、屋内外で30分過ごした後の手指に付着した鉛が全て経口摂取されると仮定した場合の接触による鉛摂取量に等しくなる。

表 5-17 接触による鉛摂取量

手をなめる回数 (回 / 時間)		1	9	20
屋外	1 回 30 分遊ぶ ( $\mu\text{g}$ )	0.62	5.58	12.40
	3 回遊ぶ ( $\mu\text{g}$ )	1.86	16.74	37.20
屋内	1 回屋内で過ごす ( $\mu\text{g}$ )	0.43	3.85	8.56
	4 回屋内で過ごす ( $\mu\text{g}$ )	1.71	15.41	34.24
合計 ( $\mu\text{g}$ )		3.57	32.15	71.44
体重 1kg あたりの摂取量 ( $\mu\text{g} / \text{kg}$ )		0.22	2.12	4.49

また、土壌・粉じん経由の TDI  $0.35 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$  となるような、接触による鉛付着量を求めてみると、体重 16kg の幼児の場合、 $0.35 \times 16 = 5.6 \mu\text{g}/\text{day}$  となる。よって、1 日に合計  $5.6 \mu\text{g}$  以上の鉛量が手指に付着している場合、よく手指をなめる幼児は、土壌・粉じん経由の TDI を超える可能性がある。

このように、普段の生活の中で手指に多くの鉛が付着した場合、手指を頻繁になめることによって無視できない量の鉛を摂取してしまう可能性が高い。

#### 5.8 接触によるリスク低減への提言

屋外で遊んだ後の手指には多くの重金属が付着していた。また、屋内で過ごした場合でも元素によって多く付着している重金属があった。hand-to-mouth 行動により、手指に付着した重金属を摂取してしまう可能性がある。手指に多くの鉛が付着し、平均的にその手指をなめた場合、鉛摂取量は土壌・ほこり経由の TDI の約 6 倍となる場合もあり、接触による鉛摂取のリスクは大きくなると考えられる。しかし、幼児の hand-to-mouth 行動、様々なものに触れるといった行動は成長していく段階で自然な行動であることから、リスク低減のためとって、この行動の回数を減らすことはできない。よって、手指に付着している重金属量を減らすことで、接触による重金属摂取のリスクを小さくすることができる。

第 4 章で、手指に多く重金属が付着していたとしても手を洗うことによって手指に付着している重金属を除去することができ、手洗いによって、接触経由の重金属摂取のリスクを低減することができる」と述べた。手を洗った後の手指に付着している鉛量から求めた接触による摂取量と土壌経由の TDI を比較する。第 4 章より、手指に付着した重金属は手を洗うことで 90% 以上除去できることがわかった。上記と同じ曝露条件で、手を洗うことにより手指に付着した鉛は 90% 除去できるとした場合、手をこまめに洗うと仮定し、手指を 9 回 / 時間なめる幼児の鉛の摂取量は、 $0.20 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$  となった。この値は土壌・粉じん経由の TDI  $0.35 \mu\text{g}/\text{kg}/\text{day}$  の約 60% となった。よって、手を洗うことが接触による重金属

摂取のリスクの低減に大きな効果がある。

また、幼児は多くのものに触れる。幼児の身の回りには様々なものがあり、屋外では、土壌や砂、遊具などがあり、屋内ではドアや壁、窓、床、家具などがある。幼児はこれらのものに触れることで手指に重金属が付着する。屋内外の様々な拭き取り調査の結果、幼児の触れる可能性が高いものから多くの重金属が検出されたことから、幼児の触れやすいものに重金属が含まれていなければ、幼児の手指に移行する重金属量が減少し、結果的に重金属摂取リスクの低減になる。

重金属含有量あるいは重金属付着量を減らすためには、何らかの基準が必要である。そこでマレーシア、タイ、フィリピンにおいて大気環境基準、土壌環境基準など、環境基準について調査した。

