

200501229 B

厚生労働科学研究費補助金 健康科学総合研究事業

# 建築物における環境衛生管理に関する研究

平成15年度～平成17年度

総合研究報告書

平成18年（2006年）3月

主任研究者

財団法人 ビル管理教育センター

目黒 克己

厚生労働科学研究費補助金（健康科学総合研究事業）

建築物における環境衛生管理に関する研究

総合研究報告書

目 次

研究要旨	.....	1
資料 1	.....	3
資料 2	.....	1 3 7
資料 3	.....	2 1 9

建築物における環境衛生管理に関する研究

総合研究報告書

主任研究者 目黒 克己 財団法人ビル管理教育センター理事長

研究要旨

建築物内における環境衛生管理に関する調査として、特定建築物における微小粒子や化学物質等の実態並びに評価方法の検討、給水用防錆剤（以下、防錆剤）の使用や指導実態の把握、循環式浴槽の維持管理手法の検討を目的とした。

汚染物質の測定方法を検討し、実際の特定建築物において精密調査及び全国5都市における簡易調査、受動喫煙対策による汚染物質の環境影響を評価した。防錆剤の使用に関する行政への届出状況調査および使用施設への聞き取り調査を実施し、実態を把握した。内視鏡を用いて循環配管内の生物膜の付着状況を観察し、配管内洗浄の効果を確認した。循環ろ過器を適正に評価するために流速とろ過層厚の基準値を算定した。さらに、浴槽水の残留塩素濃度を適正に評価するために種々の測定方法について検証した。

空調時（建築物の通常使用時）の粒子状物質および化学物質は低濃度であった。粒子状物質の最頻粒径や挙動は外気影響も受けるが、季節間による差もあると考える。化学物質はアルデヒド類等で建築物衛生法の基準値を上回る例もあった。また、喫煙による居住環境は基準値を脅かすものではなかった。防錆剤使用の届出内容等には地方自治体間で温度差が見られた。本調査における特定建築物での防錆剤の使用例は非常に少なかったものの、半恒久的使用等誤った使用が見受けられた。内視鏡観察の結果、配管洗浄後1年経過でも生物膜の付着が見られ、化学的洗浄により剥離した。循環の流速(LV)が速いとろ過器内のろ材を撒き上げてしまうことから、適正な条件としてろ過層厚600mmでLV=40、400mmでLV=35が判明した。現在、使用されているDPD法等の残留塩素測定法はpHやアンモニウムイオンの影響により適正に評価できない条件もあることが判明した。

特定建築物の空気質は適切な空調の稼働により、管理基準や指針値の超過はほぼ見られなかった。今後、粒径別の個数濃度と質量濃度の関係を見出すにはデータの蓄積が必要である。建築物環境衛生行政で活用してもらうために防錆剤の適切な使用を目的とした管理マニュアルを作成した。循環式浴槽は使用等に伴い、配管内に生物膜が付着するため定期的な洗浄が必要である。ろ過機能を発揮するためにも今回得られた条件による運転が望ましい。残留塩素の誤発色等の問題もあり、管理する浴槽の水質の把握が重要である。

【分担研究者】

池田 耕一（国立保健医療科学院建築衛生部長）

紀谷 文樹（神奈川大学工学部教授）

藤井 修二（東京工業大学大学院情報理工学研究科教授）

## 【研究課題】

各研究テーマにおける課題は以下とした。その研究成果については資料中に示す。

### 室内エアロゾルの性状とその評価方法に関する研究（資料1）

特定建築物内の空気質に関する文献調査  
粒子状物質及び化学物質の測定方法の検討  
室内環境中における粒子状物質及び化学物質の実態調査  
エアロゾルの健康影響  
室内測定方法の特性と汚染物質の発生源  
アスベスト関連調査  
特定建築物における粒子状物質と化学物質の実測調査  
パッシブ法を用いた化学物質測定  
受動喫煙防止対策の観点からの実測調査  
室内環境の測定精度の考察 等

### 建築物における給水用防錆剤の使用等に関する実態調査（資料2）

給水用防錆剤の届出状況等に関する調査  
給水用防錆剤を使用する特定建築物の取扱い状況等に関する調査  
給水用防錆剤を製造・販売業者への取扱い状況に関する調査  
国内外の給水用防錆剤に関する文献調査  
給水用防錆剤管理責任者のためのマニュアル作成 等

### 循環式浴槽の維持管理手法に関する検討（資料3）

微生物によるバイオフィーム形成とその機序  
循環ろ過器による水質の影響  
循環浴槽システムに生成するバイオフィームの発生抑制実験  
循環ろ過式浴槽の生物浄化槽の細菌構成  
社会福祉施設の浴槽水調査  
ろ過循環系の過酸化水素洗浄調査  
残留塩素測定等に関する文献調査  
残留塩素濃度測定法の特性評価  
レジオネラ属菌の迅速検出法に関する検討  
レジオネラ属菌検査用培地の性能評価  
宮崎県日向市、鹿児島県東郷町の温泉施設の衛生管理方法 等

## 資料 1

室内エアロゾルの性状とその評価方法に関する研究

## 資料 1. 室内エアロゾルの性状とその評価方法に関する研究

### 研究分担者および協力者

- ・池田耕一（国立保健医療科学院建築衛生部）
- ・藤井修二（東京工業大学大学院情報理工学研究科）
- ・相澤好治（北里大学医学部）
- ・池尻康孝（福岡市保健福祉局生活衛生部生活課）
- ・一条和夫（リオン㈱技術統括部）
- ・遠藤 潔（愛知県健康福祉部）
- ・鍵 直樹（国立保健医療科学院建築衛生部）
- ・北角 彰（大阪府環境衛生課）
- ・小山博巳（柴田科学㈱研究開発部）
- ・坂下一則（東京都福祉保健局健康安全室環境水道課ビル衛生検査係）
- ・高貝健治（東京都健康局）
- ・竹田菊男（㈱住化分析センター千葉事業所）
- ・垂水弘夫（金沢工業大学建築系）
- ・並木則和（金沢大学工学部物質化学工学科）
- ・西村直也（芝浦工業大学工学部建築学科）
- ・本間克典（東京ダイレック㈱）
- ・明星敏彦（（独）産業医学総合研究所人間工学特性研究部）
- ・柳 宇（国立保健医療科学院建築衛生部）
- ・山田繁晴（札幌市保健福祉局）
- ・横山辰巳（日本カマックス㈱環境計測事業）
- ・工藤雄一郎（北里大学医学部）
- ・田中毅弘（東京工業大学）
- ・榎木文行（大阪府茨木保健所生活衛生室環境衛生課）
- ・長谷川あゆみ（㈱住化分析センター環境技術センター）

