

空調時に濃度が上昇していた。外気と室内の濃度との関連性はほとんど認められない。

### (3)D ビルの測定結果

#### ①粒子状物質

いずれの測定値も、室内よりも外気濃度の方が高い値を示した。空調時・非空調時では、非空調時の室内濃度が空調時の値を上回り、ローボリュームエアサンプラとピエゾバランス粉じん計での測定値はともに2倍の値を示した。ピエゾバランス粉じん計における経時変化は、室内では終日0.01~0.02mg/m<sup>3</sup>程度の変化にとどまり、時間による大きな濃度変動はみられなかった。一方、外気濃度については7時と10時に0.07mg/m<sup>3</sup>と室内に比べて高い値を記録し、この日の午前の外気濃度が比較的高かった様子がうかがえる。デジタル粉じん計による室内外粒子計測値の経時変化は、空調停止に伴って20cpm程度まで増加する傾向がみられるが、空調運転開始の7時から急激に減少する様子が確認できた。また、室内・外気ともに夜間は計測値が高くなる傾向にあるが、外気変動が室内に及ぼす影響は小さく、室内は外気の6分の1程度の濃度となっている。

カスケードインパクトによる室内空調・非空調時と外気における粒径別捕集量及び重量濃度について、0.25μm以下の微小粒子の存在量が最も大きな値となった。そのうち、室内における非空調時の重量濃度は空調時よりも高い値を示し、微小粒子においてその傾向は顕著である。また、外気粒子中最も多くを占めるのは0.25~0.50μmの段であり、室内粒子に比べて一段大きな粒径範囲に占める割合が多い結果となった。

パーティクルカウンタによる測定結果から、室内では、空調の停止に伴って2.0μm以下の粒子で緩やかに上昇する様子がみられた。2.0μmよりも大きい粒子では、空調停止に従い濃度は21時をピークに高い値を示すが次第に減少し、翌朝の空調稼働時には急激に上昇する様子が確認でき、比較的粒径の大きなものに関して変動が大きい。また、5.0μm以上の大きな粒子について、ピーク時には外気濃度を上回ることから、室内で発生している可能性が考えられる。一方、外気における濃度変動は一日を通してほぼ安定している。

#### ②ガス状物質

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の濃度が若干高くなった。VOCについてはそれとは逆に、空調時において高くなる傾向がみられる。また、室内と外気について比較すると、外気濃度が室内濃度を上回る値となっており、午前10時の測定では、両者について、トルエンとスチレンが比較的大きな値を示した。時別濃度をみると、外気濃度と室内濃度の変動に同様の動きが見られることから、外気変動が室内濃度に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関しては検出限界以下となっているものが多かった。

### (4)E ビルの測定結果

#### ①粒子状物質測定結果

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したが、ピエゾバランス粉じん計では平均値はともに  $0.04\text{mg}/\text{m}^3$  となった。室内濃度は終日  $0.04\sim 0.05\text{ mg}/\text{m}^3$  と変化はみられなかったが、外気濃度は午前中高く、夕方にかけて少しずつ減少する傾向にあった。また、空調時・非空調時の濃度については、空調時の室内濃度が非空調時を上回る結果となった。デジタル粉じん計による計測値は非空調時間帯において、外気濃度は大きく上昇している一方で、室内では空調停止に伴って計測値が減少傾向にあり変化量も少ない。空調を開始した8時から少しずつ増加し、13時には外気濃度の増加に伴って室内での計測値も増加していることから、空調稼働時の室内では、外気粒子の影響を受けやすいと考えられる。

カスケードインパクタによる室内空調・非空調時と外気における粒径別捕集量及び重量濃度については他ビルと同様に、 $0.25\mu\text{m}$  以下の微小粒子の存在量が最も多い結果となった。外気捕集量は室内捕集量よりも多いが、そのうち最下段の微小粒子については外気よりも室内側で全捕集量に占める割合が大きいことがわかった。また、室内における空調時の重量濃度は非空調時よりも高い値となり、ローボリュームエアサンプラとデジタル粉じん計、ピエゾバランス粉じん計と同様の傾向を示した。

パーティクルカウンタでの室内・外気粒子個数濃度は室内では、空調の停止に伴って  $2.0\mu\text{m}$  以上の粒子が急激な減少をみせたが、小粒径の粒子に関してはほとんど変化がみられなかった。そして、翌朝の空調稼働時には、 $2.0\mu\text{m}$  以上の粒子のみ急上昇する様子がみられ、粒径が大きな粒子について変動が大きいことがわかった。外気濃度については、 $2.0\sim 5.0\mu\text{m}$  範囲の粒子の変化量が終日ほとんどみられないのを除き、その他の粒径範囲にある粒子は、午前5時以降に濃度の低下が観測された。当ビルの空調稼働時における室内濃度と外気濃度のレベル差は小さい。

## ②ガス状物質測定結果

アクティブ法、パッシブ法による、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、室内濃度はCビルと同様に外気濃度を上回っており、検出限界以下である物質以外の物質についてこの傾向がみられる。空調時・非空調時には、アルデヒド類の濃度が若干上昇している様子が伺えるが、空調時・非空調時間の濃度上昇の規則性や室内・外気間での相関などもほとんどみられなかった。

### 2.2.3 ビル間比較による考察

#### (1)外気測定について

今年度測定を行ったオフィスビルのうち、Cビル（東京都新宿区）、Dビル（石川県野々市町）、Eビル（埼玉県和光市）の3棟に加え、前年度（平成15年度）調査を行ったAビル（東京都港区）も含め考察を行う。

各対象ビルにおける外気濃度についてみると、ローボリュームエアサンプラによる重量濃度測定では、Dビルで  $0.033\text{mg}/\text{m}^3$ 、Eビルで  $0.030\text{mg}/\text{m}^3$ 、Cビルで  $0.020\text{mg}/\text{m}^3$  を記録した。ピエゾバランス粉じん計では、DビルとEビルにおいて平均測定値は  $0.04\text{mg}/\text{m}^3$  となり、両者とも午前中に高めの値を示す傾向にあった。外気に関して、ローボリュームエアサンプラとピエゾバランス粉じん計による平均値はよく一致する結果となった。デジタル粉じん計による外気濃度の変動についてみると、いずれのビルにおいても最大値は非

空調時間帯に 120cpm 程度を示し、最小値は 18 時前後に 10cpm 程度まで低下する様子が観測された。石川県野々市町と東京都心部、東京郊外における外気濃度レベルの大小に関して、地域性による大きな違いはみられなかった。

インパクタによる粒子捕集による重量濃度は、C ビル、D ビル、D ビルで各、0.0479, 0.0430, 0.0366mg/m<sup>3</sup> となり、他の測定方法による計測値との大小には多少の差異がみられた。しかし、C ビル、E ビル、前年度計測を行った A ビルの 3 棟に共通して、捕集粒子全体のうちインパクタの捕集特性上最下段である 0.25 μm 以下の微小粒子に占める割合が最も大きく、最上段である 2.5 μm 以上の比較的粒径が大きな粒子についても室内に比べて捕集率が高いことを示した。一方、以上に挙げた東京地域の対象ビル 3 棟と比較して、D ビルでは粒径が最下段よりも一段大きな粒子の割合が多い結果となった。

