

図4 ホルムアルデヒド平衡到達時間調査結果

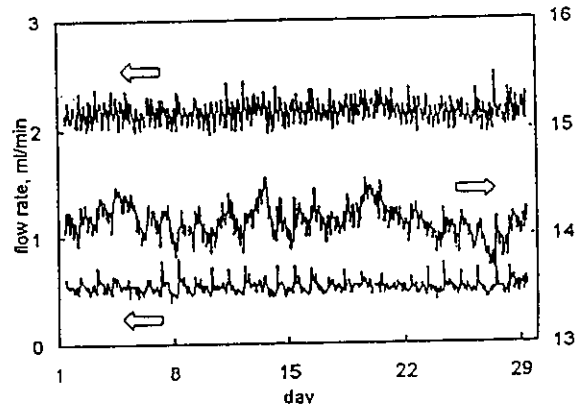


図5 サンプルング流速の変動試験

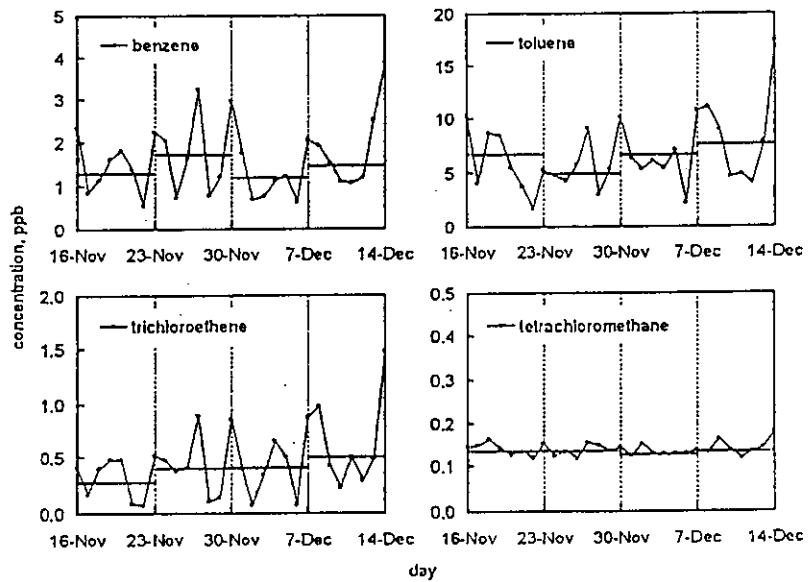


図6 大気中の揮発性有機化合物(VOCs)の日内変動
(1日と1週間サンプルングの測定結果)

表3 VOCsの測定対象成分

化学物質名		
脂 肪 族 炭 化 水 素	n-Hexane	
	n-Heptane	
	n-Octane	
	n-Nonane	
	n-Decane	
	n-Undecane	
	n-Dodecane	
	n-Tridecane	
	n-Tetradecane	
	n-Pentadecane	
	n-Hexadecane	
	2,4-Dimethylpentane	
	2,2,4-Trimethylpentane	
	芳香 族炭 化水 素	Benzene
		Toluene
		m,p-Xylene
o-Xylene		
Stylene		
1,2,3-Tirimethylbenzene		
1,2,4-Trimethylbenzene		
1,3,5-Trimethylbenzebe		
1,2,4,5-Tetramethylbenzene		
Ethylbenzene		
ハ ロ ゲ ン 類	Chloroform	
	1,1,1-Trichloroethane	
	Carbontetrachloride	
	Trichloroethylene	
	Tetrachloroethylene	
	Dichloromethane	
	1,2-Dichloroethane	
	1,2-Dichloropropane	
	Dibromocholoromethane	
	p-Dichlorobenzene	
エス テル類	Ethyl acatate	
	Buthyl acetate	
アル デヒド 類	n-Nonanal	
	n-Decanal	
	Acetone	
	Methylethylketone	
アルコール 類	Methylisobuthylketone	
	Ethanol	
テルペン 類	Buthanol	
	α-Pinene	
	Limonene	

D. 考察

(1) HCHO分析法の検討

DNPH-カートリッジ捕集、アセトニトリル溶出、HPLC法による分析法は世界的に認知(EPA-method, ISO原案、ASTM, 環境庁有害物質測定マニュアル)されている方法である。本研究においてもこれらを参考に捕集効率、再現性試験、定量下限値、NO₂及びO₃の影響試験等を行った。その結果、室内環境内のHCHOを測定する場合、DNPH捕集管は1本で十分であることがわかった。また、30L採気の定量下限値は3ppbで、ガイドライン値(80ppb)の1/10以下の感度をもっていた。同一濃度(0.1ppm)の繰り返し精度は変動係数で3%以下で測定精度も高いことがわかった。室内環境内ではオゾンの発生源は存在しにくいだが、例えば、コピー機や電気集塵機が近くにある場合、或いは夏季で外気中のオゾンが室内に侵入する恐れがある場合はオゾンスクラバーを装着してサンプリングする必要がある。

