ミニレビュー

家庭用殺虫剤の室内挙動予測ソフト *InPest* の開発

的場好英, 吉村 淳, 大西純一, 三上信可, 滝本善之, 松尾昌季

住友化学工業(株)

(平成 10 年 11 月 20 日受理)

Development of a Simulation Model “*InPest*” for Prediction of Indoor Behaviors of House-hold InsecticidesYoshihide MATOBA, Jun YOSHIMURA, Jun-ichi OHNISHI,
Nobuyoshi MIKAMI, Yoshiyuki TAKIMOTO and Masatoshi MATSUOSumitomo Chemical Co., Ltd., Environmental Health Science Laboratory, 4-2-1, Takatsukasa, Takarazuka,
Hyogo 665-8555, Japan

A computer software (to be registered as *InPest*) was developed in order to make a risk assessment of indoor-use insecticides to both applicators and indoor occupants in various applications including space spraying, electric vaporizing, broadcast spraying and residual spraying. The movement of an insecticide in a sprayed room was described as precisely as possible by utilizing various physicochemical equations, which were incorporated in the Fugacity model (Level IV). When insecticide information regarding molecular weight, vapor pressure, water solubility and octanol/water partition coefficient is available, *InPest* is able to simulate the time-dependent concentrations of the insecticide in the air and residual amounts on floor, wall and ceiling compartments under various conditions. Simulation data indicate that the predicted behavior of the insecticide fully agrees with the measured one. Based on the predicted concentrations, the levels of exposure to applicators and room occupants via inhalation, dermal or oral intake can be computed and compared with the mammalian toxicological data. Thus, *InPest* is a powerful tool for evaluating the safety of indoor-use insecticides with regard to human health.

緒 言

居住空間の衛生・快適性の維持向上を目的として、家庭用殺虫剤が使われる。対象害虫は衛生害虫から不快害虫へと広がり、多様化する消費者の要望にこたえて製品の種類も増加している。昭和 63 年の家庭用殺虫剤の剤型比率を販売高別に見ると、最も多いのはハエ蚊用エアゾール (23.8%), 電気蚊取り (24.7%) や蚊取り線香 (23%) となっている¹⁾。

家庭用殺虫剤の居住者に対する安全性は、化合物の持つ毒性と暴露量から評価される。化合物の毒性を把握するためには、医薬品製造指針に求められているような毒性試験 (急性/亜急性/慢性, 生殖, 抗原性, 変異原性, 局所刺激, 吸収/分布/代謝/排泄) が必要となる²⁾。一方, 居住者の暴露量を推定するためには, まず家庭用殺虫剤使用時および使用後の有効成分の気中濃度, 床, 壁等への残留量といっ

た室内挙動を把握し, 次に居住者の呼吸量, 床等への接触や手をなめる頻度といった居住者の行動様式を明らかにする必要がある。ところが, 殺虫剤の室内挙動は散布量, 製品中の殺虫剤含量や殺虫剤の物理化学的性質, 室内容積, 内装材材質, 換気率や温湿度などの要因により変動する。従って今包括的な室内挙動を把握しようとすればこれらの変動要因を全て調査しなければならず, これには膨大な時間と費用が必要となる。そこで, 包括的室内挙動を簡単に予測できるモデルが強く求められた。

既存モデルの評価

室内に散布された化合物の挙動を予測するモデルは, オランダの RIVM (National Institute of Public Health and the Environment) が開発した CONSEXPO³⁾ (CONSUMER product EXPOSURE and uptake) と, 米国環境保護庁が開発した SCEIS⁴⁾ (Screening-level Consumer Inhalation Exposure

Software) と MCCEM⁵⁾ (Multi-Chamber Concentration and Exposure Model) を含めた THERdbASE (Total Human Exposure Risk database and Advanced Simulation Environment) が有名である。これらのモデルは共に気中濃度のみ予測可能で、有効成分を完全気体状態とし、気中濃度の減衰は部屋の換気に依存するという原理に基づいており、実測値との合致性を十分に確認できていない状態にある。そこで、MCCEM モデルを用いて、ネオピナミンフォルテ (*d*-tetramethrin, C₁₉H₂₅NO₄) を含有するハエ蚊用エアゾールを 10 秒間、日本の典型的な 6 畳間で使用した時の気中濃度の実測値^{6,7)} と予測値を比較したところ (Fig. 1), 予測値は噴霧 7 hr 以降、実測値よりも小さく見積られていた。これは当該モデルが床や壁に付着したネオピナミンフォルテの気中への拡散現象を無視しているためである。つまり、殺虫剤の室内挙動には Fig. 2 に示す通り「発生・移動・拡散・分解」があるが、既存モデルでは「移動 (換気による排出)」しか考慮されていない。そこで、これらの挙動を網羅した精度の高い予測モデルの開発に着手することとした。