また、外気粒子の個数濃度測定による経時変化でみると、室内濃度が空調の稼働と停止によって時間帯で大きく変動しているのに比べ、終日安定しており、D ビルでその傾向は顕著であった。

## (2)室内空調時に関する考察

室内空調時について、ローボリュームエアサンプラによる重量濃度測定では、C ビル、D ビル、E ビルで、0.012, 0.006, 0.025mg/m<sup>3</sup> を示し、ピエゾバランス粉じん計による計測値も、C ビルと D ビルで 0.02mg/m<sup>3</sup>, E ビルで 0.04mg/m<sup>3</sup> を観測した。また、インパクタ捕集による測定値は、0.0194, 0.0084, 0.0288mg/m<sup>3</sup> を記録し、ローボリュームエアサンプラとインパクタ捕集による測定値は概ね一致しており、測定器間で計測値の大小に多少の違いはみられるものの、いずれの測定方法でも室内基準値である 0.15mg/m<sup>3</sup> を大きく下回る結果となった。

デジタル粉じん計による経時変化をみると、C ビルと E ビルにおいては空調稼働とともに室内濃度は増加傾向にあるのに対して C ビルでは急激に減少する様子がみられた。

一方、個数濃度測定でも、空調稼働・停止に伴って室内濃度は増減するが、特に 2.0 μm 以上の粒子において変動は大きく、変動傾向はデジタル粉じん計の室内濃度値と同様であった。

いずれにしても、空調時、非空調時では、室内空気中の粒子状物質の濃度は異なる傾向となっており、特に小粒径の粒子状物質については、空調することにより外気及び室内の環気中の粒子が空調機のフィルタにより取り除かれる効果がでていると考えられる。また、執務者の入社直後は微粒子濃度が上昇する可能性があることがわかった。

## (3)VOC およびアルデヒド類の測定結果に関する考察

室内濃度について、全 4 棟のうち D ビルで最も高い値となっており、続いて C ビル、の B ビルと続いている。そのうち、D ビルの非空調時にアセトアルデヒドの値が指針値と同じ 48 μg/m<sup>3</sup> となった。同じく非空調時の外気についてみてみると、高い値はみられないことから、A ビルでは非空調時に室内で何らかの化学物質が発生したと考えられる。また、B ビルの非空調時のうちトルエンに関して、指針値は超えないものの他と比較して高い値が得られた。事務室・講義室ともに値は目立つが、特にアクティブサンプリングによる事務室での測定結果では 210 μg/m<sup>3</sup> という結果をみせた。

また、全ビルに共通して、室内濃度が外気濃度を上回る傾向にあることが明らかとなった。空調時のビルの室内は、VOC,アルデヒド類ともに非常に濃度が低く、厚生労働省指針値を超過するものは見られなかった。そのような低濃度の中でも、空調が停止する時間帯（非空調時間帯）の濃度は上昇する傾向が見られた。VOC およびアルデヒド類はほとんどが室内濃度の方が高かった。内外比も時間帯により変化しており、空調が停止する時間帯で高くなった。外気に比べ室内濃度は 2～3 倍程度が平均的であったが、改装直後であった B ビルでは、スチレンの内外比が 90 にもなっていた。

空調・非空調時の濃度に関しては、ビルによって濃度比は異なっており、B ビル、D ビル、E ビルでは空調時よりも非空調時に室内濃度が上昇する傾向にあるが、C ビルでは逆に、空調稼動時において室内濃度が高い値を示す傾向にあることが判った。ガス状物質については、室内中の建築材料に限らず執務者や人間の活動によるものなど室内からの発生源があることを示しており、空調停止によりその濃度上昇が顕著になることがわかった。

また、パッシブ法による測定結果はビル 4 棟に共通して空気中濃度は低い値となった。パッシブ法とアクティブ法で測定結果のオーダーについて比較すると、概ね一致はしているが、パッシブ法の方がアクティブ法よりも若干高めに値が出る結果となっている。外気測定についても同様の傾向がみられる。

また、空調・非空調時による濃度については、各々におけるパッシブ法とアクティブ法の比較では、絶対値は異なるものの、濃度の高低の傾向はよく一致している。パッシブ法による測定についての絶対値は、信頼性が高いと考えられるアクティブ法と異なるものの、それよりも高い値を出すことから、空調時間帯のパッシブ法の曝露により、ある程度の精度を持った測定が可能であることが分かった。

### 2.3 VOC 類の精密法およびパッシブ法との比較

アクティブサンプリング法は正確な濃度が把握できる一方、ポンプなど機材が必要であり、操作も簡単とはいえない。全国調査を行う際、このような機材を用いた方法は現実的でないため、パッシブサンプリング法の適用を検討した。

#### (1)アクティブサンプリング

##### <測定項目>

カルボニル化合物

ホルムアルデヒド，アセトアルデヒド

揮発性有機化合物

トルエン，キシレン，パラジクロロベンゼン，エチルベンゼン，スチレン，テトラデカン，フタル酸ジ-n-ブチル，フタル酸ジ-2-エチルヘキシル

##### <採取方法>

カルボニル化合物

DNPH 吸着管に室内空気を 500ml/min 程度の流量で採取した。

揮発性有機化合物

TENAX-GR 吸着管に室内空気を 100ml/min 程度の流量で採取した。

##### <分析方法>

カルボニル化合物：アセトニトリル溶出－高速液体クロマトグラフ法

装置：LC-10Avp（島津製作所）  
カラム：SUMIPAX PG-ODS 4.6mmφ×25cm 粒径 7μm（住化分析センター）  
移動相：アセトニトリル/水=60/40  
検出器：紫外分光光度計（λ=360nm）  
流量：1ml/min 温度：40℃ 注入量：20μL

揮発性有機化合物：加熱脱離-ガスクロマトグラフ/質量分析法

装置：Turbomatrix-ATD（パーキンエルマー）+ 6890-5973N（Agilent）

カラム：DB-5 0.25mmφ×60m×0.25μm（J&W）

温度：40℃ -（10℃/min）- 250℃

キャリアガス：He 流量：1ml/min

脱着温度：250℃ 脱着時間：10分

## (2)パッシブサンプリング

### <サンプラー>

カルボニル化合物 DSD-DNPH(スペルコ製), UME<sub>x</sub>100(S K C 製)

パッシブガスチューブ(柴田科学製)

揮発性有機化合物 VOC-SD(スペルコ製), 有機ガスモニターNo.3500(スリーエム製)  
575-001(S K C 製)

パッシブガスチューブ(柴田科学製)