マレーシア、タイ、フィリピンでは、鉛の大気環境基準やガイドラインが定められている。鉛の大気環境基準（ガイドライン）を表 5-18 に示す。

表 5-18 鉛の大気環境基準（ガイドライン）

マレーシア	タイ	フィリピン	
大気環境基準 (ガイドライン)	大気環境基準	大気環境基準 (ガイドライン)	
平均曝露時間	平均曝露時間	平均曝露時間	
3 か月	1 か月	3 か月	1 年
1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1.5 $\mu\text{g} / \text{Nm}^3$	1 $\mu\text{g} / \text{Nm}^3$

タイでは土壌環境基準が定められている。土壌環境基準は、居住地・農地用とその他の土地用の2つがあり、土地の使用目的別に基準が定められている<sup>5.24)</sup>。タイの土壌環境基準を表 5-19 に示す。分析方法は米国 EPA 法である<sup>5.25)</sup>。

表 5-19 土壌環境基準（タイ）(単位：mg/kg)

	居住地・農業用地	その他
As	3.9	27
Cd	37	810
Cr( )	300	640
Pb	400	750
Mn	1,800	32,000
Hg	23	610
Ni	1,600	41,000
Se	390	10,000

マレーシアでは、土壤環境基準は定められていないが、1974年に環境対策に対する基本法として1974年環境法（Environmental Quality Act 1974）が制定されている。環境法には土壤汚染に関する規定が記されており、その中で「いかなる土地であってもその土壤または土地表面を汚染するまたは汚染の原因となる、あるいは汚染を可能にしてはならない。」として、環境中への排出を禁止する記述がなされている<sup>5.26)</sup>。

フィリピンでは、土壤汚染に関する法律はなく、グローバル企業は自主的な調査を実施している<sup>5.25)</sup>。

わが国では、有害物質に汚染された土壤による人への健康影響を防止するため、土壤汚染対策法が平成15年に施行された。指定基準として、地下水等の摂取によるリスクに係る土壤溶出量基準と直接摂取によるリスクに係る土壤含有量基準が設定されている<sup>5.27)</sup>。我が国における土壤含有量基準（重金属）を表5-20に示す<sup>5.28)</sup>。土壤含有量基準では、1N塩酸による抽出方法が用いられている。1N塩酸抽出法は、人体へ吸収され得る重金属量を近似的に測定する方法であり、土壤中の重金属のうち、人体に吸収されやすい量をおおよそ推定可能である<sup>5.29)</sup>。

表 5-20 土壤含有量基準（日本）  
（単位：mg/kg）

	土壤含有量基準
As	150
Cd	150
Cr( )	250
Pb	150
Hg	15
CN	50
Se	150
F	4000
B	4000

本研究では、1N塩酸抽出法により重金属量を測定した。マレーシア、タイ、フィリピン、日本の各都市の幼稚園で採取した土壤中の鉛量とわが国の土壤含有量基準を比較する。わが国の鉛の土壤含有量基準は土壤1kgにつき150mg以下である。マレーシア、タイ、フィリピン、日本で採取した土壤に含まれている鉛量を表5-21に示す。

ほとんどの都市でわが国の土壤含有量基準を下回ったが、マニラの園庭Bで超えていた。園庭Bでは16地点中6地点で基準を超えていた。幼児の手指には土壤が付着していたこと

表 5-21 土壌中の鉛量（都市別）（単位：mg/kg）

		平均値	中央値	最大値	最小値
クアラルンプール		19	20	37	5
クアラトレンガヌ		13	6	73	4
クアラトレンガヌ		4	3	7	2
バンコク		8	7	15	5
マニラ	園庭 A	23	21	40	12
	園庭 B	130	95	525	27
	園庭 C	17	9	68	4
京都		11	6	38	4
京都		13	12	21	7

から、土壌中の重金属量を減らすことで接触による重金属摂取量を少なくすることができると考えられる。マレーシア、フィリピンでは基準が定められていないことから、その国に応じた基準を設定することが必要である。