Fig. 1 Comparison between measured and estimated values by using an existing simulation model. A space aerosol product containing 0.45 g *d*-tetramethrin was uniformly sprayed for a total of 10 sec in a room (L 3.6 m × W 2.7 m × H 2.4 m) at the air exchange rate of 1.55/hr. Concentrations of *d*-tetramethrin in the air after spraying were measured (closed squares)^{6,7)} and compared with those simulated by the MCCEM model⁵⁾ (solid line).

Fig. 2 Indoor behavior of a chemical following application. When a chemical occurs in the air of a room [occurrence], it transfers to room materials such as floor, wall and ceiling [transference]. At the same time, it is degraded due to photolysis and/or oxidation [degradation] and discharged with ventilation [advection].

Fugacity モデル

予測モデルを構築するに当たっては、低濃度の化合物の挙動を精度良く予測できる Fugacity モデル⁸⁾ を基本とした。Fugacity モデルは濃度の異なる各区画 (Compartment) 特有の性質を考慮でき、かつ区画間の物質移動を容易に予測することが可能である。なお、Fugacity モデルは定常平衡状態の化合物挙動を予測する Level I, これに分解・移動を考慮した Level II, 定常非平衡状態を予測する Level III および非定常非平衡状態を予測する Level IV の四つのレベルがあるが、ここでは Level IV を用いてモデルの開発に着手することとした。

Fugacity (以下物理量は fugacity とする) は化学物質が区画から出て行こうとする圧力であり逃散能とも言われ、単位は圧力 (Pa) である。1979 年に Mackay⁹⁾ は低濃度であれば fugacity は区画中の化合物の濃度に比例することを見出し、 $N/V = fZ$ という式を立てた。ここで、 N は化合物量 (mol), V は区画体積 (m³) であるので N/V は区画中の化合物の濃度 (mol/m³) を意味し、 f つまり fugacity (Pa) と比例している。 Z はその区画が化合物を保有することのできる能力 (化合物保有能: mol/m³/Pa) を意味し、区画特有の値である。この式を基本とし、非定常非平衡状態の化合物の挙動を以下の方法で求めた。

まず濃度の異なる区画を分割し fugacity で表現する。例えば、空気 (4) と床 (5) の各区画内の化合物濃度は $N_4/V_4 = f_4 Z_4$ と $N_5/V_5 = f_5 Z_5$ で表すことができる。次に各区画の体積 V と化合物保有能 Z を定義する。空気の場合、体積 V_4 は部屋の大きさから規定され、化合物保有能 Z_4 は Boyle-Charles の $PV = nRT$ を変形し $Z_4 = 1/RT$ となる。ここで各区画の V と Z は時間に依存せず一定と仮定すると、化合物量 N と fugacity f の経時変化は $N/V = fZ$ を時間 t で微分して、 $(df/dt) VZ = dN/dt$ と表せる。ここで dN/dt は化合物量の経時変化を示しているの、空気と床の場合、以下の微分方程式となる。

$$\begin{aligned} \text{空気 (4)} : \frac{df_4}{dt} V_4 Z_4 &= - \underbrace{G V_4 f_4}_{\text{移動}} - \underbrace{D_{45} (f_4 - f_5)}_{\text{拡散}} - \underbrace{K_4 V_4 Z_4 f_4}_{\text{分解}} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{床 (5)} : \frac{df_5}{dt} V_5 Z_5 &= - \underbrace{D_{45} (f_5 - f_4)}_{\text{拡散}} - \underbrace{K_5 V_5 Z_5 f_5}_{\text{分解}} \end{aligned}$$