### A. 研究目的

居室内における粒子状物質について、建物における衛生的環境の確保に関する法律では、相対沈降径が概ね  $10\mu\text{m}$  以下の粒子を浮遊粉じんとして定義し、重量濃度により規制が行われている。また、特定建築物内における浮遊粉じん濃度の不適率は、建築物環境衛生管理者の適正な維持管理や、空気清浄技術の高度化及び分煙対策の普及等から昭和 52 年の全国平均 21.9% に比べ平成 12 年は 2.2% と低減している。

しかし、近年になり人体に影響のある粒子径は、 $2.5\mu\text{m}$  程度の微粒子であるとの報告があり、大気環境では PM2.5 と呼ばれる  $2.5\mu\text{m}$  以下の微粒子を対象とした重量濃度による評価が行われている。さらに、アレルギー等の問題から居室内に浮遊する真菌やカビ等の影響、化学物質過敏症の観点からホルムアルデヒドや揮発性有機化合物(VOC)について問題視されてきている。このような背景にもかかわらず、建築物衛生法における空気清浄に関する項目は、 $10\mu\text{m}$  以下の浮遊粉じんの重量濃度、二酸化炭素、一酸化炭素、ホルムア

ルデヒドの4項目に限られている。そこで、今後更なる省エネルギー化対応強化の状況で換気量の抑制による室内空気質の悪化及び室内環境の高度な汚染制御に対応するために、空気環境の現状の把握が重要となる。

平成13～14年度の建築物衛生管理検討会報告書において、「室内粉じんに関しては、形状、粒径、化学組成等の性状や挙動の把握を行った上で、その粉じんの有害性等について化学的知見をふまえて基準値や測定方法の再検討が必要である」と提言されており、健康影響に関する微粒子の重量及び個数濃度分布並びに性状について、現状を把握する必要がある。また、ホルムアルデヒドやVOC等の化学物質についても住宅における実態調査は進んでいるものの、特定建築物に関する調査は少ないのが現状である。

本研究では、このような背景を考慮し、特定建築物における居室内のエアロゾル及び化学物質の発生要因及び性状等の実態を明確にし、健康影響を考慮した上で、適正な評価及び規制方法のあり方等について検討することを目的としている。

## B. 研究の概要

平成15年度の調査研究では、特定建築物の居室のエアロゾルとVOCの計測方法の基本となる項目である実態調査の方法と問題点を把握した。

### (1) 特定建築物内の空気質の文献調査

特定建築物内の粒子状物質及び化学物質の測定事例について調査を行った。

### (2) 測定方法の検討

粒子状物質及び化学物質の測定方法の検討を行い、実態調査への適用について決定した。

### (3) 室内環境中における粒子状物質及び化学物質の実態調査

粒子状物質の実測調査は、測定手法の確認と現場測定の可能性など、問題点の抽出を主たる目的として、対象建物1件について行った。化学物質の実測調査は、測定手法の確認と現場測定の可能性、パッシブ法の有効性など、問題点の抽出を主たる目的として、粒子状物質の測定と併行して対象建物1件について行った。

平成16年度の研究は、平成15年度の結果をふまえて測定法の確認調査のための精密測定による実測調査と、全国的な簡易調査を実施した。また、調査研究の基礎事項であるエアロゾルの健康影響調査及び測定方法の特性と汚染物質の発生源について、以下に区分し調査を行った。

### (1) エアロゾルの健康影響

粒子状物質の健康影響について疫学的見地から呼吸器への沈着、生体の反応、沈着部位の違いによる呼吸器障害について調査した。その他に、粒子状物質の種類と健康影響の関係についても調査を行った。

### (2) 室内測定方法と特性と汚染物質の発生源

測定装置の特性としてパーティクルカウンタ、SMP S及びWater-CNC、WPS、光音響法、パッシブサンプラー、検知管について検討を行った。また、汚染物質の発生源として、粒子状物質及び化学物質の発生源とその化学組成について調査した。

### (3) 精密測定による実測調査

全国4箇所の建物に関する精密測定を行った。粒子濃度については、レーザーパーティ

クルカウンターなどによる空調時、非空調時および外気の濃度測定結果を示したほか、SMPS、WPSなどを用いてナノオーダー粒径粒子の個数濃度把握を行った。また、現在の建築物衛生法で定められている質量濃度の測定に関連して、ローボリュームエアサンプラーによる質量濃度とデジタル粉じん計による平均相対濃度との比率から、各測定対象空間および時間帯による係数値についても検討を行った。ガス状物質については、経時変化のほか、アクティブサンプリングとパッシブサンプリングの比較検討結果も提示した。さらに、粒子組成による解析を試み、屋内と外気との特性比較を行った。

#### (4) 化学物質の全国簡易調査

特定建築物の室内における空気環境の実態把握のために、パッシブサンプラーを用いた全国規模の化学物質の濃度調査を行った。全国5都市（札幌、東京、愛知、大阪、福岡）の約100件の建物について、濃度測定を行うと同時に、建物に関するアンケート調査を行った。結果として、指針値を超過する物件が数例あったが、比較的低濃度となっており、室内に使用されている床材、喫煙の対策、空調設備と室内濃度との関係を明らかにした。

#### (5) 粒子状物質の全国簡易調査

特定建築物における空気環境の実態把握のための全国調査を報告した。全国5都市（札幌、東京、愛知、大阪、福岡）より22建物を選定し、室内外でのSPM、VOC濃度測定、空調換気設備調査を実施した。

平成17年度は、昨年度までの2年間の研究成果をふまえて、アスベストに関する調査、喫煙対策の効果の検討を追加し調査した。

##### (1) アスベスト関連調査

エアロゾルの健康影響の観点から、室内エアロゾルで問題となるアスベストについてその文献調査とその代替品の健康影響について調査した。

##### (2) 特定建築物における粒子状物質と化学物質の実測調査

空調条件、大気条件が異なる季節毎の室内空気環境への影響を中心に検討を行った。

##### a) 粒子状物質及びガス状物質の実測調査

昨年度まで行った測定項目に加え、ガス状物質については、モニター装置の有効性についても検討することとした。

##### b) 粒子状物質の金属組成の測定

粒子の組成について検討することとした。PM2.5カットインパクトを用いて捕集し、カーボンモニターにより分析する。タバコ煙、コピー機からの発じんを同定できる可能性がある。また、シウタスインパクトICP-MS分析も同時に行う。