5.5 の手指に付着していた土壌量の推定から、園庭 A、B で遊んだ後の手指にはほぼ同じ量の土壌が付着していた。園庭 B の土壌で多くの鉛が含まれていたが、幼児の手指に付着した鉛の量を見ると、園庭 A で遊んだ幼児の方が大きくなっている。遊具の塗装面からの鉛量を園庭 A、B で比較すると園庭 A の遊具の方が多くの鉛が検出された。これらのことから手指に付着していた鉛は遊具の塗料由来である可能性が高い。遊具の塗料には鉛が含まれていると考えられることから、塗料の鉛含有量を減らすことで接触による鉛摂取量も減少すると考えられる。マレーシア、タイ、フィリピンでは鉛が含まれている塗料に関する基準が定められておらず<sup>5.18) 5.30) 5.16)</sup>、これらの塗料中の鉛含有量に対して基準を設けることが必要である。

Clark et al.<sup>5.18)</sup>は、同じメーカーの塗料で、マレーシアで販売されている塗料と、塗料の鉛含有濃度の基準が定められているシンガポールで販売されている塗料の鉛濃度を測定している。あるメーカーではマレーシアとシンガポールで販売されている塗料に含まれている鉛濃度は低い値となったが、大きく差が見られたメーカーの塗料があった。差が見られたメーカーの塗料で、シンガポールの鉛濃度は約 40ppm であったのに対し、マレーシアの鉛濃度は 24,200 ~ 149,100ppm であった。シンガポールでは塗料中の鉛濃度基準を 600ppm と定めている<sup>5.30)</sup>。このように基準を定めることで、結果的に鉛曝露量を減少させることができると考えられる。

また、第 3 章より多くの鉛が検出された遊具の塗料が新しく塗り直された後は鉛はほとんど検出されなかったことから、鉛フリーの塗料を塗り直すことで手指への鉛移行量は大幅に減少すると予想される。

有鉛ガソリンの使用廃止によって、幼児の血中鉛濃度が大きく減少したことから、有鉛塗料の使用を廃止することでさらに幼児の血中鉛濃度が減少し、幼児の鉛曝露によるリスクを低減することができると考えられる。

## 5.9 おわりに

本章では、幼児の有害物質への曝露は都市によって異なると考え、アジア諸国の生活環境の異なる都市間において、幼児の接触による重金属への曝露状況について調査した。その結果、以下のような知見・結論が得られた。

1) クアラルンプール、クアラトレンガヌ、バンコク、マニラの幼稚園の屋内外の様々な面を拭き取り、測定した結果、多くの重金属が検出された。都市別に見ると、クアラルンプール、クアラトレンガヌでは屋内のドアや壁など幼児が毎日触れる可能性が高いところから多くの鉛が検出された。バンコクでは屋内の拭き取り結果から重金属はあまり検出されなかったが、園庭の柵、遊具の塗装面に鉛が含まれていた。マニラでは、屋内外で重金属が多く検出された。よってこれらの重金属は幼児が触れることにより、手指に移行する可能性が高い。

2) 幼児の手指を拭き取った結果、屋内で過ごした場合、園庭で遊んだ場合、どちらも手指には多くの重金属が付着していた。マニラでは 3 か所の園庭で幼児が遊んだが、それぞれの園庭で鉛存在量が異なり、それに伴って幼児の手指に付着している鉛量も変化していたことから、園庭の遊具の塗装面、園庭の砂・土壌に多く鉛が含まれていれば、それだけ多くの重金属が手指に付着することがわかった。

3) 幼児の手指に付着している土壌量を推定した結果、マニラが最も少なく 2.8mg で、クアラトレンガヌでは 13.2mg であった。京都では、50 パーセントイル値で 5~10mg の土壌が付着していた。バンコクの幼児が多くの土壌が付着しており、50 パーセントイル値で 28.4mg の土壌が付着していた。