つまり空気中の化合物は、換気により「移動」すると同時に床へ「拡散」したり、空気中で「分解」する。空気中の化合物の移動は換気率 G (/sec) で、拡散は拡散係数 D (mol/Pa sec) と空気と床の fugacity (Pa) の差で、分解は分解定数 K (/sec) で表すことができる。同様に床についても上述の式が立てられるので、この連立微分方程式を解き、経時的な f_4 と f_5 をコンピューター計算により求め、得られ

た fugacity に各区画の化合物保有能 Z をかけると、それぞれの区画中の化合物の濃度変化が経時的に予測できる。

この Fugacity モデルをもとに *InPest* (Indoor Pesticide) を開発した。*InPest* は現在代表的な五つの散布方法すなわち、ハエ蚊用エアゾール^{6,7,10,11)}、液体蚊取り¹¹⁻¹³⁾、カーベット全域噴霧^{11,14)}、およびゴキブリ用エアゾール^{7,15)}の直撃および残留噴霧後の化合物の室内挙動を予測し、予測値から居住者の暴露量を自動算出するようプログラムされている。

InPest の開発原理

ここでは、ハエ蚊用エアゾールを例にとって *InPest* の開発原理を説明する。まず、ハエ蚊用エアゾールを散布した室内環境を7種類の区画に分割した (Fig. 3)。散布されたエアゾール粒子は、その粒径に応じて落下速度が異なるため、大中小の三つに分類し、その他は空気、床、壁、天井とした。

1. 区画体積の決定

エアゾール粒子の体積 V_i は粒子の直径 d_i を用いて $V_i = \pi d_i^3/6$ となる。このエアゾール粒子の直径 d_i は粒子を構成する成分 (オイルベースのエアゾールであればオイル、水ベースのエアゾールであれば水) の蒸発により、経時的に小さくなる。この現象は、噴霧直後の粒子の直径 d_{0i} (m)、粒径係数 α (m²/sec) と経過時間 t (sec) を用いて $d_i = (d_{0i} - 2\alpha t)^{0.5}$ で表せる¹⁶⁾。ここで粒径係数 α は、粒子構成成分の気中拡散係数 D_d (m²/sec)、分子量 M_d (g/mol)、比重 ρ_d (g/m³) とガス定数 R (Pa m³/K mol) の他、粒子表面の粒子構成成分の蒸気圧 P_d (Pa) と温度 T_d (K) の比と粒子から遠く離れた地点での同比 (P_∞/T_∞) の差により、 $\alpha = 4D_dM_d(P_d/T_d - P_\infty/T_\infty)/R\rho_d$ で定義される。空気の体積は部屋の容積と同じで $V_4 = L_4W_4H_4$ 。一方、床、壁、天井の体積は、化合物が付着すると内装材中へ浸み込んでいくという Lapcik と Panak の式¹⁷⁾を基に、内装材表面積 A_k (m²) と内装材中拡散定数 D_k (m²/sec) を用い、 $V_k = 2A_k(D_k t)^{0.5}$ で表した。

以上のようにして各区画の体積を求めたが、エアゾール

粒子と内装材の体積は経時的に変化する。ところが、元来の Fugacity モデルでは体積変化が考慮されていなかったため、Fugacity 式に体積変化の項 (dV/dt) Zf を追加し、モデルを発展させ (df/dt) $VZ = dN/dt - (dV/dt)Zf$ を基本式とした。

2. 区画の化合物保有能力の決定

エアゾール粒子の化合物保有能 Z は、Mackay と Paterson の文献⁸⁾ から $Z_i = 6 \times 10^{-6}/PRT_d$ 、空気の Z は $Z_4 = 1/RT$ 。床、壁、天井の Z については内装材中の油成分が化合物を保有すると考え、内装材中の油分構成比率 γ_k 、および化合物のオクタノール/水分配係数 K_{ow} 、水溶解度 S (mol/m³) と蒸気圧 P (Pa) から $Z_k = \gamma_k K_{ow} S/P$ とした。