##### c) 浮遊微生物の測定

居室内の浮遊微生物及び空調機に起因する微生物汚染について検討を行う。

##### (3) 受動喫煙防止対策の観点からの実測調査

事務所建築等で問題となる喫煙対策について喫煙室の実態、喫煙室内外での汚染実態調査を行うこととした。また、居室へのタバコ煙の侵入についても、運用方法、空調システムによる検討を行った。

##### (4) パッシブ法を用いた化学物質の全国追加調査

昨年度の結果について検討を加え、全国調査での濃度超過物件での詳細測定を行った。

## (5) 室内環境の測定精度の考察

VOC等の測定分析では測定の精度が問題となるがその実態は明らかではないため、分析機関の相互比較実験を行い、検討を行った。

## C. 結果

### 1. 15年度の結果

#### 1.1 化学物質測定法文献調査

パッシブ法によるアルデヒド類とVOCs測定の現状を把握するとともに、全国規模の調査におけるパッシブ法の適用について検討を行うために文献調査を行った。

2004年3月の時点でパッシブ法について行った文献調査の結果を中心に述べる。

文献調査の対象は以下に示す通りである。

- ① 日本建築学会学術講演会（2000～2003年）
- ② 空気調和・衛生工学会（2000～2003年）
- ③ 環境化学（1996年～最新版）
- ④ 環境と測定技術（1999年～最新版）
- ⑤ 分析化学（1990年～最新版）
- ⑥ Environmental Science & Technology（2002年～最新版）
- ⑦ 大気環境学会誌（1999年～最新版）
- ⑧ 大気環境学会年会講演要旨（1999年～最新版）
- ⑨ 環境化学討論会講演要旨集（1999年～最新版）
- ⑩ 空気清浄とコンタミネーションコントロール研究大会予稿集（2001～最新版）
- ⑪ 日環協関東支部セミナー要旨集（2002年～最新版）
- ⑫ 室内環境学会誌（2000年～最新版）

#### (1) アルデヒド類

##### 1) 製品名

調査対象論文数は85件があった。製品名について記述のない14件を除いた71件の内訳は、DSD-DNPH（スペルコ製）29件（41%）、パッシブガスチューブ（柴田科学製）14件（20%）、Sep-Pak Xposure（ウォーターズ製）6件（8%）、その他22件（31%）であった。その他のなかにはDNPHサンプラー、純水、TEA溶液などが含まれている。

##### 2) 充填剤

記述のない12件を除いた73件の内訳は、DNPH 55件（75%）、TEA 11件（15%）、その他7件（10%）であった。その他のなかにはTEA、DNPHバイアル瓶、TFBAなどが含まれている。

##### 3) 捕集時間

記述のない16件を除いた69件の内訳は、捕集時間が>24時間3件（4%）、24時間48件（70%）、8時間3件（4%）、その他15件（22%）であった。その他のなかには捕集時間を変えて測定するものが含まれている。また、最も短い捕集時間は30分であるが、DNPH添着量が少ないため分析時の汚染が見られたとされている（No.79）。

##### 4) 抽出方法

記述のない 40 件を除いた 45 件の内訳は、アセトニトリル 36 件 (80%)、溶媒抽出 4 件 (9%)、その他 5 件 (11%) であった。その他のなかにはシクロヘキサン、AHMT、ジクロロメタンなどが含まれている。

#### 5) 測定装置

記述のない 19 件を除いた 66 件の内訳は、HPLC 50 件 (76%)、AHMT 9 件 (14%)、吸光度法 3 件 (5%)、その他 4 件 (5%) であった。その他のなかには GC-MS、アートアナライザなどが含まれている。

#### 6) アクティブ法との比較

調査対象のなかでは、パッシブ法のみならず、アクティブ法も同時に測定し、両方法の比較を行った文献は少なくない。文献 85 件のうち、両方法を同時に用いたのは 26 件 (31%) であった。その 26 件における両方法を比較した結果、両方法の間に相関がよい結果を得たのは 18 件、場合によっては相関が認められなかったのは 2 件であった。その 2 件中の 1 件は高温・多湿環境下では大きな差異が認められたとの報告である (No.70)。もう 1 件は製造者によっては差が認められたとの報告である (No.78)。

### (2) VOCs

#### 1) 製品名

調査対象論文数は 81 件があった。製品名について記述のない 11 件を除いた 70 件の内訳は、自作 20 件 (30%)、パッシブガスチューブ (柴田科学製) 11 件 (16%)、3500 OVM (3M 製) 11 件 (16%)、VOC-SD (スペルコ製) 10 件 (15%)、その他 15 件 (23%) であった。その他のなかには有機ガスモニタ (3M 製)、特注品 (柴田科学) が含まれている。

#### 2) 充填剤

記述のない 18 件を除いた 63 件の内訳は、活性炭 22 件 (35%)、Tenax 13 件 (21%)、カーボン系 8 件 (13%)、その他 20 件 (31%) であった。その他のなかには TEA, carbopackB, カーボンモレキュラーシーブなどが含まれている。

#### 3) 捕集時間

記述のない 13 件を除いた 68 件の内訳は、24 時間 37 件 (54%)、>24 時間 21 件 (31%)、その他 10 件 (15%) であった。その他のなかには捕集時間を変えて測定するものが含まれている。また、サンプラーを用いた測定で捕集時間が最も短いのは 2 時間であった (No.42)。No.42 は同時に行ったアクティブ法との間により相関を示したと報告している。

#### 4) 抽出方法

記述のない 18 件を除いた 63 件について見ると、二硫化炭素による抽出は 31 件と最も多く、ほかに加熱脱離は 15 件、トルエン 10 件、その他 10 件であった。その他のなかには、ジクロロメタン、ガソリンなどがであった。

#### 5) 測定装置

記述のない 17 件を除いた 67 件の内訳は、GC-MS 34 件 (51%)、GC-FID 15 件 (22%)、GC-ECD 10 件 (15%)、その他 8 件 (12%) であった。その他のなかには GC-MS と GC-ECD と GC-MS または GC-FID を同時に用いた報告が含まれている。