### <測定項目>

カルボニル化合物

ホルムアルデヒド, アセトアルデヒド

揮発性有機化合物

トルエン, エチルベンゼン, キシレン, スチレン, パラジクロロベンゼン

### <暴露時間>

サンプラーの暴露時間は次の3つの時間で行い, 結果を比較した。

24 時間暴露, 空調時間帯連続暴露, 非空調時間帯連続暴露

\*ただし, 外気は上記に即していない。

### <前処理方法>

カルボニル化合物：アセトニトリル 5ml で溶出した。

揮発性有機化合物：二硫化炭素 2ml および内部標準物質(トルエン-d<sub>8</sub>)2μg を添加し,  
30 分溶出後, 溶出液を回収した。

### <分析方法および条件>

カルボニル化合物：アクティブ法と同一

揮発性有機化合物：ガスクロマトグラフ/質量分析（選択イオン検出）法

装置：Agilent 6890-5973N（Agilent）

カラム：DB-5 0.25mmφ×60m×0.25μm（J&W）

温度：40℃ -（10℃/min）- 250℃

注 入：280℃（スプリットレス）

キャリアガス：He 流量：1ml/min 注入量：1μL

### (3)結果および考察

パッシブ法による測定結果とアクティブ法による測定結果の相関を解析した。頻度高く検出されたホルムアルデヒドおよびトルエンで解析を行った。

図 2.3.1 に非空調時間帯のホルムアルデヒド濃度のアクティブ法とパッシブ法の比較を示す。非空調時間帯は、30分サンプリングによる時間内の代表点しか測定を行わなかったが、パッシブ法とよい相関を示した。また、図 2.3.2 に空調時間帯のアクティブ法とパッシブ法の比較を示す。空調時間帯は、30分サンプリングによる時間内の代表点ではあまり相関がよくなかったが、時間内を連続測定した結果では、パッシブ法とよい相関を示した。

図 2.3.3 に非空調時間帯のトルエン濃度のアクティブ法とパッシブ法の比較を示す。非空調時間帯は、測定点数が少なく相関係数が低いですが、パッシブ法も同等の結果が得られると思われる。また、図 2.3.4 に空調時間帯のアクティブ法とパッシブ法の比較を示す。空調時間帯は、時間内を連続測定した結果では、パッシブ法とよい相関を示した。

以上より、パッシブ法による測定結果には妥当性があると考えられ、全国調査にパッシブ法を適用することは問題がないと考えられる。

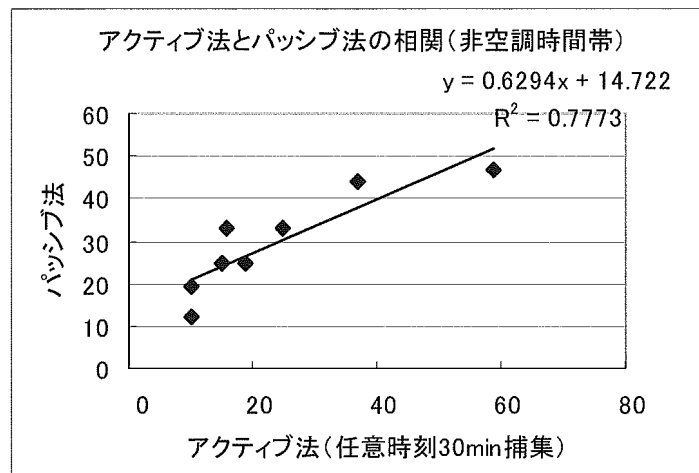


図 2.3.1 ホルムアルデヒド濃度のアクティブ法とパッシブ法の比較 (非空調時間帯)

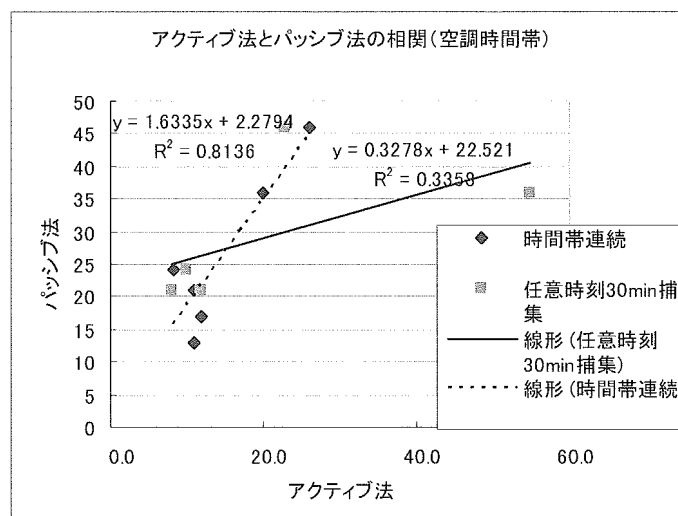


図 2.3.2 ホルムアルデヒド濃度のアクティブ法とパッシブ法の比較 (空調時間帯)

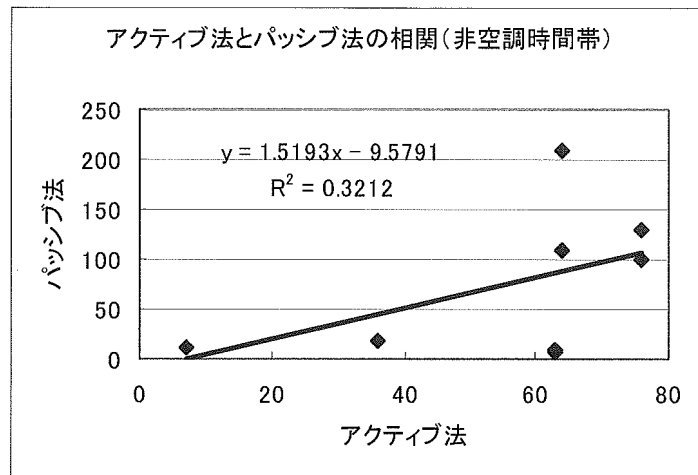


図 2.3.3 トルエン濃度のアクティブ法とパッシブ法の比較（非空調時間帯）

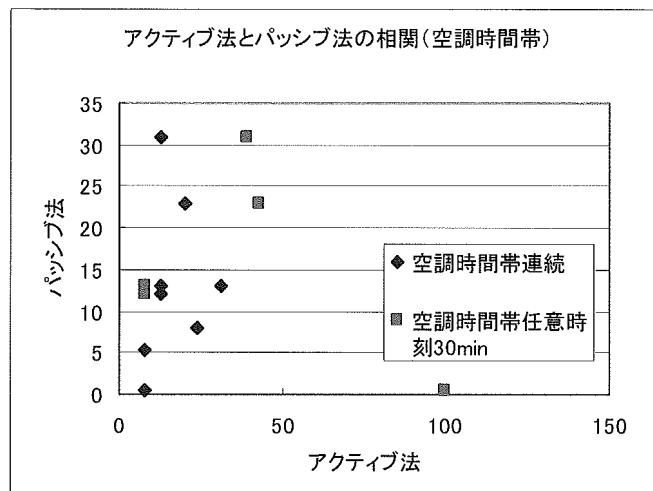


図 2.3.4 トルエン濃度のアクティブ法とパッシブ法の比較（空調時間）

#### 2.4 デジタル粉じん計の係数値

デジタル粉じん計は、質量濃度に変換する場合に、質量濃度変換係数 (=0.0013mg/m<sup>3</sup>/CPM) を乗じて質量濃度を算出することが一般的である。