3. エアゾール粒子数の変化

エアゾール粒子は床方向への落下に伴い、その区画自身が時間と共に消滅する。この粒子数 (n_i) の変化は $dn_i/dt = -n_i(v_i/H_{st} + G)$ で表せる。すなわち、粒子数は粒子の落下速度 v_i (m/sec) とエアゾール粒子の噴霧幅 H_{st} (m) の比および部屋の換気率 G (/sec) に従い減少する。なお、粒子の落下速度は Stokes の法則に従い、粒子構成成分の比重 ρ_d (g/m³) と重力加速度 g (m/sec²)、Cunningham 補正係数 (S_c : $S_c = 1 + 2[6.32 + 2.01 \exp(-8.32 \times 10^6 d_i)]/7.6 \times 10^7 d_i$)、空気の粘度 η (g/m/sec) ならびに粒子の直径 d_i (m) から $v_i = \rho_d g S_c d_i^2 / 18\eta$ となる。

4. 区画間の拡散係数

空気と内装材の間の拡散係数 $D_{4,k}$ (mol/sec Pa) は両区画の境界表面積 A_k (m²) に比例し、各区画内での化合物の移動速度 k_4 , k_k (m/sec) と各区画の化合物保有能 Z_4 , Z_k (mol/Pa m³) から $1/D_{4,k} = 1/k_4 A_k Z_4 + 1/k_k A_k Z_k$ で決定できる。ここで気中化合物の速度 k_4 は換気率 G と部屋の長さ L_4 から $k_4 = GL_4$ で、内装材中の化合物の移動速度 k_k は内装材中の化合物の拡散定数 D_k と経過時間 t から $k_k = (D_k/t)^{0.5}$ で求めることができる。同様に、粒子と空気間の拡散定数 $D_{i,4}$ は両区画の境界表面積 πd_i^2 に比例し、各区画の化合物保有能 Z_i と Z_4 、粒子内の化合物の移動速度 k_i と粒子落下速度 v_i ならびに空気中の化合物の移動速度 k_4 から $1/D_{i,4} = 1/k_i \pi d_i^2 Z_i + 1/(v_i + k_4) \pi d_i^2 Z_4$ で決定される。なお、粒子内の化合物の移動速度 k_i は気中の化合物速度 k_4 の 100 分の 1 とした¹⁸⁾。

5. 化合物の物質収支方程式

以上のようにして化合物の室内挙動を詳細に解析し、化合物の物質収支を Fugacity を用いて表現すると、Fig. 4 に示す圧力微分方程式となる。すなわち、エアゾール粒子中の fugacity の変化は、空気への拡散、粒子中の化合物の分解と放出されたエアゾール粒子の粒径の変化からなっている。空気中の化合物はエアゾール粒子や内装材への拡散の他、分解、および換気による排出により、その濃度が減少する。内装材中の化合物は空気への拡散、内装材中での分

Fig. 3 The environment to be simulated and its compartments after a space spraying.

Droplets (large, medium, small) :

$$\underbrace{\frac{df_i}{dt} V_i Z_i}_{\text{Fugacity change}} = - \underbrace{D_{i,4} (f_i - f_4)}_{\text{Transference with air}} - \underbrace{K_i f_i V_i Z_i}_{\text{Degradation}} + \underbrace{\frac{\pi}{2} \alpha d_i Z_i}_{\text{Droplet-size change}}$$

Air :

$$\underbrace{\frac{df_4}{dt} V_4 Z_4}_{\text{Fugacity change}} = - \underbrace{\sum_{i=1}^3 n_i D_{i,4} (f_4 - f_i)}_{\text{Transference with droplets}} - \underbrace{\sum_{k=5}^7 D_{4,k} (f_4 - f_k)}_{\text{Transference with room materials}} - \underbrace{(K_4 + G) f_4 V_4 Z_4}_{\text{Degradation} \quad \leftarrow \text{Ventilation}}$$

Room materials (floor, wall, ceiling) :

$$\underbrace{\frac{df_k}{dt} V_k Z_k}_{\text{Fugacity change}} = - \underbrace{D_{4,k} (f_k - f_4)}_{\text{Transference with air}} - \underbrace{K_k f_k V_k Z_k}_{\text{Degradation}} - \underbrace{\sqrt{\frac{D_k}{t}} A_k f_k Z_k}_{\text{Permeation into room materials}} + \underbrace{\sum_{i=1}^3 n_i \frac{V_i}{H_{sl}} f_i V_i Z_i}_{\text{Droplet adherence}}$$

Fig. 4 Fugacity equations describing a space spraying.

Table 1 Methods of estimating exposure levels for applicators (adults).