一方、室内環境内で存在する程度のNO₂濃度(0.2ppm)では、本法のDNPH-カートリッジ法は妨害を考慮する必要はないと考える。

(2) HCHOサンプリング方法の検討

室内HCHO濃度が最高値を示す場合はいくつか条件がある。例えば、1日の内でも気温が上昇する正午前後、季節的には気温の上昇する夏季である。本研究では最高濃度を求める手法の確立を目的として基礎的検討を行った。

室内最高濃度の出現(平衡到達時間)は換気回数や建材の種類等、種々の環境因子に影響されるものと思われる。今回は換気回数0.2-0.7回程度の室内で調査を行ったが、3-16時間程度、平衡濃度に達するまで時間を要した。また、同程度の換気回数の部屋でも到達時間が異なった。よって、今後、更に、試料数を増やして検討を行う必要がある。

(3) VOCs分析法の検討

1) 固体捕集-加熱脱着-GC/MS法

微量流速サンプリング、加熱脱着-GC/MS法を検討し、1週間単位の長期捕集、加熱脱着-GC/MSを確立した。本法を用いて1日サンプリング及び1週間連続サンプリングを同時に行い、分析を行った結果、1日平均値の1週間平均値と1週間連続サンプリングの測定値がほぼ一致することが明らかになった。このことにより1週間連続サンプリングの実用性が立証された。今後、このサンプリング方法を発展させることにより、長期期間の個人暴露量測定への適用が可能となる。

2) 固体捕集-溶媒抽出-GC/MS法

活性炭捕集-溶媒抽出-GC/MS法は高価なサンプリング装置及び分析装置もいらない汎用性のある分析法であると考えられる。

しかし、この方法の低濃度領域に関する基礎的検討は行われていない。そこで、本研究においては、捕集効率、回収率、回収率に及ぼす湿度の影響、除湿管のVOCsの吸着試験等の基礎的検討を行った。その結果、

過塩素酸マグネシウムを充填した除湿管はVOCsの吸着の無いことが判明した。また、VOCs 44成分の添加回収実験を行った結果、1成分(スチレン)のみが、30%以下の回収率を示し、他の成分は70%以上の回収率であった。また、44成分の平均回収率は85%であった。湿度を含んだ

(30-70%)通気回収率は添加回収率（無通気回収率）に比較し回収率は低い。このことは、若干破過が起きている可能性はある。一方、湿度が30-70%と高くなっても平均回収率は変化しなかった。

E. 結論

(1) HCHO分析法（サンプリング法）

室内環境内におけるHCHOの標準分析法を確立した。また、サンプリング方法については、次年度、引き続いて検討する予定であるが、初年度案として測定対象家屋の平衡到達時間は16時間とした。具体的には、測定対象家屋の窓、とびら等を19:30から20:0までの30分間全て開け換気を行う。ついで、開放部分を全て閉じ、20時から翌日の12時まで密閉状態で放置する。ついで、12時から30分間部屋の空気をサンプリングし、分析を行う。この測定値はこの時期における室内の最高濃度を示すことになる。この測定値をガイドライン値と比較し室内濃度を評価する。

(2) VOCs分析法

mass flow controllerと湿式ガスメーターを用いた長時間捕集-加熱脱着-GC/MS法を検討した。その結果、1日毎の測定値の平均値と1週間の連続測定値が一致することを確認した。このことは1週間連続捕集が可能であることを実証するものである。よって、本捕集法は長期間の個人暴露量の測定に適用可能である。

活性炭捕集-溶媒抽出-GC/MS法の基礎的検討を行った。その結果、除湿管の有効性が確認された。また、添加回収率は1物質が30%以下で、その他は70%以上で平均回収率は85%であった。更に、湿度を含んだ通気回収率は30-70%の範囲で回収率には差は認められなかった。但し、無通気の添加回収率に比べて低い値を示していた。この辺の問題は次年度に詳細に検討する予定である。

V. 結 論

結 論

生活環境中に多くの化学物質が利用され、その結果、室内空気中にも化学物質が多く存在し、これらの暴露と疾病との関連性が社会的に多く取り上げられている。そこで本研究ではとそれら化学物質と疾病との関連性を明らかにするため、Ⅰ.ホルムアルデヒドの臨床、生物学的免疫学基礎研究、Ⅱ.室内空気中化学物質が起因とされる疾病の臨床病理学的研究、Ⅲ.居住環境空気、オフィスビルにおける空気環境空気中化学物質の存在状況、防蟻剤の存在状況等について、Ⅳ.化学物質と疾病に関連する行政的対応に関する研究の4つにテーマを7つの分担研究に分けて実施した。