4) 各都市の幼児の重金属曝露について環境データから考察した結果、マレーシア、タイは有鉛ガソリンの廃止後、大気中の鉛濃度はかなり低くなっているが、フィリピンでは都市部で大気中の鉛濃度が大気環境ガイドラインを超えていた地点もあり、マニラの土壌に含まれていた鉛は、土壌に吸着した有鉛ガソリン起源の鉛である可能性が高い。近年、塗料中の鉛が新たに重要な問題となっており、塗料の拭き取り結果より塗装面から多く鉛が検出されたことと一致している。

5) 幼児の手指に付着している鉛量から、接触による重金属摂取のリスクを求めた。遊んだ後の手指に 12  $\mu$ g の鉛が付着している幼児が 1 日 3 回屋外で遊んだ時、hand-to-mouth 行動を平均的に行った場合の鉛摂取量は、土壌経由の TDI の約 3 倍となった。また、設定した曝露条件から 1 日の接触による鉛摂取量は土壌経由の TDI の約 6 倍となり、非常に高い値となった。

6) 接触による重金属摂取リスクの低減のためには手を洗うことが非常に重要であることが

わかった。各都市の土壤中鉛含有量とわが国の土壤含有量基準を比較すると、マニラの土壤が基準を超えている地点もあり、最大で基準の 3 倍以上となった。土壤環境基準は、タイで定められているが、マレーシア、フィリピンでは設定されておらず、土壤環境基準を設定することで土壤中の重金属量を減らすことができると考えられる。塗料中にも多くの鉛が含まれていたが、遊具の塗装面を鉛フリーの塗料で塗り直すことで手指への鉛移行量が大幅に減少することができ、接触による重金属摂取リスクの低減につながる。

## 第 5 章 参考文献

- 5.1 )Cohen Hubal E.A., Sheldon L.S., Burke J.M., McCurdy T.R., Berry M.R., Rigas M.L., Zartarian V.G., and Freeman N.C.G.: Children's exposure assessment: a review of factors influencing children's exposure, and the data available to characterize and assess that exposure. *Environmental Health Perspectives* 108 (6), 475–486. (2000)
- 5.2 ) 東京都環境科学研究所：無鉛ガソリン使用によるエンジンおよび触媒式浄化装置耐久性への影響 (1976)
- 5.3 )内山巖雄, 東賢一：環境中の鉛による健康影響について, *モダンメディア* 第 55 巻 4 号 [食品衛生と環境衛生], 91-98 (2009)
- 5.4 ) 朝来野国彦, 渡辺武春, 小野塚春吉, 伊瀬洋昭, 石黒辰吉：東京都における重金属汚染について (第 3 報) 東京都環境科学研究所年報, 30-35 (1982)
- 5.5 ) NEDO 技術開発機構、産総研化学物質管理研究センター共編：詳細リスク評価書シリーズ 9 鉛
- 5.6 ) 瀬戸 博, 高橋利恵子, 長島親治, 藤谷和正, 秋山和幸, 溝口 勲, 野牛 弘：都民の血中, 尿中鉛量について 1970 年代における年次推移と地域差, 東京都立衛生研究所年報, 47, 219-224 (1996)
- 5.7 ) Department of Environment, Ministry of Natural Resources and Environment, Malaysia: ENVIRONMENTAL QUALITY (CONTROL OF LEAD CONCENTRATION IN MOTOR GASOLINE) REGULATIONS 1985
- 5.8 ) Department of Environment, Ministry of Natural Resources and Environment, Malaysia: Malaysia Environmental Quality Report 2004
- 5.9 ) World Bank. 1998. Successful Conversion to Unleaded Gasoline in Thailand, World Bank Technical Paper. 410
- 5.10 ) 2002 NATIONAL AIR QUALITY STATUS REPORT, Department of Environment and Natural Resources, Philippines
- 5.11 ) Asian Development Bank: Country Synthesis Report on Urban Air Quality Management, Philippines (2006)
- 5.12 ) Pollution Control Department (PCD), Ministry of Natural Resources and Environment, Bangkok, Thailand: "Unleaded Gasoline Policy: Health Benefits for School Children and Traffic Policemen in Bangkok Metropolitan Administration" (2002)
- 5.13 ) Environmental Management Bureau Department of Environment and Natural Resources: National Air Quality Status Report (2003-2004)
- 5.14 ) Riddell T.J., Solon O., Quimbo S., Tan C., Butrick E., Peabody J.W.: Elevated blood lead levels among children living in the rural Philippines. *Bull World Health Organ*, 85:674-680 (2007)