Inhalation: Air concentration × Breathing rate × Exposure period ÷ Body weight Dermal: Amount rates (Hands + Body) × Sprayed amount ÷ Body weight	
Factor	Value
Breathing rate	16 l/min ¹⁹⁾
Body weight	50 kg
Amount rate on hands	0.233 mg/g sprayed ai ^{a)}
Amount rate on body	0.325 mg/g sprayed ai ^{a)}

a) The values are derived from PHED database²⁰⁾ where the applicator does not wear gloves, but wears a short sleeve shirt and short pants.

解, 内装材への浸み込み, およびエアゾール粒子の内装材への付着が挙動を規定する。Fig. 4 の式の中で f 以外のパラメーターは前述の数式から求めることができるので, この7種の f をコンピューター計算で求めると, 気体状態とエアゾール粒子状態を含む化合物の気中濃度と床, 壁, 天井での残留量を予測できる。なお, 既存モデルは Fig. 4 の数式のうち換気 G しか考慮しておらず, 予測精度が低い原因となっている。

居住者暴露量の推定

1. 散布者の推定暴露量

Table 1 はハエ蚊用エアゾールを散布した時の大人の体重当りの暴露量を見積る方法を示している。二つの暴露経路が考えられ, 吸入暴露量はモデルから予測した散布中の気中濃度と, 散布者の呼吸量, 散布時間および体重から算出できる。経皮暴露量は米国環境保護庁などが開発した PHED (Pesticide Handlers Exposure Database) モデル²⁰⁾ から得た 1 g 散布当たりの手および身体暴露量に, 実散布量をかけ体重で割ることにより求めることができる。

2. 居住者の推定暴露量

居住者の暴露量はその行動様式等の違いから大人と幼児

に分けて見積る (Table 2)。吸入暴露量は, 予測モデルから得た噴霧日の平均気中濃度, 呼吸量, 散布した部屋に居住する時間および体重から推定する。経口暴露はハエ蚊用エアゾール散布により汚染した食器を使用したり, 化合物のついた手を舐めることにより生ずる。食器経由の経口暴露量は食器の残留量と使用量から算出するが, 食器残留量は床残留量からある程度推定が可能である。また, 手経由の経口暴露量は身体に付着した化合物のうち手への付着量に関与することから, 経皮暴露量に体表面積に対する手表面積の割合をかけることにより求まる。

経皮暴露量は散布した部屋の家具や床, 壁に接触することにより生ずる。ハエ蚊用エアゾールの場合, エアゾール粒子が床方向へ向かうことから床残留量が最も高いと考えられる。そこで最悪の事態を考慮し, モデルから予測した床残留量を用い, 皮膚付着率, 居住者が床などに接触する面積と体重から経皮暴露量を求めた。なお, 皮膚付着率とは, 化合物で汚染した床などに皮膚が接触した時, 化合物が皮膚に移行する割合を意味する。皮膚付着率は, 居住者が床に接触する圧力と同等の圧力で, 化合物で汚染した床片に手を押しつけたり, デニムの布などで拭き取るなどして, 移行した量と床に残留する量から実験的に求めること

Table 2 Methods of estimating exposure levels for room occupants (adults and infants).

Inhalation: Air concentration×Breathing rate×Exposure period÷Body weight Oral: Amount on dishes×Surface area of dishes used÷Body weight + Dermal exposure×Surface area ratio of hands to whole body Dermal: Amount on floor×Dislodgeable rate ×Contact area of floor and furniture÷Body weight		
Factor	Adult	Infant
Breathing rate (l/min)	11 ^{a)}	2.4 ^{b)}
Body weight (kg)	50	10.2
Exposure period (hr/day)	24	24
Surface area of dish used (m ² /day)	0.212 ^{c)}	0.0685 ^{c)}
Surface area ratio of hands to whole body (%)	— ^{d)}	5 ²³⁾
Contact area of floor and furniture (m ² /day)	4	4 ²⁴⁾

^{a)} Taking account of a resting inhalation rate of 8 l/min²¹⁾ for 16 hr/day and an active inhalation rate of 16 l/min¹⁹⁾ for 8 hr/day, the breathing rate for a typical Japanese adult is 11 hr/day. ^{b)} Taking account of a resting inhalation rate of 1.5 l/min²²⁾ for 16 hr/day and an active inhalation rate of 4.2 l/min²²⁾ for 8 hr/day, the breathing rate for an infant is 2.4 l/min.