#### 6) アクティブ法との比較

文献 81 件のうち、パッシブ法とアクティブ法を同時に用いたのは 12 件 (15%) であっ

た。12件における両方法を比較した結果、両方法の間に相関がよい結果を得られたのは8件、相関が認められなかった3件（No.34,57,74）、製造者によっては差があるのは1件（No.77）であった。

## 1.2 考察

### 1) アルデヒド類

充填剤については、記述のある71件のうちの75%はDNPHであった。このことからDNPHが主流となっていることがわかる。またTEAの15%と併せて全体の90%になっている。充填剤をDNPHとしたサンプラーの製造者はスペルコとウォーターズ、TEAの製造者は柴田科学である。一方、製品名の調査結果ではスペルコとウォーターズの占める割合は49%、柴田科学は20%になっている。このことから、現在用いられているサンプラーの主流はDNPHとTEAであり、その製造者は主として上記の3社であることがわかった。

捕集時間については、24時間が圧倒的に多かった（70%）。これはパッシブサンプラーの捕集特性の面もあるが、殆ど住宅を調査対象としたためである。また、サンプリング時間を変えて研究を行ったものと捕集時間を $\leq 8$ 時間としたものを併せて全体の22%を占める。そのなかにはサンプラーを用いて捕集時間を30分とした試みがなされているものもあるが、まだ研究段階である。

オフィスビルにおける測定を行う場合、室内執務時間の平均状態を把握するとの意味で捕集時間を8時間前後とするのは妥当であると思われる。しかし、今回調査対象文献のなかには捕集時間を8時間とした測定例が僅か3件であった（No.71,75,77）。No.71では学校環境における測定の報告で、アクティブ法と殆ど同じ値を示すものもあれば、低めな値が見られたものもあると報告している。No.75は主としてグルタルアルデヒドについて検討した結果の報告である。No.77はNPOの立場から、市販の3種類パッシブサンプラー（何れもDNPH充填剤）に対するフィールド検証の結果報告である。検証の結果、パッシブサンプラーは8時間あるいは24時間サンプリングでアクティブ法と同等、或いはそれに近い信頼性のあるものとしながら、サンプリング時間による差があったと報告している。

パッシブ法とアクティブ法の比較については、調査対象は26件があり、そのうち場合によっては相関が認められなかったのは2件、高温多湿環境下で大きな差が生じたのは1件（No.70）、製造者によって差があるとしたのは1件（No.78）であった。

### (2) VOCs

充填剤については、調査対象文献のうち充填剤について記述のある63件の69%は活性炭、Tenax、またはカーボン系のものであった。一方、カーボン系の製造者スペルコと活性炭の製造者柴田科学のサンプラーを合わせると48%、自作のTenaxを加えると69%になることがわかった。

捕集時間については、24時間とそれ以上を合わせると全体の85%に達する。これは前記のアルデヒド類と同じように、パッシブサンプラーの捕集特性の面のほか、殆ど住宅を調査対象としたためである。また、サンプラーを用いた測定で捕集時間を8時間以下の報告は5件（8%）があった。そのなかには捕集時間2時間で、パッシブ法とアクティブ法

の間により相関関係が認められたとの報告があった（No.42）。

パッシブ法とアクティブ法の比較については、調査対象は 12 件があり、そのうち相関が認められなかったのは 4 件であった（No.34,57,74,77）。

以上の結果を総合すると、本委員会の次年度実施する予定の全国規模の測定においては、アルデヒド類と VOCs のパッシブ法が適用できると思われる。しかし、文献調査結果に示されているように、製造者や捕集時間による測定値のバラツキが認められた。従って、全国調査を実施する前にフィールドにて数種類のサンプラーと異なる捕集時間による使用可能なサンプラーの種類と適正な捕集時間についての検証が必要である。

### 1.3 まとめ

① パッシブ法はサンプリングにおいて動力を必要とせず、簡便であることから多くの研究に用いられている。

② パッシブ法による測定値の信頼性がサンプリング方法と分析方法に左右される。分析方法はアクティブ法と同様であるが、サンプリング方法においては主として充填剤と捕集時間が重要である。

③ アルデヒド類の充填剤については、DNPH と TEA が全体の 90%に達する。VOCs の充填剤については、カーボン系、活性炭と Tenax を合わせると全体の 69%を占める。

④ アルデヒド類と VOCs の何れについても、パッシブ法のサンプリング時間が 24 時間以上の研究報告が多いが、8 時間とそれ以下の研究報告も見られた。捕集時間 8 時間以下の研究報告を見る限り、パッシブ法と同時に行ったアクティブ法の間により相関関係を示す報告例が比較的が多いが、サンプラーの製造者や捕集時間によるはバラツキが見られた。

⑤ 次年度測定の対象と規模を勘案して、測定を実施する前にフィールドにて使用可能なサンプラーの種類と適正な捕集時間を把握するための検証実験を行う必要がある。

### 1.4. ビル室内空気質の実測

オフィスビルを対象に粒子状物質及び揮発性有機化合物の実測を行った。15 年度は、粒子状物質の質量濃度及び個数濃度、揮発性有機化合物とホルムアルデヒド類のアクティブ法、パッシブ法を用いた測定を行った。今回は空調・非空調時の汚染物質の経時変化を明らかにするため、一部 24 時間の連続測定を行った。測定は、3 月 9 日から 10 日にかけて行った。室内測定は、粒子及びガスの測定に影響を与えないように、事務室中央部でガス測定を、続きの実験室で粒子の測定を行った。外気の測定は、建物南側地上部分で行い、建物自体は、幹線道路に面している。両日とも平日、快晴で、時折強い風があった。

#### 1.4.1 測定結果

##### ①粒子状汚染物質

ローボリュームサンプラ(L-V)、デジタル粉じん計、ピエゾバランス粉じん計の各測定方法により測定値に違いはあるが、これらの装置の測定範囲では同様に、室内よりも外気濃度の方が高い値を示している。重量濃度測定に関しては、ローボリュームサンプラによる