Ⅰ. 室内空気中化学物質の免疫系に対する影響評価に関する基礎的研究では、ホルムアルデヒドの臨床免疫学に係わる臨床及び生物学的面から発症メカニズムに関する基礎的研究を行った。

(1) 小児気管支喘息患者におけるホルムアルデヒド特異IgE抗体保有率に関する検討では、ホルムアルデヒドがIgE抗体産生に対して促進的に作用するという興味深い報告がなされているが、ホルムアルデヒドの免疫修飾作用が喘息罹患率の増加の一因となっている可能性が示唆される。

(2) ホルムアルデヒド暴露によるアレルギー反応に対する影響では、HCHOの前処理はI型アレルギーの感作誘導を増強するが、IV型アレルギーの感作誘導には影響しないと結論した。

(3) リポ多糖体吸入曝露後のラット気道におけるホルムアルデヒドの惹起性では、LPS曝露が内蔵知覚神経の機能を障害する可能性を示唆された。

(4) 室内空気化学物質の吸入実験装置の開発では、ホルムアルデヒドの吸入チャンバーが開発でき、これによって生物を用いた吸入暴露実験が可能となった。

Ⅱ. 室内空気中化学物質が起因とされる疾病の臨床病理学的研究では、化学物質過敏症患者は以上の他覚的研究から本症が存在することは明らかである。今後これらの患者に出来るだけ早く救済の道をつけてやるのが現代社会における重要な命題である。特に対策の取りやすいシックハウスに関連する問題はEnvironmental Control Unitの如きものを国レベルでつくり、診断、治療面で早急に解決すべきで問題であると考えられる。

Ⅲ. 室内空気中の化学物質が起因とされる疾患と化学物質の関連性に関する研究では、空気中化学物質の存在状況とその発生機構に関する研究として、居住環境、オフィスビル及び室内で注目される防蟻剤の分担研究について検討した。

(1) 居住環境の室内空気中の化学物質に関する研究では、ビニルクロス等の内装材中に可塑剤や難燃防止剤等の目的で使用されている有機リン酸エステル類が確認された。これら化学物質は沸点が高いSVOCやPOMに属するが、室内にガス状物質として放散してくるものと思われ、今後監視していく必要があることが示唆された。

一方、VOCsはトルエン、キシレン、デカン類、それから木材由来の α -ピネン、リモネン等が濃度が高い傾向を示していた。また、TVOCはトルエン換算で平均(40時間平均) $3.9\text{mg}/\text{m}^3$ を示していた。

アルデヒド類はHCHOの他にアセトアルデヒドやベンズアルデヒドの濃度が高い傾向を示

した。アセトアルデヒドの高い原因として、一部、接着剤にアセトアルデヒドが使用されていることからHCHOと同様、合板等からの放散も考えられる。

(2) オフィスビルにおける空気環境中化学物質の存在状況では、トータルVOCsレベルは数 $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ ～数 $1,000\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、ホルムアルデヒドは数 $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ 前後であり、発生源と思われる室内材および都心部の外気による影響と思われる比較的高濃度が確認された。

(3) 防蟻、防虫剤による室内化学物質汚染の現状と対策に関する調査研究では、シロアリの被害の概要、化学的防除処理（使用薬剤、施行量、施行法）の実態について整理できた。また、室内濃度構成要因について明らかにできた。

IV. 健康影響と室内化学物質行政対応に関する基礎的研究では、健康影響と室内空気中化学物質対策として、患者からの愁訴に対する行政上の情報汲み上げシステムと緊急対策としての居住環境でホルムアルデヒド及びVOCsの試料採取方法と測定方法の確立を行った。

(1) 公衆衛生学的立場からみた化学物質過敏症については、室内空気に係わる疾病を持つ患者は、疾病の多様性のため、その解決する道筋が確立していない。しかしながら、病院その他のいずれの機関でも次の解決への方向付けについては確立されておらず、その体制の確立が必要である。

(2) 室内空気中化学物質の測定方法に関する研究では、

1) HCHO分析法（サンプリング法）

室内環境内におけるHCHOの標準分析法を確立した。

サンプリング方法は、測定対象家屋の窓、とびら等を19:30から20:00までの30分間全て開け換気を行う。ついで、開放部分を全て閉じ、20時から翌日の12時まで密閉状態で放置する。ついで、12時から30分間部屋の空気をサンプリングし、分析を行う。この測定値はこの時期における室内の最高濃度を示すことになる。この測定値をガイドライン値と比較し室内濃度を評価する。

2) VOCs分析法

VOCs測定に際して種々の検討の結果、長期間による捕集方法や測定方法が確立できた。

本年度は、上記の4つのテーマについて研究を進めたが、本研究は発生源、生活様式、ヒトの行動パターン、ヒトの感受性、診断マニュアルの共通化、存在状況、寄与化学物質類の推定、分析方法の確立、全国規模での測定体制、これら情報の集約等、来年度はこれらをさらに推進していく考えである。