- 5.15) Hashim J.H., Hashim Z., Omar A. and Shamsudin S.B.: Blood lead levels of urban and rural Malaysian primary school children, *Asia Pac J Public Health* 12(2): 65-70. (2000)
- 5.16) Riddell T.J., Solon O., Quimbo S.A., Tan C.M.C., Butrick E. and Peabody J.W.: Elevated blood-lead levels among children living in the rural Philippines, *Bulletin of the World Health Organization* 85(9):674-680. (2007)
- 5.17) 国立医薬品食品衛生研究所：環境保健クライテリア 85 Environmental Health Criteria 85, 鉛 Lead - 環境面からの検討 - (日本語抄訳)(原著 106 頁, 1989 年発行)
- 5.18) Clark C.S., Rampal K.G., Thuppil V., Chen C.K., Clark R., Roda S.: The lead content of currently available new residential paint in several Asian countries, *Environmental Research* 102, 9-12. (2006)
- 5.19) Agarwal P., Sahu S.: Determination of hand and palm area as a ratio of body surface area in Indian population, *Indian Journal of Plastic Surgery*, 43(1), 49-53. (2010)
- 5.20) 環境省：化学物質ファクトシート 2008 年度版  
< <http://www.env.go.jp/chemi/communication/factsheet.html> > (accessed Sep 2009)
- 5.21) 環境省：土壌直接摂取によるリスク評価等について，平成 13 年 8 月 土壌の含有量リスク評価検討会 (2001)
- 5.22) Reed K.J., Jimenez M., Freeman N.C.G. and Lioy P.J.: Quantification of children's hand and mouthing activities through a videotaping methodology, *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology*, 9 (5), 513-520. (1999)
- 5.23) U.S. EPA (U.S. Environmental Protection Agency): CHILD-SPECIFIC EXPOSURE FACTORS HANDBOOK (2002)
- 5.24) Pollution Control Department (PCD), Ministry of Natural Resources and Environment, Thailand: Soil Quality Standards  
< [http://www.pcd.go.th/info\\_serv/en\\_reg\\_std\\_soil01.html](http://www.pcd.go.th/info_serv/en_reg_std_soil01.html) > (accessed Aug 2010)
- 5.25) イー・アンド・イー ソリューションズ株式会社：アジア諸国における土壌汚染法規と実務 - 台湾の例を中心に -  
< [http://www.eesol.co.jp/release/report/200411report\\_2.html](http://www.eesol.co.jp/release/report/200411report_2.html) > (accessed Nov 2010)
- 5.26) Department of Environment/ Ministry of Natural Resources and Environment, Malaysia: Environmental Quality Act 1974
- 5.27) 環境省：指定基準値の設定の考え方
- 5.28) 環境省・(財)日本環境協会：土壌汚染対策法のしくみ
- 5.29) 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*，第 42 巻，29-38. (2005)

5.30 )Clark C.S., Rampal K.G., Thuppil V., Roda S.M., Succop P., Menrath W., Chen C.K., Adebamowo E.O., Agbede O.A., Sridhar M.K.C., Adebamowo C.A., Zakaria Y., El-Safty A., Shinde R.M., Yu J.: Lead levels in new enamel household paints from Asia, Africa and South America, *Environmental Research* 109, 930–936. (2009)