今回実測を行った、C,D,E ビルにおけるローボリュームサンプラーにより計測した室内の浮遊粒子の質量濃度[mg/m<sup>3</sup>]と、デジタル粉じん計により得られた平均相対濃度[cpm]及びその比率である係数値[×10<sup>-3</sup> mg/m<sup>3</sup>/CPM]について表 2.4.1 に示す。空調、非空調時に分けたが、空調時については、1.3 前後の値となったが、非空調時には 0.7 と空調時よりも低い値となった。

散乱光から質量濃度を変換する際には、粒子の粒径、形状及び組成などが影響し、変換の誤差を生じさせる。室内環境中に浮遊している粒子の性状は、比較的安定しているためこの値は、1.3 程度となっている。今回の結果のように、非空調時に値が小さくなるのは、

空調が停止することにより、室内における気流の滞留が少なくなることで大粒径の粒子が沈降し、1 $\mu\text{m}$ 以上の粒子の数濃度が少なくなるものの、それ以下の微粒子については変化が少ない又は増加することが、先の実測におけるパーティクルカウンタでの結果となっていた。空間中の粒径分布が異なることによっても、重量濃度に変換する際には大きな影響を与えることから、係数値が非空調時に小さな値となったと考えられる。

その他にも、現在オフィスビルにおける分煙化、禁煙化が進んでおり、過去数十年以来空間内の粒子の性状も徐々に変わりつつあることも、係数値に影響を与える。また、デジタル粉じん計自体の仕様によっても異なる。いずれにせよ、今回の空調時の結果からは、ばらつきはあるものの、1.3程度の値となっていることを確認した。

表 2.4.1 各測定における係数値の比較

	C ビル		D ビル		E ビル	
	空調時	非空調時	空調時	非空調時	空調時	非空調時
L-V 測定 質量濃度[ $\text{mg}/\text{m}^3$ ]	0.012	0.020	0.006	0.033	0.025	0.030
LD-3[cmp]	7.7	27.74	5.8	45.54	19.91	41.89
係数値 [ $\times 10^{-3} \text{mg}/\text{m}^3/\text{CPM}$ ]	1.5	0.7	1.0	0.7	1.3	0.7

## 2.5 化学物質の経時変化

調査建築物における VOC とアルデヒド類について経時変動（空調時・非空調時）の調査を行った。

### (1)A ビルについて

既存建築物の事務室における VOC およびアルデヒド類の経時変化の結果を図 2.5.1 に示した。

調査時期は平成 16 年 3 月、空調時間帯は 7 時 30 分～19 時であった。

室内に対する外気の測定は 9 時に実施した。

空調時・非空調時ともに全ての測定結果は基準値あるいは指針値以下であった。トルエンは空調停止後から空調開始直前まで濃度上昇が見られ、空調稼働後に濃度減少の傾向を示したがホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、キシレン、1,4 ジクロロベンゼン、エチルベンゼン、スチレン、ノナナール、テトラデカンに空調・非空調に関わらずほぼ一定濃度であった。



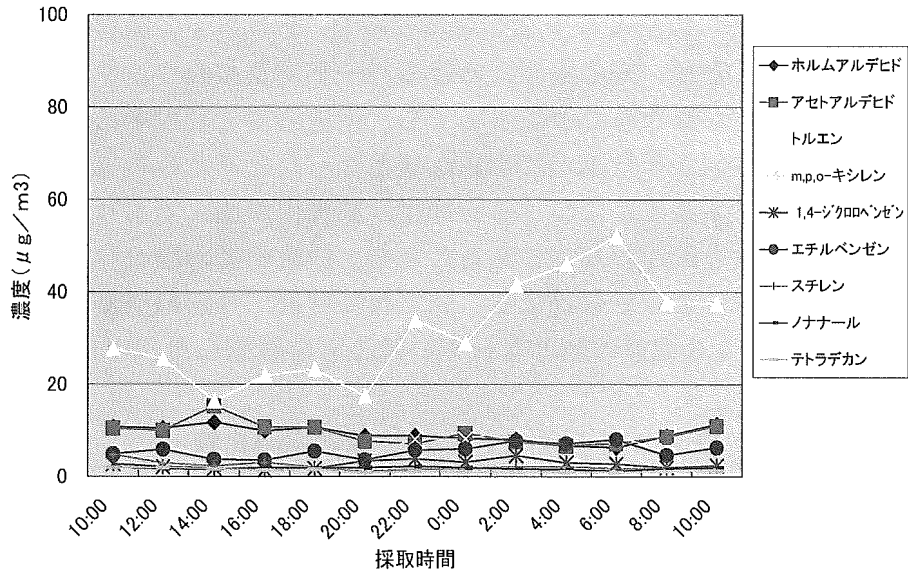


図 2.5.1 室内VOC濃度の時間変化

(2)B ビルについて

改装直後の事務室及び講習会場における VOC 類の経時変化の結果を図 2.5.2, 図 2.5.3 に示した。

調査時期は平成 16 年 4 月, 空調の稼働時間は 9 時~17 時とした。

空調時・非空調時ともに VOC 類濃度は基準値並びに指針値以下であった。

ただし, トルエン, アセトアルデヒドなど全体的に空調停止後から濃度上昇し, 空調稼働により減少する傾向が見られた。なお, 外気の測定は 18 時 40 分と 11 時に行ったが, ホルムアルデヒド, アセトアルデヒドの外気濃度は  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以下と低濃度であり変動は見られない。

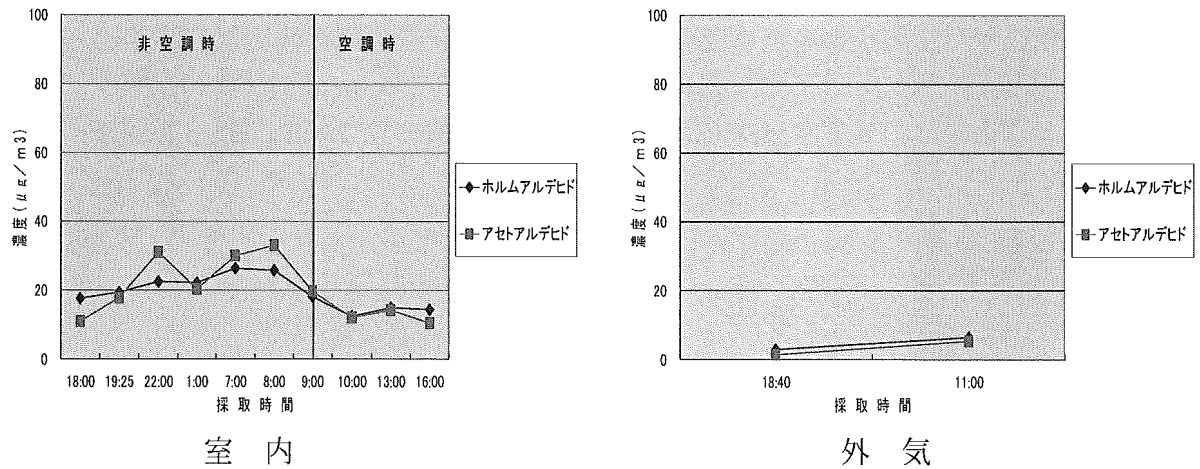


図 2.5.2 アルデヒド類の時間変化 (事務室)