^{c)} The surface area of the dishes used in one day was calculated to be 0.212 m² for an adult based on the use of three 7-cm-diameter cups, six 15-cm- and three 20-cm-diameter dishes, and 0.0685 m² for a child based on the use of three 7-cm-diameter cups, one 15-cm- and five 10-cm-diameter dishes. ^{d)} Adults are not considered to be exposed by hand-to-mouth activities.

ができる。

3. 安全係数の算出

InPest は推定した暴露量と毒性試験から得た無影響量を比較し、安全係数：MOS(=無影響量/暴露量)まで自動的に算出する。居住者は吸入、経皮、経口経路から、また、大人は居住時のみならず散布時にも暴露する可能性がある。最終的には合計 MOS 等の形で安全係数が算出される。すなわち、合計 MOS は 1/合計 MOS=1/吸入 MOS+1/経皮 MOS+1/経口 MOS で、大人の場合は更に散布時と居住時の MOS を用いて 1/大人 MOS=1/散布時 MOS+1/居住時 MOS で算出する。

InPest のコンピューター上のスクリーンイメージ

InPest は *Microsoft-Windows* を使ってユーザーフレンドリーなソフトとして作成されており、Fig. 5 にコンピューター上のスクリーンイメージを示している。まず最初に散布シナリオを入力する。散布方法としては空間噴霧、液体蚊取り、床全域噴霧、直撃噴霧、残留噴霧の五つがあり、床材質はフローリングの他カーペットや畳を選ぶことができる。また製品はオイルベースか水ベースか、窓は常時閉め切るか散布後に開放するかといったオプションの他、散布者や居住者がアジア人か欧米人かを決定する。次に「2. 有効成分の無影響量」を入力する。「3. 室内環境条件」では部屋の大きさ、換気率、室温の他、製品が水ベースの場合湿度を入力する。「4. 散布条件」では「1. 散布シナリオ」でハエ蚊用エアゾールを選んでいるため、製品中の有効成分含量とエアゾールからの放出量、散布時間と散布する高

さを入力する。最後の入力画面が「5. 有効成分の物理化学的性質」で、入力項目は分子量、蒸気圧、水溶解度、オクタノール/水分配係数である。

入力が終了すると、コンピューター計算が始まり数分後に Fig. 5 に示した予測気中濃度のグラフと、1 日の平均値と最高値ならびに床、壁、天井での予測残留推移と床平均残留量が現れる。最後の出力画面が安全係数で、吸入・経皮・経口および合計安全係数、大人の散布時、居住時、散布しかつ居住したときおよび幼児居住時の安全係数を知ることができる。なお、図中の□で囲まれた数値が大人および幼児の最悪暴露時の安全係数を意味している。

InPest の予測精度

Fig. 6 はネオピナミンフォルテを含有するハエ蚊用エアゾールを噴霧し、部屋の換気率を変えて予測した結果を実測値と比較したものである。予測値は実測値と高い一致性を示しており、換気率が大きくなるほど気中濃度が減少している。Fig. 7 はネオピナミンフォルテを含有するハエ蚊用エアゾールを、窓を常時閉め切った換気率 1.6 回/時間と散布 5 分後に 5 分間または 2 時間窓を開放した場合の経時変化を示している。予測値は実測値とよくあっており、窓開放により気中濃度も床残留量も低下している。天井の残留量は 2 時間の窓開放により増大しているが、これは室内空気の流れ k_4 が速くなり、室内空気 (4) から天井 (7) への拡散 $D_{4,7}$ が増大するためである。

Fig. 8 は *InPest* の予測値と文献²⁵⁾ から引用した実測値を比較したものである。左図は部屋を締め切った状態でハ

Fig. 5 Some input and output images in *InPest* model.

Fig. 6 Comparison between measured (closed circles, triangles and squares)⁶⁾ and estimated values by using *InPest* (lines) at three kinds of air exchange rates. Time-dependent concentrations of *d*-tetramethrin in the air (left graph) and the amounts on room materials (right graph) are derived by a space spraying simulation in a room at air exchange rates of 0.5, 1.6 and 4.1/hr.