## 6. 結論

### 6.1 本研究の結論

本研究では、幼児の生活環境中に存在する重金属の接触による曝露に着目して、接触曝露に関する幼児の行動を観測するとともに、このような幼児の行動を考慮した、塗装面をはじめとする様々な表面から接触により移行する重金属量を測定する方法を開発した。その開発した拭き取り法を用いて、幼児の身の回りにおける有害金属の実態調査を行い、幼児の有害金属への曝露状況を明らかにし、さらに幼児の手指に付着した金属に着目して、直接曝露に係る金属の起源の推定、接触経由の土壌摂取量の推定を行った。幼児の行動は人種・民族、経済的状況、社会的因子などに影響すると言われており、都市によって曝露量は異なると考え、生活様式などが異なる都市間において、重金属の曝露調査を行った。接触による重金属の直接曝露のリスク評価を行い、現在の曝露状況について明らかにし、リスクを低減させるための対策について提言した。

その結果、以下のような結果が得られた。

第2章では、有害物質の経口摂取につながる幼児の行動パターンを把握するため、幼児の hand-to-mouth 行動について観察を行った。その結果、幼児は普段の生活の中で hand-to-mouth 行動をしていることがわかり、幼児一人が遊んでいる間に手指などをなめる確率を求めてみると、数時間では1に近い値が得られた。hand-to-mouth だけでなく、物を口に入れる object-to-mouth 行動をしている幼児も見られた。このことから、幼児は1日遊んでいると一度は手指をなめており、手指に有害物質が付着していた場合、体内に有害物質が入る可能性があることがわかった。

第3章では、幼児らの塗装面への接触に起因する、重金属曝露量を推定するための測定法の開発と、実フィールドでの実態調査を行った。この測定法として、拭き取り法を検討し、塗装面から拭き取り材への重金属の移行量を測定する方法として、土壌汚染対策法での土壌中重金属量の測定方法を参考にして、1N 塩酸による抽出方法を採用した。拭き取り材は、塗装面からの重金属移行量の測定に影響が出ないように、拭き取る材質そのもののバックグラウンド重金属濃度が最小であった、表面に数字の書かれていないスミアろ紙に決定した。幼児が何度も同じ箇所を触れる場合の重金属移行量を推定するための拭き取り回数、手指が湿っている場合を考慮した拭き取り法など、測定条件を決定した。その決定した拭き取り法により、遊具の塗装面には多くの鉛が含まれており、憂慮すべきレベルのものが存在することが明らかとなった。幼児の塗装面への接触行動による重金属移行量の大きな推定を行うことにより、塗装面からの接触曝露によるリスクのスクリーニングが可能である。

第4章では、幼児の身の回りに存在する金属、幼児の手指に付着している金属に着目して、接触による有害金属曝露に関する様々な検討を行った。屋内外で拭き取り調査を行った結果、塗装面だけでなく、ほこりなどの非塗装面にも鉛などの重金属が検出され、幼児の身近なところに重金属が存在することがわかった。幼児の状況別に手指を拭き取った結

果、ほとんどの元素で、屋内で過ごすよりも屋外で遊んだ後の手指に多く付着していた。元素によっては屋内で過ごす方が多く付着しているものもみられたことから、幼児の身の回りに存在する金属の有無により、手指に付着する金属量に差がみられることがわかった。鉛同位体比を用いて、手指に付着していた鉛の起源の特定を試みた結果、塗料由来の鉛が付着している幼児もいたが、ほとんどが土壌、砂由来であった。遊んだ後の幼児の手指に付着している土壌量は Al、Fe、Mn から求めることができ、遊んだ後の幼児の手指には、95 パーセント値で 30mg の土壌が付着していることがわかった。