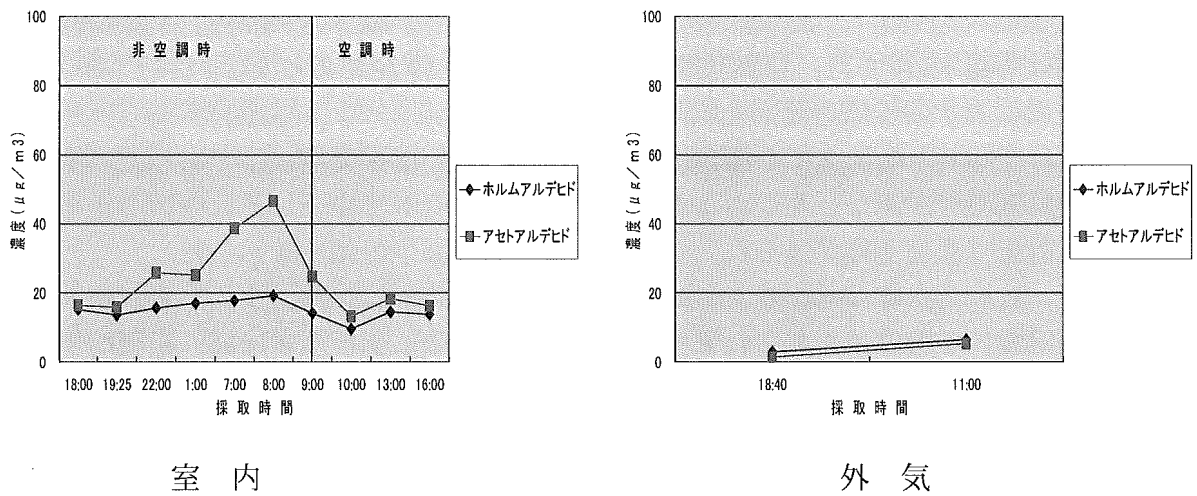


図 2.5.3 アルデヒド類の時間変化（講習会場）

(3)C ビルについて

既存建築物の事務室におけるVOCおよびアルデヒド類の経時変化の結果を図 2.5.4 に示した。調査時期は平成 16 年 7 月、採取時刻は全て空調稼働中であった。なお、外気の測定は行わなかった。

空調時における室内の各物質の平均値はホルムアルデヒド  $26.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、アセトアルデヒド  $18.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  でありトルエン、キシレン、1,4 ジクロロベンゼン、エチルベンゼン、スチレン、ノナール、テトラデカンはいずれも  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以下であった。全物質の時間変化はほぼ一定に推移しており基準値あるいは指針値と比較しても概ね低濃度であった。

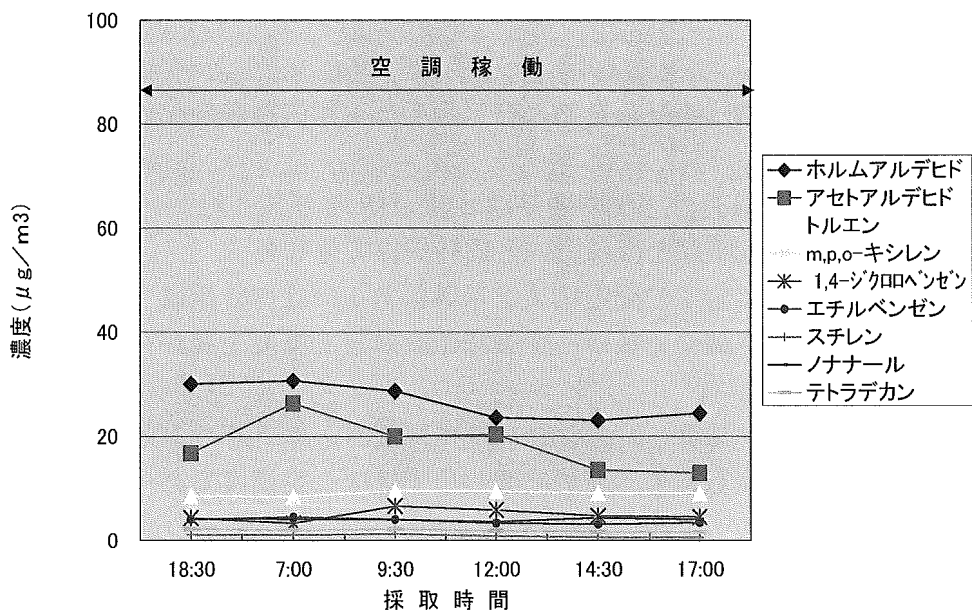


図 2.5.4 室内VOC濃度の時間変化

#### (4)D ビルについて

既存建築物の事務室におけるVOCおよびアルデヒド類の経時変化の結果を図 2.5.5 に示した。

調査時期は平成 16 年 7 月，空調時間帯は 8 時 30 分～19 時であった。

また，室内に対する外気の測定を同時刻に実施した。

空調時・非空調時ともに全ての測定結果は基準値あるいは指針値以下であった。夕刻のトルエンの外気濃度が高かったがホルムアルデヒドとアセトアルデヒドは空調停止後から空調開始直前まで濃度上昇が見られ，空調稼働後に濃度減少の傾向を示した。

キシレン，1,4 ジクロロベンゼン，エチルベンゼン，スチレン，ノナナール，テトラデカン は概ね室内外で濃度差も見られずまた，空調・非空調に関わらずほぼ一定濃度であった。