測定値とピエゾバランス粉じん計による平均値は、よく一致していた。また、ピエゾバランス粉じん計により、空調時 1 時間毎の計測を行ったが、概ね 0.01 から 0.02 mg/m<sup>3</sup> と時間による変化を確認することはできなかった。また、デジタル粉じん計による計測値の経時変化では空調時は、5 cpm 前後で変化は認められなかったのに対し、空調を停止した 20 時より増加する傾向となった。また翌日朝の空調運転により急激に減少していることが確認できた。

カスケードインパクトによる測定結果からも、微粒子の存在量が比較的多いことを示している。また、この測定方法によっても、各段の濃度について非空調時のほうが空調時よりも高い値を示しており、特に微小粒子の方がその傾向が顕著となった。

パーティクルカウンタによる測定結果から、非空調時には、徐々に濃度が増加する傾向が現れた。

凝縮核計数器(CPC)による測定結果は、外気は、10<sup>4</sup> p/cc 程度の濃度であるのに対し、空調時の室内については低い値となっている。一方 20 時の空調停止時から室内濃度は徐々に上昇し、外気程度まで高くなる傾向となった。

SMPS-CPC による測定では、空調時・非空調時ともに 1 μm 以下に粒径モード径が存在するが、非空調時の濃度のほうが高くなる傾向となった。

## ②ホルムアルデヒド及び VOC

アクティブ法によるアルデヒド類の測定結果は、夜間に低くなる傾向を得たが、概ね一定であった。同じく、トルエンについては夜間に濃度の上昇が認められたが、外気についても同様の傾向となっており、外気の変動が室内濃度の影響を及ぼしていると考えられる。トルエン、エチルベンゼン、キシレン、スチレン以外の物質については、検出限界以下となっていることが多かった。

パッシブ法は各サンプラーの性能比較を行うため、アルデヒド類については 3 種類、VOC については 4 種類のサンプラーを使用した。室内中の濃度が低かった理由もあり、パッシブ法とアクティブ法では測定結果のオーダーは、概ね一致していたが、アセトアルデヒドについてはパッシブ法の方が低い値の結果となった。また、外気の測定では夜間強風であったため、パッシブ法の定量値は強風の影響をうけている可能性がある。

また、今回は空調・非空調時による濃度の違いを考慮に入れるため、曝露時期を空調時・非空調時に分けた。空調・非空調時のパッシブ法による各物質の濃度とアクティブ法を比較すると、絶対値は異なるが、濃度の高低の傾向はよく一致していた。ただし、各物質により空調時に高くなるもの、非空調時に高くなるものとあり、空調稼動による VOC の影響について今回は確認できなかった。

マルチガスモニタによるホルムアルデヒドと TVOC の連続測定結果は、ホルムアルデヒド濃度値はアクティブ法よりも大きくなった。また、両数値とも若干の変動があり、非空調時の TVOC については低くなる傾向、ホルムアルデヒドについては、高くなる傾向があったが、変化量は少なかった。

## 1.5 15 年度研究のまとめ

本調査研究の初年度は、特定建築物の居室のエアロゾルと VOC の計測方法の基本とな

る項目、実態調査の方法と問題点を把握することとし、以下の結果が得られた。

(1) 特定建築物内の空気質の文献調査

VOC 関連文献の調査結果を報告した。

(2) 測定方法の検討

調査内容より、粒子状物質及び化学物質の測定方法について検討を行い、実態調査への適用について決定することとした。

粒子状物質については、特に粒径  $2.5\mu\text{m}$  以下の微粒子も対象となるため、粒径分布と組成の計測方法について、検討した。実測調査では、従来の浮遊粉じん濃度の測定結果との整合性を取る必要から従来法としてローボリュームエアサンプラー、デジタル粉じん計、ピエゾバランス粉じん計などの手法を取り入れることとした。粒径分布の測定法として、パーティクルカウンタ、SMPSが可能であるため、実測での結果から判断することとした。ただし、パーティクルカウンタは希釈方法と  $0.3\mu\text{m}$  以下の粒子計測、SMPS は価格とアルコールの発生に課題がある。組成測定法には、捕集後に分析する方法が一般的である。カスケードインパクタによる捕集後 XPS, ICP-MS, HPLC, GC などによる分析する方法があるが、いずれも経費と専門技術に課題が残る。カスケードインパクタの調査結果から、事務所での測定機器として、ロープレッシャーインパクタは騒音と大量の捕集空気量が必要なため不相当と判断し、シウタスインパクタを利用することとした。また、捕集粒子を He マイクロ波誘導プラズマ (He-MIP) により測定するパーティクルアナライザがあるが価格と小粒径粒子の測定が不可能な点に課題がある。いずれにしても、粒子組成の分析を含めて多点で調査を実施するには経済的に困難である。

化学物質については、VOC について、厚生労働省により提案されている精密法を対象に行うことを想定し、特定建築物に応用することを検討した。実測調査では、パッシブ法と計器測定法の有効性の検討を主たる目的として、検討した。実測では、精密法、パッシブ法について行うこととした。また、VOC 濃度変動をモニターするため光音響法のガスモニターを参考のため使用した。

(3) 室内環境中における粒子状物質及び化学物質の実態調査

粒子状物質の実測調査は、測定手法の確認と現場測定の可能性など、問題点の抽出を主たる目的として、対象建物 1 件について行った。化学物質の実測調査は、測定手法の確認と現場測定の可能性、パッシブ法の有効性など、問題点の抽出を主たる目的として、粒子状物質の測定と併行して対象建物 1 件について行った。平成 16 年 3 月 8 日から 10 日、三田国際ビルで行った。本年度の実測調査は 1 回であったが、以下のような調査項目が有効と考えられた。測定結果よりの概要は以下のとおりである。

粒子計測では、空調時濃度  $0.008\text{mg}/\text{m}^3$  であり、外気濃度  $0.049\text{mg}/\text{m}^3$  に比べて低濃度を維持していた・個数濃度では、 $0.3\mu\text{m}$  以上の粒子で  $5,000\sim 100,000$  個/L、非空調時  $10,000\sim 300,000$  個/L、外気  $100,000\sim 1,000,000$  個/L でいずれも室内濃度の方が低かった。SMPS による超微粒子の測定では、 $0.08\mu\text{m}$  近辺にピーク粒径を持つ粒径分布が得られ。空調時  $0.5\times 10^7$  個/L、非空調時  $1\sim 3\times 10^7$  個/L、外気  $4\sim 5\times 10^7$  個/L であった。