Fig. 7 Comparison between measured (closed circles, triangles and squares)⁶⁾ and estimated values by using *InPest* (lines) when the windows are opened or kept closed. Time-dependent concentrations of *d*-tetramethrin in the air (left graph) and the amounts on room materials (right graph) are derived by a space spraying simulation in a room when the windows are opened for 5 min or for 2 hr from 5 min post-application, or kept closed at the air exchange rate of 1.6/hr.

Fig. 8 Comparison between measured (closed circles)²⁵⁾ and estimated concentrations in the air by using *InPest* (solid lines). Time-dependent concentrations of fenitrothion in the air (left graph) are calculated by a space spraying simulation when the windows are kept closed.¹⁰⁾ Time-dependent concentrations of *d*-allethrin in the air (right graph) are also derived by a simulation describing use of an electric vaporizer, which heats and releases *d*-allethrin in a vaporizer liquid, continuously for 6 hr.¹³⁾

Fig. 9 Comparison between measured (closed circles)²²⁾ and estimated values by using *InPest* (solid lines) after a broadcast spraying. Time-dependent concentrations of chlorpyrifos in the air (left graph) and the amounts on the floor (right graph) are calculated by a broadcast spraying simulation where a water-based emulsion containing chlorpyrifos is uniformly applied on a carpet floor.¹⁴⁾

Fig. 10 Comparison between measured (closed circles, triangle and open circle)¹⁵⁾ and estimated values by using *InPest* (solid lines) after a residual spraying. Time-dependent concentrations of phenothrin in the air (left graph) and the amounts on room materials (right graph) are calculated by a residual spraying simulation where a residual aerosol is sprayed in the four corners of a room at 10 cm × (3.6 m + 2.7 m) × 4 for a total of 2.5 min.

エ蚊用エアゾールとしてスミチオン (fenitrothion, C₉H₁₂NO₅PS) を使用したときの気中濃度で、散布後の気中濃度推移がネオピナミンフォルテと若干異なり、散布直後の減衰に時間を要している。これはスミチオンの蒸気圧がネオピナミンに比べ高いこと、および換気率が0.58 回/時間と低いことに起因している。Fig. 8 の右図はピナミンフォルテ (*d*-allethrin, C₁₉H₂₆O₃) を含有する液体蚊取りの気中濃度で、6 時間の通電を終えると気中濃度が減少している。いずれの場合とも予測値は実測値とよくあっている。

Fig. 9 はクロルピリフォス (chlorpyrifos, C₉H₁₁Cl₃NO₃-PS) 含有 EC 剤を水で希釈した後カーペット全域に噴霧し、噴霧後窓を 2 時間開放した場合の気中濃度と床残留量を予測したもので、予測値は実測値²²⁾ とよく合致している。気中濃度が散布 5 時間後に最高値となっているが、これは散布したクロルピリフォス希釈液の性質が大きく変化したためである。つまり、EC 剤中にはクロルピリフォスが水とよく混合するように xylene が入っているが、散布 5 時間後に xylene がほとんど蒸発して散布液の化合物保有能 *Z* が低下し、結果としてクロルピリフォスが気中へより多く拡散したものと考えられる。

スミスリン (*d*-phenothrin, C₂₃H₂₆O₃) を含有するゴキブリ用エアゾールを部屋の四隅に 2.5 分間噴霧したときの気中濃度と残留量の予測値と実測値¹⁵⁾ は Fig. 10 のとおりで、噴霧箇所が内装材の中で最も高濃度で、次いで床残留量が高くなっている。これは部屋の四隅に噴霧したエアゾールが跳ね返り粒子となって気中に漂った後、主に床に落下したためである。以上述べてきたように今回開発した *InPest* は気中・床等での予測濃度値が有機リン系からピレスロイド系に至る広範囲の化合物で実測値とよく一致することから、高い汎用性を持っていると考えられる。