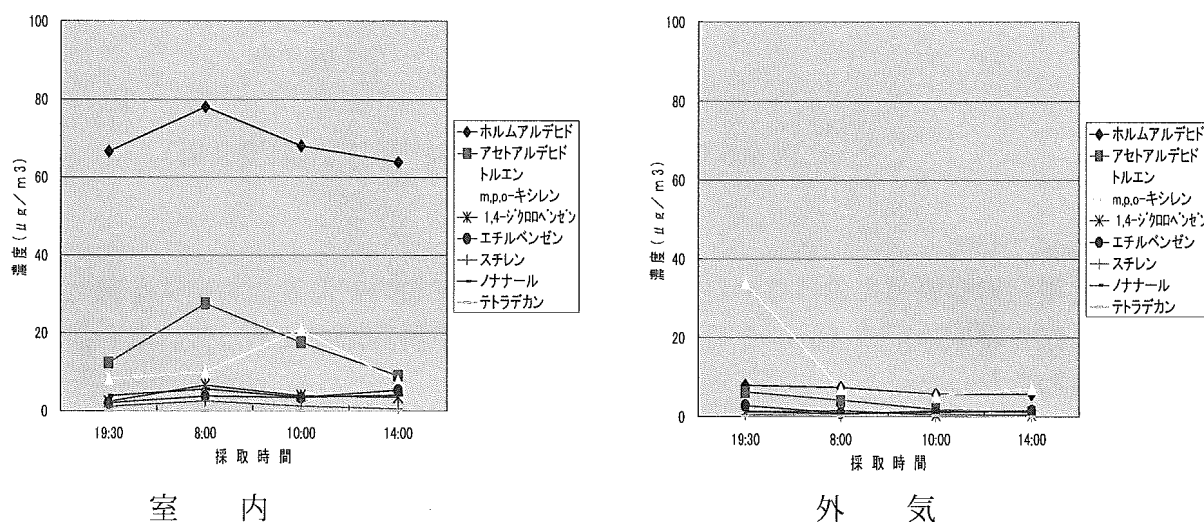


図 2.5.5 室内外のVOC時間変化

#### (5)E ビルについて

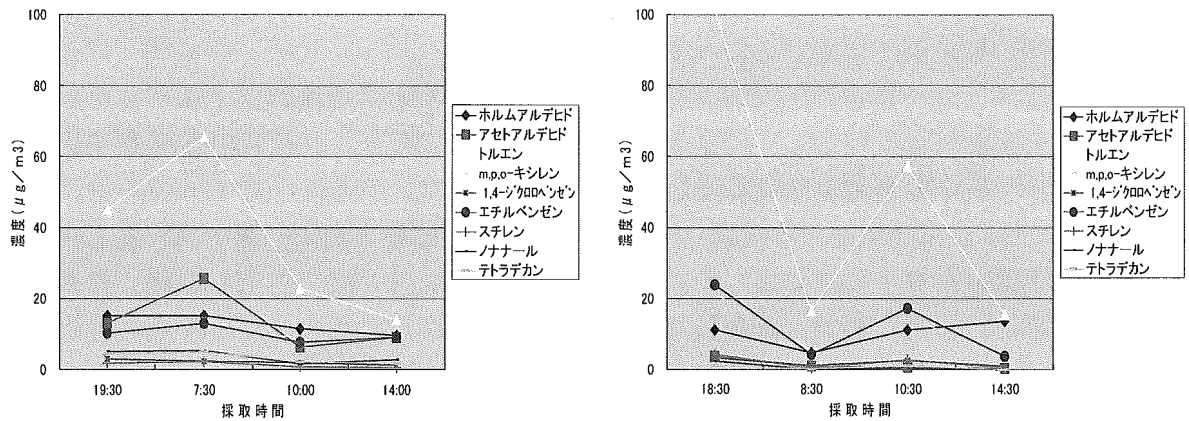
新築建築物の事務室におけるVOCおよびアルデヒド類の経時変化の結果を図 2.5.6 に示した。

調査時期は平成 16 年 10 月，空調時間帯は 8 時～18 時であった。

また，室内に対する外気測定をほぼ室内と同時刻に実施した。

空調時・非空調時ともに全ての測定結果は基準値あるいは指針値以下であった。トルエンとアセトアルデヒドは空調停止後から空調開始直前まで濃度上昇が見られ，空調稼働後に濃度減少の傾向を示した。

ホルムアルデヒド，キシレン，1,4 ジクロロベンゼン，エチルベンゼン，スチレン，ノナナール，テトラデカン は空調・非空調に関わらずほぼ一定濃度であった。トルエンの外気濃度に変動が見られたがその他については室内外で著しい濃度の違いや傾向は見られなかった。



室内 外気

図 2.5.6 室内外のVOC時間変化

## (6)考察

新築, 改修, 既存の 5 建物の特定建築物事務所について空調・非空調の違いをみるために時間変動を調査したが, 全ての VOC 類濃度は非空調時においても基準値あるいは指針値以下であった。D ビルのホルムアルデヒドのように施設によりホルムアルデヒド, アセトアルデヒド, トルエンはやや高い濃度を示したが室内の発生要因は特定できなかった。また, E ビルの外気トルエン濃度の挙動は, 本建物については新築物件で内装を含めて工事中であったため外気のトルエン濃度が影響を受けたのではないかと推察される。

室内の濃度変動は, 基準値あるいは指針値に対して低いレベルで起こっていることが確認されたが, その要因として, 換気量の変化, 室内発生源の変化, 外気濃度の変化などが上げられる。しかし, 発生源については特定するには至らなかった。発生源が室内にある場合, 空調を停止することにより外気導入が減少することで VOC の濃度の上昇傾向が確認された。発生量にもよるが, 今回の建物では基準値あるいは指針値を超過することはなかった。しかし, 発生源の条件によっては, 早朝の空調稼働前には, この値を超えることも考えられることから, 適切な空調管理が重要であると考えられる。

今回の調査では新築, 改修, 既存に関係なく特定建築物の事務室では非空調時においても VOC 類は基準値あるいは指針値以下であり, 空調機を稼働させている通常特定建築物では化学物質濃度は低濃度で推移していると推察されるが, 同施設の継続調査による濃度推移も見ていく必要があると考える。

## 2.6 粒子組成からみた解析

### (1)ICP-MS による粒子状物質の化学組成分析

粒子の粒径別捕集にはシウタスインパクトを用いた。この小型のカスケードインパクトは, 低価格で吸引流量も 9 l/min と大きい。大気汚染を考慮して, インパクトは 4 段で 2.5, 1.0, 0.5, 0.25  $\mu\text{m}$  の粒径 (50%カット径) の粒子を分級・捕集する。ノズルはスリット形で, その通気抵抗は大きくない。インパクトの捕集板として, 石英フィルタ, 石英フィルタでオイルを塗布したもの, PTFE フィルタ (テフロンフィルタ), アルミ箔を用いて

捕集能力を比較している。アルミ箔を用いた場合には若干、捕集した粒子の再飛散が認められたが、他の捕集板では設計のカット径が確認された。

本測定ではメーカー指定のテフロンフィルタを衝突板の上と最後のフィルタにそれぞれ使用し、粒子捕集前後に秤量して粒子量を求め、さらに溶解後に上記 ICP-MS を用いて半定量分析し、粒子中の金属濃度を算出した。A ビル（空調，非空調），C ビル（空調，非空調，昼外気），D ビル（空調，非空調，昼と夜の外気）E ビル（空調，非空調，昼と夜の外気）においてフィルタ上に捕集された粒子状物質は、高純度の酸で溶出した後、希硝酸溶液として測定を行った。なお、捕集に用いたフィルタは事前に溶出に使用する高純度酸で洗浄を行ない、ブランク値を低減したものを使用した。

## (2)測定結果及び考察

ICP-MS による化学組成分析結果を捕集された粒子中の濃度として表したものを表 2.6.1 から 2.6.4 に示す。また、室内と外気の両者から検出された元素については、内外比（I/O 比）を求めたが、結果として捕集された粒子の量は分析に十分とはいえず、定量下限を下まわる元素も多い。ここでは測定された各ステージともに値のある元素について検討した。