VOC 計測では、ホルムアルデヒド  $9\sim 13\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、アセトアルデヒド  $8\sim 14\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、トルエン  $17\sim 49\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、エチルベンゼン  $4\sim 8\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、キシレン  $7\sim 17\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、スチレン  $4\sim 12\mu\text{g}/\text{m}^3$

で、いずれも厚生労働省が策定した室内濃度指針値より低く、良い環境値といえる。また、それ以外の物質は、計測されなかった。

## 2. 16年度の結果

### 2.1 文献調査

#### 2.1.1 粒子状物質の発生源

##### (1) 粒子状物質の粒径と組成

粒子状物質は由来の異なる多種類の成分からなり、質量濃度や粒度分布のみでは健康影響は把握できない。Whitby<sup>1)</sup>が提案し、広く知られている大気中の粒子状物質の生成過程の概念では土壌や海塩粒子のような自然起源の粒子は $2\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子に属する。またディーゼルエンジンやボイラーのように化石燃料を燃やした時に生成する黒煙などの燃焼起源の粒子はナノサイズ(核領域)から凝集によって大きくなる、または周囲の炭化水素、硫黄酸化物、窒素酸化物などのガス成分との反応によって二次生成粒子を生じるなどしてサブミクロンサイズの粒子となって安定する(蓄積領域)。この領域の代表的な粒子であるディーゼル排気粒子を例にすると凝集した元素状炭素粒子(すす)を囲むように多環芳香族炭化水素を含む有機物が存在し、さらに燃料に含まれる硫黄酸化物などが吸着している。また硫黄酸化物、窒素酸化物と生物由来のアンモニアなど塩基性ガスもしばしば反応して蓄積領域の粒子を生成する。

このような大気中の粒子状物質について質量基準の粒度分布を測定すると $10\mu\text{m}$ 前後とサブミクロンにピークを持つ二峰性の粒度分布がしばしば観測される。そして二つの峰の間の谷にあたる粒径が $2\mu\text{m}$ 前後である。 $2.5\mu\text{m}$ (正確には50%分離径が $2.5\mu\text{m}$ )以下の粒子を意味するPM2.5はこの燃焼起源(または人為起源の粒子)と自然起源の粒子を分ける便宜的な区切りであり、必ずしも $2.5\mu\text{m}$ でなくてもよく、PM1.0の提案もある。このPM2.5は吸入性粒子(50%分離径が $4\mu\text{m}$ )より小さな粒子からなるので、肺胞部まで到達するが、PM2.5と呼吸器への粒子沈着現象とは直接関係はない。

##### (2) 大気中粒子の発生源

一般環境中の粒子状物質について各発生源の寄与の程度を推定する研究は、レセプターモデルまたはCMB法(Chemical Mass Balance)として80年ごろから米国を中心に広く行われている。わが国でも90年代に各自治体で同様の方法を用いて発生源の推定を行っている<sup>2-11)</sup>。これらの方法では捕集された粒子状物質に含まれる元素や有機物などからその発生源の寄与率を求めるもので、発生源に特異的な元素の量から以下のような式で寄与を推定する。粒子状物質の濃度Cは各発生源からの寄与 $S_j$ の和になると仮定する。

$$C = \sum_{j=1}^P S_j$$

同じく成分iの濃度 $C_i$ も以下のようになるとする。

$$C_i = \sum_{j=1}^P a_{ij} S_j$$

$a_{ij}$  は発生源  $j$  からの寄与のうち成分  $i$  の比率を示す。 $a_{ij}$  が既知で、測定された化学成分の数  $n$  が発生源の数  $P$  と同じかそれ以上であれば、原理的には連立方程式として解いて各寄与  $S_j$  を求めることができる。 $a_{ij}$  として代入すべき発生源のデータの値は測定者ごと、場所ごとに、粒径ごと、また現在は使用されていないガソリン添加剤の鉛のように時代とともに変化する。主要な大気汚染の発生源としては自然発生源（土壌、海塩など）、固定発生源（工場など）、移動発生源（自動車など）、二次生成粒子などがある。また上式の実際的な解法には数種類ある。

各発生源に含まれる化学成分を表 3.2.1 に示す。これは米国 EPA が提供している解析ソフト CMB8 の解説書<sup>7)</sup>に記されたもので、粒径の粗大粒子（ミクロンサイズ）微小粒子（サブミクロンサイズ）について網羅している。ナトリウムは海塩粒子を起源とすることが多く、バナジウムは微量であるが石油燃焼の指標であることが知られている。粒子中の量比としてはシリコンや炭素（有機物）が多い。元素状炭素(EC)と有機物炭素(OC)の量とその比もディーゼル排ガスの寄与などで関心が持たれている。

### (3) 室内粒子の発生源

室内環境では粒子発生源として外気の他に室内で発生する粒子状物質が加わる。たばこ、調理器具、掃除機、コピー機、塗料などが室内での粒子発生源としてあげられる。一般的な住居では微小粒子の 70 から 100%が外気由来といわれている<sup>4)</sup>。

タバコ副流煙には殆ど EC が認められないことから、タバコの影響が高い環境では EC の寄与（外気の寄与）が少なくなると考えられる。喫煙者のいない事務室（在室者有り）で粒子を捕集測定した結果では  $0.25\mu\text{m}$  以下の粒子は炭素分が全粒子量の 80%であり、元素状炭素 EC を少し含んでいる。その他に、粒子中の炭素分として、たばこ副流煙のみでは全炭素量は全粒子量の 60%程度、トナー粒子も 60%前後であった。黒のトナーには数%の EC も認められた<sup>12)</sup>。

### 文献

- 1) Whitby, K.T.,(1978) "The physical characteristics of sulfur aerosols", Atmos. Environ. 12:135-159
- 2) 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル 浮遊粒子物質対策検討会 著(1997)東洋館出版社発行
- 3) 大気環境予測講義 岡本真一 著 ぎょうせい発行(2001)
- 4) 室内空気質のリスク評価 E.L.アンダーソン R.E.アルバート 編 内山巖雄他訳 (2004)アイケイコーポレーション発行, p178
- 5) 微小粒子状物質測定法確立調査報告書 東京都 平成 11 年(1999)
- 6) 入門 大気中微小粒子の環境・健康影響 横山栄二・内山巖雄 編 日本環境衛生センター発行(2000)
- 7) CMB8 User's manual, US EPA, <http://www.epa.gov/scram001/tt23.htm> (CMB8: Chemical Mass Balance8)
- 8) J.H. Seinfeld and S.N. Pandis: Atmospheric Chemistry and Physics (1998)
- 9) J.A.Cooper, J.G.Watson, Jr. receptor oriented methods of air particulate source

apportionment, J.APCA, 30:1116-1125(1980)