第 5 章では、アジア諸国の都市において、重金属曝露の調査を行った。幼児の身の回りの拭き取り調査の結果、屋内ではドアや壁などの塗装面に鉛が多く含まれており、屋外では遊具の塗装面から鉛が多く検出された。屋外で遊んだ後の幼児の手指には屋内で過ごした幼児よりも多くの重金属が付着していた。重金属が多く存在する場所で遊ぶと、それだけ多くの重金属が手指に付着することがわかった。幼児の手指に付着した土壌量を推定した結果、土壌に触れる機会が多い場所で遊んだ後の幼児の手指には中央値で 37.5mg の土壌が付着していた。マニラでは土壌中に多くの鉛が含まれていたが、これらは有鉛ガソリン起源の可能性が考えられる。しかし、マニラの幼児の手指に付着した土壌量は 50 パーセント値で 2.8mg となり他の都市に比べて土壌付着量が小さいが、他の都市と比較して幼児の手指に多くの鉛が付着していたこと、遊具の塗装面から多くの鉛が検出されたことから、幼児の手指に多く付着していた鉛は塗料起源の可能性が高い。幼児の手指に付着した鉛量の最大値から、接触による鉛摂取のリスク評価を行った。その結果、土壌経由の TDI の 6 倍となり、手指には憂慮すべきレベルの鉛量が付着している可能性がある。接触によるリスクを低減させるためには複数回の手洗いの実施、鉛フリー塗料の塗り直し、土壌環境基準の設定などの対策が有効な方法である。

以下に本研究の結論を述べる。

幼児は hand-to-mouth 行動をすることから、身の回りに存在する重金属に触れることによって、重金属を摂取する可能性がある。本研究では、幼児の行動を考慮した、重金属の接触曝露量を推定する方法を確立した。確立した拭き取り法を用いて幼児の身の回りに存在する重金属量を測定した結果、手指に付着する可能性が高い、多くの重金属が検出された。また、多くの重金属が幼児の手指に付着していた。幼児の身近に多くの鉛が含まれていた場合、それに触れることでそれだけ多くの鉛が手指に付着し、結果的に体内入ると考えられる。手指に付着した鉛量から接触による鉛摂取量を求めると、土壌経由の TDI よりもはるかに大きく、憂慮すべきレベルの鉛量が付着していることになる。接触による重金属摂取リスクの低減のためには複数回の手洗いの実施、有害重金属が含まれていない塗料の塗り直し、塗料の重金属含有量に関する基準、土壌環境基準の設定など、様々な対策を行う必要がある。

## 6.2 今後の展望

幼児の身の回りには多くの重金属が存在し、手指には多くの重金属が付着していた。幼児の手指に付着した重金属に着目して、重金属摂取リスクを評価し、リスクの低減策について提案した。本研究では、手指に付着している重金属の体内への移行率は考慮していない。手指への付着量と、実際の摂取量の間を推定する方法として、一般的な環境中に大量に存在せず、体内で吸収されない、毒性のない微粒子を手指に付着させ、排泄物中の微粒子量を追跡するなどの方法が考えられる。また、幼児の身の回りの鉛存在量と血中鉛濃度との関係を明らかにする必要がある。

## 謝辞

本研究を進めるにあたり、京都大学工学研究科の米田稔教授、中山亜紀准教授から多くのご指導をいただきました。深く感謝し、御礼申し上げます。米田稔教授には、本研究の実施の機会を与えていただき、その遂行にあたって終始ご指導をいただきました。また、中山亜紀准教授には、測定結果に対する考察についてのアドバイス、マレーシアの調査など、多くのご助力をいただきました。

京都大学工学研究科の小山昭夫教授、高岡昌輝教授には、本論文に関する分野について今後留意すべき点など、多くのご教示をいただきました。厚く御礼申し上げます。

京都大学工学研究科の森澤眞輔名誉教授には有意義なご教授を賜り、心から御礼申し上げます。

マレーシアの調査では、Universiti Kebangsaan Malaysia の Talib 教授、Universiti Malaysia Terengganu の Marzuki 教授には大変お世話になりました。サンプリングの際、Universiti Kebangsaan Malaysia、Universiti Malaysia Terengganu の学生の皆さんにサポートしていただきました。タイ、フィリピンの調査では、京都大学工学研究科の博士後期課程学生 Cesar Ortinero さんに試料採取をしていただきました。感謝いたします。

京都の拭き取り調査では、保育園、幼稚園の皆様にはお忙しい中ご協力いただきました。御礼申し上げます。

環境リスク工学研究室の皆さんには、拭き取り調査をはじめ、たくさんのサポートをしていただき、大変心強く思いました。ありがとうございました。

最後に、これまで温かく応援してくれた家族に心から感謝します。