空調と外気の粒子濃度比は各測定場所とも、粒径が小さくなるほど、つまり A 段から D 段へ進むほど、各金属ともに室内空気との濃度の違いは少なくなる。これは空調装置のフィルタの粒子捕集性能を示していると考えられる。A 段に捕集された粒子は 2.5 $\mu$ m 以上の粗大粒子であるが、これらは空調装置のフィルタで捕集され、外気に比べてかなり低下している。しかしながらナトリウムやマグネシウムの違いに比べてカリウムやカルシウムの違いは少ない。この原因については不明であるが、C, D, E ビルのすべてにおいて同様の結果であり、なにか理由があると思われる。カリウムやカルシウムは室内に一般的な発生源があることも考えられる。空調と非空調での濃度の違いは A ビル以外ではほとんどない。これは建物の密閉性または夜間の活動の差によるものと推定される。

表 2.6.1 Aビル ICP 半定量結果（空气中濃度）

単位: ng/m<sup>3</sup>

	空調時					非空調時				
	Filter-A	Filter-B	Filter-C	Filter-D	Filter-F	Filter-A	Filter-B	Filter-C	Filter-D	Filter-F
捕集量(L)	8640	8640	8640	8640	8640	6480	6480	6480	6480	6480
Na	9.7	1.5	5.1	4.5	14	42	35	26	59	49
Mg	4.3	0.6	1.1	1.2	1.6	15	11	6.9	10	4.6
Al	19	15	7.2	9.8	8.2	31	22	15	12	73
K	7.3	1.5	13	2.5	29	14	10	13	86	85
Ca	44	5.0	5.1	11	13	117	57	25	20	26
Ti	0.35	0.050	0.078	0.10	0.12	1.7	1.5	0.90	0.57	0.37
V	0.031	0.017	0.13	0.017	0.80	0.22	0.34	0.42	1.5	7.4
Cr	0.13	0.081	-	-	1.7	1.1	0.31	0.25	0.31	6.3
Mn	0.21	0.15	1.1	0.086	1.3	1.9	2.3	2.6	9.6	5.7
Fe	-	17	-	-	19	68	56	28	49	77
Co	-	-	-	-	0.075	0.040	0.025	-	0.020	0.25
Ni	-	-	-	-	2.3	0.90	0.26	0.25	0.74	7.9
Cu	3.0	3.7	1.3	0.89	1.4	5.4	6.5	3.1	4.8	13
Zn	3.5	4.5	4.1	1.1	5.6	8.8	13	17	45	34
Ga	-	-	-	-	0.034	0.20	0.25	0.13	0.15	0.15
Rb	0.0090	0.0053	0.063	-	0.067	0.032	0.043	0.074	0.42	0.26
Sr	0.076	-	0.030	0.029	0.053	0.39	0.31	0.15	0.28	0.23
Zr	0.012	0.0036	0.0034	0.0022	-	0.085	0.10	0.085	0.019	-
Nb	-	-	-	-	-	0.012	0.0034	0.0034	-	0.0049
Mo	0.0061	0.0066	0.061	0.014	0.17	0.12	0.13	0.13	0.29	0.60
Cd	0.0080	-	0.030	0.0067	0.027	0.017	0.056	0.057	0.23	0.17
Sn	0.27	-	0.36	-	-	0.46	0.32	1.4	1.0	0.69
Sb	0.011	0.0052	0.047	0.0049	0.068	0.32	0.46	0.39	0.77	0.76
Cs	-	-	0.0072	-	0.0067	0.0028	0.0039	0.0085	0.049	0.029
Ba	-	-	-	-	-	3.4	4.2	2.0	-	1.3
Tl	-	-	-	-	0.0080	-	-	-	0.026	0.035
Pb	1.6	1.5	2.1	1.3	2.3	0.88	1.5	2.6	12	13
Bi	0.28	0.38	0.16	0.43	0.10	0.079	0.051	0.046	0.28	0.65

※：数値はフィルター1枚あたりの絶対量を示す。

\* 正確な積算捕集量が得られてないため、参考値である。

表 2.6.2 C ビル ICP 半定量結果 (空气中濃度)

単位: ng/m<sup>3</sup>

	No.1室内夜間 (非空調時)						No.2室内屋 (空調時)						No.A 外気屋 (空調時)					
	A	B	C	D	F		A	B	C	D	F		A	B	C	D	F	
捕集量(L)	4860	4860	4860	4860	4860		4320	4320	4320	4320	4320		4320	4320	4320	4320	4320	
Na	7.0	26	31	23	4.9		12	15	20	16	14		532	251	38	70	22	
Mg	1.1	3.5	5.5	3.8	1.7		4.5	2.8	4.3	3.3	3.0		79	36	4.7	11	2.5	
Al	27	52	80	16	66		33	14	121	15	96		959	37	27	129	63	
K	1.7	1.9	3.4	8.4	8.1		12	6.5	7.0	17	17		41	21	50	24	17	
Ca	5.7	6.7	24	8.2	64		56	34	42	27	26		189	73	16	24	26	
Ti	-	0.042	0.070	-	0.094		0.65	0.10	0.18	0.23	0.44		2.94	0.74	0.19	0.23	0	
V	0.0057	0.010	0.021	0.10	0.27		0.039	0.018	0.031	0.11	0.35		0.35	0.16	0.56	0.17	1.4	
Cr	-	0.11	0.088	0.92	-		0.17	0.50	0.47	0.12	2.2		1.1	0.35	0.31	0.37	22	
Mn	-	0.064	0.089	0.27	0.34		0.44	0.19	0.28	0.71	0.94		2.7	1.2	3.0	1.0	5.6	
Fe	-	-	-	-	14		14	-	-	-	20		100	30	-	-	96	
Co	-	-	-	-	0.037		-	-	-	-	0.058		0.061	0.013	0.24	0.019	0.62	
Ni	0.074	0.10	0.11	0.76	0.87		0.16	0.38	0.26	0.12	1.82		1.52	0.36	0.71	0.70	14	
Cu	2.0	3.4	4.7	1.6	2.8		0.90	0.88	7.4	2.7	28		67	10	34	36	21	
Zn	-	-	-	-	2.2		5.8	2.6	5.9	4.0	25		20	5.2	23	17	16	
Ga	0.0079	0.015	0.023	0.035	0.027		0.038	0.016	0.029	0.035	0.040		0.60	0.19	0.060	0.087	0.036	
Rb	-	-	0.0061	0.018	0.012		0.016	0.0064	0.020	0.077	0.028		0.067	0.061	0.28	0.14	0.037	
Sr	0.012	0.034	0.060	0.17	0.13		0.15	0.22	0.10	0.12	0.11		1.38	0.42	0.22	0.37	0.13	
Mo	-	-	-	0.016	0.028		0.013	0.019	0.014	0.015	0.085		0.21	0.10	0.057	0.041	1.1	
Ag	-	-	-	-	-		0.0063	0.0035	0.0080	0.0050	0.010		0.013	0.019	0.015	0.006	0.16	
Sb	0.0077	0.0075	0.0058	0.019	0.033		0.027	0.015	0.024	0.040	0.055		0.48	0.16	0.079	0.066	0.11	
Cs	-	-	-	-	-		-	-	0.0065	0.025	0.0050		0.0060	0.012	0.095	0.038	0.0082	
Ba	0.031	0.10	0.15	0.38	0.21		0.42	0.18	0.26	0.28	0.29		5.1	2.0	0.37	0.76	0.17	
Pb	1.8	2.2	1.9	1.0	0.55		0.41	0.36	0.88	1.3	3.6		5.7	2.8	6.2	5.3	4.0	
Bi	1.7	1.8	1.2	0.32	0.13		0.051	0.039	0.39	0.09	0.74		3.8	1.1	0.86	1.6	0.97	