10) J.G.Watson, Overview of receptor model principles, J.APCA, 34:619-623(1984)

11) G.S. Kowalczyk, C.E. Choquette, and G.E. Gordon: Chemical element balances and identification of air pollution sources in Washington D.C., Atmos. Environ. 12:1143-1153(1978)

12) 小野, 長野, 明星 環境中粉じんの有機/無機炭素量による評価の試み 第44回日本労働衛生工学会, p74-75(2004)

13) CMB8 解析マクロ HP-Address : <http://www.jomon.ne.jp/~hayakari/index.html>

## 2.1.2 化学物質の発生源

### (1)ホルムアルデヒド

この化学物質は、ベニヤ板、パーティクルボードなどに使用されている接着剤の原料としてよく用いられているため、それらの建材、家具等から発生する。また壁装材などの場合は通常、ホルムアルデヒドがそれ自体からは大量に発生するとは考えにくいですが、それらを壁などに接着する際使われる接着剤にはその原料としてホルムアルデヒドが使われていることがある。また、でんぷん糊のようにホルムアルデヒドを直接の原料としていないタイプでも、防腐剤として含まれている場合があり、それらのタイプの接着剤を使用した場合には相当程度ホルムアルデヒドが発出する。建材仕上げ材以外にも喫煙行為や石油やガスの開放型器具の使用によりホルムアルデヒドが発生する。

建材等からの放散量測定法に関しては JIS 規格により規定されている (JIS A 1460, JIS A 1901, JIS A 6921 など)。

### (2)塩化ビニル

この化学物質は、ビニルクロス等の壁装材に用いられている。よって、これら材料から発生する。

### (3)フタル酸エステル (類)

この化学物質は、1種類の化学物質ではなく、フタル酸ジメチル、フタル酸ジエチル、フタル酸ジオクチル、燐酸-o-クレジル等の一群の有機化合物の総称である。フタル酸エステルは、壁装材料の可塑性の原料として用いられるため、これらの材料より発生する。

### (4)ベンゼン

ベンゼンは、最も広く利用されている化学工業製品の1つであり、建材や壁装材料関連では可塑性の合成材料の1つとなる他、接着剤の原料ともなる。広く使われる工業製品であるだけに、接着剤が使われているもの全てが発生源となりうる。

### (5)トルエン

トルエンは、ベンゼン環の内の1つの-Hがアルキル基(-CH<sub>3</sub>)に変わったもので、色は無色で、ベンゼン様の芳香を持つ。建材関係では壁装材の可塑性剤や合成繊維などの合成原料の1つとなる。また、塗料や接着剤の溶剤としても用いられるため、塗料を塗った場合などは大量に発生する可能性がある。

### (6)キシレン

キシレンはベンゼン環の2つの-Hが2つアルキル基(-CH<sub>3</sub>)に変わったもので、その

位置により、o- (オルト), m- (メタ), p- (パラ) の3つの異性体がある。キシレンはトルエンと同様、建材関係では壁装材の可塑剤や防腐剤などの合成原料の1つとなる。よってこれらの材料から発生する。

#### (7)パラジクロロベンゼン

パラジクロロベンゼンは、建材中に含まれることは殆どないが、防虫剤の原料の1つとして用いられる。防虫剤や消臭剤を多量に用いることはパラジクロロベンゼンの高濃度汚染に曝されることになる。特に、高気密化した最近の住宅の室内では、防虫剤の使用に関しては多くなりすぎないように気をつける必要がある。

#### (8)エチルベンゼン

エチルベンゼンは、無色で独特の芳香を持つ常温では液体の化学物質で、スチレン単量体の中間原料溶剤、希釈剤などに使われる。したがって、トルエン、キシレンと同様塗料や接着剤が使われているところでは多量に発生する可能性がある。

#### (9)スチレン

スチレンは、スチレンモノマーの別名で、ポリスチレン樹脂、合成ゴム、不飽和ポリエステル樹脂などの原料として用いられる常温では油状の無色ないしは黄色の液体状の化学物質である。最近では畳どこにイグサの変わりに使われることがあるので、そのような場合は、多量の発生となる可能性がある。

#### (10)クロルピリホス

クロルピリホスは、殺虫剤や防蟻剤に使われる化学物質である。防蟻処理などをした床下などが発生源となりやすい。クロルピリホスは、特に小児への影響が強い化学物質であるため、建築基準法では使用禁止となっている。

#### (11)ブタル酸ジ n-ブチル

この化学物質は、塩化ビニルの添加剤や可塑剤、顔料などとして使われる。よってこれらの建材などがあればそれが発生源となる。

#### (12)テトラデカン

テトラデカンは、飽和炭化水素系列の化学物質であり、接着剤の原料に使用される場合があるので、接着剤を使った床や壁紙の貼り付けが発生源となる。

#### (13)フタル酸ジ-2-エチルヘキシル

フタル酸ジ-2-エチルヘキシルは、ビニールシートの製造に使われる化学物質であり、これらの材料が発生源となる。

#### (14)ダイアジノン

ダイアジノンは、特徴のある臭気を発する無色の油状の液体の有機リン系化学物質であり、殺虫剤に使われている。従って殺虫剤などを撒いた場合それが発生源となる。

#### (15)ノナナール

この物質は、接着剤や塗料の溶剤として使われる。したがって塗料や接着剤が発生源となる。

#### (16)アセトアルデヒド

アセトアルデヒドは、ホルムアルデヒドとよく似た化合物であり、ホルムアルデヒドの代替物質として用いられているものと考えられている。主な用途は防腐剤や接着剤の他、写真現像にも散られる。1997年にホルムアルデヒドの指針値が示された後、ホルムアルデ

ヒドの住宅室内濃度はかなり減少したのとは対照的にアセトアルデヒドは上昇しているのではないかと懸念されている物質である。また、天然の樹木からも発生する他、オゾンや光触媒などによりアルコールなどが分解された場合にも発生する。