要 約

InPest の開発に当たりまず、粒子動態や蒸発定理、流体力学を用いた化合物および製剤の挙動を詳細に解明した。次いで内装材の性質や温湿度変化など室内環境要因を物理化学式で表現し、区画の体積や化合物保有能の経時的な変化に対応できるよう Fugacity モデルを発展させた。さらに、挙動予測値から散布者や居住者の暴露量を推定する手法を確立した。このようにして得た *InPest* は殺虫剤の分子量、蒸気圧、水溶解度、オクタノール/水分配係数と無影響量を入力することで、殺虫剤の種類 (有機リン系・ピレスロイド系)、散布方法 (空間噴霧、液体蚊取り、床全域噴霧、直撃噴霧、残留噴霧)、製品の剤型 (オイルベース・水ベース)、床材質 (フローリング・カーペット・畳)、換気率、温度および湿度のいずれが変化しても、諸条件下で散布者および居住者のリスクアセスメントができる汎用性のあるモデルとなった。なお、当該室内挙動予測手法は、化学物質の同様な挙動予測への適用が可能である。

本研究を行うにあたり、終始ご支援を賜った住友化学工業 (株) 生物環境科学研究所の山根節夫所長に、心から感謝の意を表します。

引 用 文 献

- 1) 勝田純郎: 家庭用殺虫剤概論, 日本殺虫剤工業界, p. 1, 1991
- 2) 栗原雄司: 家庭用殺虫剤概論, 日本殺虫剤工業界, p. 66, 1991
- 3) M.P. van Veen: "CONSEXPO: A Program to Estimate Consumer Product Exposure and Uptake," National Institute of Public Health and Environmental Protection Bilthoven, 1995
- 4) Versar Inc.: "Screening-Level Consumer Inhalation Expo-

- sure Software (SCIES): Description and User's Manual Version 3.0," U.S. EPA, 1992
- 5) GEOMET Technologies, Inc.: "MCCEM: Multi-Chamber Concentration and Exposure Model," U.S. EPA, 1995
 - 6) Y. Matoba, Y. Takimoto & T. Kato: *AIHA J.* **59**, 181 (1998)
 - 7) 的場好英・大西純一・松尾昌季: 住友化学 1997-I 技術誌, 住友化学工業株式会社, pp. 49-60, 1997
 - 8) D. Mackay & S. Paterson: *Environ. Sci. Technol.* **16**, 654A (1982)
 - 9) D. Mackay: *Environ. Sci. Technol.* **13**, 1218 (1979)
 - 10) Y. Matoba, J. Ohnishi & M. Matsuo: *Chemosphere* **26**, 1167 (1993)
 - 11) Y. Matoba, J. Ohnishi & M. Matsuo: *Chemosphere* **30**, 933 (1995)
 - 12) Y. Matoba, T. Hirota, J. Ohnishi N. Mikami, & M. Matsuo: *Chemosphere* **28**, 435 (1994)
 - 13) Y. Matoba, J. Ohnishi & M. Matsuo: *Chemosphere* **28**, 767 (1994)
 - 14) Y. Matoba, J. Ohnishi & M. Matsuo: *Chemosphere* **30**, 345 (1995)
 - 15) Y. Matoba, Y. Takimoto & T. Kato: *AIHA J.* **59**, 191 (1998)
 - 16) W.C. Hinds: "Aerosol Technology," Wiley Interscience, 1982
 - 17) L. Lapcik & J. Panak: *J. Polym. Sci.* **14**, 981 (1976)
 - 18) D. Mackay, S. Paterson, B. Cheung & W.B. Neely: *Chemosphere* **14**, 335 (1985)
 - 19) 日本産業衛生学会: 産業医学 **23**, 577 (1981)
 - 20) Versar Inc.: "The Insecticide Handlers Exposure Database," Health Canada, U.S. EPA, American Crop Protection Association, 1995
 - 21) 岡本彰祐・坪井 実・岡本歌子: 新生理学 (形態と機能), 講談社サイエンティフィック, p. 151, 1984
 - 22) J.R. Vaccaro: "Insecticide in Urban Environments: Fate and Significance (ACS Symposium Series 522)," American Chemical Society, pp. 297-306, 1993
 - 23) V.C. Vaughan, R.J. Mackay & W.E. Nelson: "Textbook of Pediatrics," p. 1876, 1975
 - 24) Environmental Protection Agency: "Methodologies for Assessing Residential Exposure to Insecticides (EPA 736-S-94-0001)," EPA, 1994
 - 25) 東京都生活文化局消費者部: 家庭用殺虫剤等の室内における挙動調査報告書, 1991