#### (17)フェノブカルブ

フェノブカルブは、純粋な状態ではわずかな芳香臭のある化学物質で、害虫駆除に用い

表 2.1 調査ビル概要

建物名	Aビル	Bビル	Cビル	Dビル	Eビル
所在地	東京都港区	大阪府豊中市	東京都新宿区	石川県野々市町	埼玉県和光市
竣工年月	1975年6月	1980年8月	1991年3月	1969年4月	2001年
構造	一部鉄骨、 鉄筋コンクリート造	鉄骨鉄筋コンクリート	鉄骨造、 鉄筋コンクリート造	鉄筋コンクリート造	一部鉄骨造、 鉄筋コンクリート造
規模	地上26階・地下3階	地上11階	地上48階・地下3階	地上3階	地上8階・地下1階 (本館棟)
敷地面積	20,750m <sup>2</sup>	4,509m <sup>2</sup>	42,940m <sup>2</sup>	66,900m <sup>2</sup>	30,000m <sup>2</sup>
延床面積	111,658m <sup>2</sup>	26,230m <sup>2</sup>	195,000m <sup>2</sup>	171,858m <sup>2</sup>	16,000m <sup>2</sup>
対象室	1階 事務室	9階 事務室	26階 事務室	1階 事務室	5階 事務室
用途	事務室 ／較正作業室	事務室 ／講習会場	事務室	事務室	事務室
空調方式	単一ダクトファン コイルユニット・ 各階空調方式	各階空調・ ファンコイルユニット	全空気VAV 各階空調方式＋ 個別ユニット	単一ダクトファンコイ ルユニット方式＋ パッケージエアコン	単一ダクトファン コイルユニット・ 各階空調方式
換気回数	11.2回/h	11.5回/h	7.2回/h	10.7回/h	8.1回/h
測定日	2004年3月8日～ 2004年3月10日	2004年4月9日～ 2004年4月10日	2004年7月5日～ 2004年7月6日	2004年7月22日～ 2004年7月23日	2004年10月25日～ 2004年10月26日

られる殺虫剤として使用される他、マイクロカプセル化して防蟻剤としても使用される。よってこれらが発生源となる。

## 2.2 精密測定による粒子状物質と化学物質の実態調査

### 2.2.1 測定概要

#### (1)調査ビル

調査ビル概要を表 2.1 に示す。

#### (2)測定項目

各建物で粒子状物質及び化学物質について室内及び外気測定を行った。粒子状物質と化学物質の測定には、ピエゾバランス粉じん計とローボリュームエアサンプラを用いて空調時における質量濃度を、パーティクルカウンタ及び SMPS-CPC を用いて微粒子の個数濃度の測定を行った。また、その他 SKC インパクトを用いて粒径別の重量計測による重量濃度測定、パーティクルアナライザによる粒子の組成分析も行った。ガス状物質については、アクティブ法・パッシブ法による VOC、アルデヒド及びカルボニル化合物の捕集を行った。それに加え、オフィス空間における空調・非空調時の汚染物質濃度の確認を目的として、アクティブ法では 2 時間毎の捕集を行っている場合もあり、パッシブ法では 24 時間連続測定と空調時・非空調時各々について曝露を行った。また、ホルムアルデヒド及び TVOC に関して光音響式の連続測定器を用いて測定を行っている。アクティブ法による全ての値は平均値となっており、ブランクについては検出された絶対量を 24 時間曝露し、

25℃換算で空気中濃度として求めている。空気中濃度はブランク（絶対量）を差し引いて算出している。

## 2.2.2 測定結果の概要

### (1)B ビルの測定結果

Bビルでの室内測定では、講義室と事務室の室用途の異なる2室で測定を行い、パッシブサンプリングでは室内測定のみ行った。

室内における空調・非空調任意時刻について、非空調時にアルデヒド類、VOCともに濃度が若干高くなる傾向がみられる。そのうち、非空調時のトルエンに関しては指針値以下に収まっているものの比較的大きな値を示し、この傾向はアクティブ法において顕著であった。また、この傾向は空調稼動直前の非空調時間帯に目立ち、他の物質についても濃度が高くなっていることがわかる。室内と外気について比較すると、室内濃度が外気濃度を上回る値となっており、トルエンに関しては外気においても若干高い値を示す傾向にあった。

### (2)C ビルの測定結果

#### ①粒子状物質

ローボリュームエアサンプラ及びデジタル粉じん計による測定値は、室内よりも外気濃度の方が高い値を示す結果となったが、ピエゾバランス粉じん計においては、午前中に室内よりも外気濃度が若干高くなってはいるものの、平均値はともに $0.02\text{mg}/\text{m}^3$ となった。

また、15:00を中心として濃度の上昇が確認できるが、外気においても同様の傾向がみられ、外気の濃度変動が室内に影響を及ぼしたものと考えられる。空調時・非空調時の測定値では、非空調時の室内濃度が空調時を上回った。デジタル粉じん計による計測値の経時変化は空調稼動に伴って10cpm程度まで増加する傾向がみられ、空調を停止した19時から少しずつ減少し、4cpm程度に収束する様子が確認できた。

カスケードインパクタによる室内空調・非空調時、外気捕集量はともに $0.25\mu\text{m}$ 以下の微小粒子の捕集量について最も多い値を示し、全体量では室内よりも外気濃度が、非空調時よりも空調時に捕集量が多い結果となった。また、外気捕集粒子のうち最上段 $2.5\mu\text{m}$ の値は、全粒径のうち最も多くを示した微小粒子の $0.0191\text{mg}/\text{m}^3$ に続いて $0.0165\text{mg}/\text{m}^3$ を示し、全捕集粒子のうち約3割を占める結果となった。

パーティクルカウンタによるデータは空調の稼動に伴って $5.0\mu\text{m}$ 未満の粒子で減少するものの、執務者の出勤と共に緩やかに上昇する様子がみられ、空調停止時には減少する傾向となった。また、空調時・非空調時における室内個数濃度の増減幅は10倍程度であり、小粒径の粒子よりも比較的粒径の大きなものに関して変動が大きいことがわかる。日中における粒子個数濃度を室内外について比較すると、外気濃度は室内濃度よりも若干高い値を示し、外気濃度の室内への影響については見られない。

#### ②ガス状物質

CビルにおけるVOC、ホルムアルデヒドなどのカルボニル化合物に関する屋内外の分析結果から、室内濃度が外気濃度を上回っていた。また、室内のアルデヒド類については非