※: 数値はフィルター1枚あたりの絶対量を示す。

\* 正確な積算捕集量が得られていないため、参考値である。

表 2.6.3 D ビル ICP 半定量結果 (空气中濃度)

単位: ng/m<sup>3</sup>

補集量(L)	No.1室内屋						No.2室内夜						No.A外気屋						No.B外気夜					
	A	B	C	D	F		A	B	C	D	F		A	B	C	D	F		A	B	C	D	F	
	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320	4320
B	0.19	0.061	0.012	0.20	0.73	-	-	0.029	0.84	1.3	0.29	0.16	0.15	1.0	2.0	0.50	0.22	0.54	1.4	1.5				
Na	12	6.4	6.8	6.3	8.2	14	27	24	19	13	172	127	53	32	10	187	124	53	36	33				
Mg	2.8	1.4	2.2	1.6	1.2	3.3	5.0	5.3	5.6	2.2	35	25	12	6.7	1.9	42	25	15	8.1	2.8				
Al	17	9.4	37	32	83	56	28	16	10	53	60	92	195	18	50	51	242	110	103	670				
K	9.7	3.4	5.6	12	10	6.6	7.7	18	57	30	26	27	46	106	23	53	62	109	102	46				
Ca	38	16	20	15	15	31	26	26	13	18	87	48	21	13	6.17	123	57	45	50	17				
Ti	0.14	0.064	0.11	0.083	0.089	0.14	0.12	0.11	0.13	0.17	1.4	0.75	0.38	0.23	0.12	1.1	0.72	0.42	0.41	0.29				
V	0.014	0.0089	0.023	0.10	0.24	0.021	0.032	0.065	0.30	0.51	0.34	0.31	0.30	1.0	1.1	0.18	0.29	0.40	0.78	1.1				
Cr	0.12	0.089	0.068	0.34	0.73	0.15	0.17	0.23	0.24	8.1	0.82	0.33	4.2	0.31	-	1.9	2.1	2.0	4.9	11				
Mn	0.20	0.091	0.17	0.46	0.44	0.19	0.27	1.1	1.5	1.7	2.2	1.9	2.2	3.8	1.6	1.8	2.1	2.7	3.8	2.7				
Fe	-	-	-	-	9.4	-	-	38	-	37	34	20	16	9.3	10	37	35	21	29	45				
Co	-	-	-	-	0.014	-	-	0.012	-	0.38	0.036	0.021	0.034	0.03	0.04	0.04	0.13	0.21	0.08	0.40				
Ni	0.12	0.11	0.56	0.40	0.49	0.31	0.37	0.43	0.47	5.8	1.5	0.35	2.2	0.61	0.81	1.3	1.3	1.3	3.6	6.7				
Cu	0.92	1.0	2.6	1.6	4.7	2.8	2.6	2.5	2.5	293	40	6.0	22	8.0	3.0	42	83	76	82	46				
Zn	1.6	0.014	0.44	1.3	4.1	1.6	2.4	4.8	10	144	7.94	9.2	15	23	14	21	68	51	64	40				
Ga	0.021	0.0095	0.017	0.026	0.028	0.025	0.020	0.045	0.13	0.072	0.25	0.14	0.12	0.14	0.057	0.26	0.20	0.18	0.27	0.21				
Rb	0.015	0.0059	0.016	0.056	-	0.012	0.024	0.092	0.32	0.089	0.074	0.10	0.27	0.62	0.092	0.11	0.29	0.70	0.50	0.11				
Sr	0.068	0.030	0.047	0.043	0.033	0.10	0.085	0.14	0.34	0.11	0.47	0.36	0.20	0.17	0.058	0.62	0.47	0.44	0.49	0.10				
Zr	0.016	0.0052	-	-	-	0.0045	0.0045	-	-	0.010	0.08	0.06	0.019	0.0055	-	0.10	0.059	0.029	0.013	0.057				
Mo	-	-	-	0.043	0.018	-	-	0.018	0.074	0.63	0.11	0.13	0.14	0.13	0.067	0.40	0.32	0.18	0.35	0.74				
Ag	0.0045	-	0.0035	0.0089	0.0088	0.0041	0.005	0.011	0.018	0.018	0.0057	0.0051	0.010	0.028	0.008	0.013	0.018	0.030	0.048	0.034				
Sb	0.0082	0.0089	0.012	0.030	0.062	0.014	0.019	0.039	0.15	0.16	0.18	0.17	0.13	0.40	0.28	0.25	0.20	0.19	0.33	0.31				
Cs	-	-	-	0.0057	-	-	-	0.0089	0.039	0.010	0.0074	0.012	0.029	0.077	0.0092	0.010	0.034	0.079	0.065	0.010				
Ba	0.23	0.087	0.14	0.14	0.10	0.24	0.23	0.37	1.0	0.48	1.7	1.4	0.80	0.58	0.28	3.0	1.7	1.2	1.8	0.46				
Pb	0.44	0.86	0.92	1.4	1.3	0.56	0.77	2.1	5.4	6.3	5.9	4.3	6.9	12	5.0	4.6	14	18	31	11				
Bi	0.17	0.30	0.43	0.19	0.33	0.16	0.12	0.05	0.13	1.1	3.1	0.78	1.8	0.65	1.2	1.4	5.4	4.2	12	3.6				

\* 正確な積算捕集量が得られていないため、参考値である。





## 2.7 CMB8 解析マクロによる発生源解析の試み

粒子状物質の発生源を解析する試みが大気汚染観測の分野では広くなされている。解析方法は数種類あるが、CMB8 解析マクロを用いた。このエクセルマクロは早狩と花石によって EPA CMB8 を MS エクセル用に変換したものでホームページ<sup>3)</sup>で入手できる。CMB 解析マクロの原典は、アメリカでフリーウェアとして公開されている CMB8<sup>2)</sup>であり、有効分散最小自乗法(各成分の分析精度を考慮に入れるという特徴がある)を用いている。CMB8 は、Windows 上で単独での実行可能なソフトであるが、CMB8 解析マクロは MS Excel 用マクロに移植し、データを作成した Excel のシート上で CMB 解析ができるようにしたものである。

ここでは、解析のために適当な発生源データが見つからなかったことなど完全ではないが、今回のデータの中で屋外において捕集・分析された粒子成分の結果を解析した。解析法の選択としては負の発生源除去を採用した。これは多重共線性の強い発生源を一つ一つ除去して、負の寄与を示す発生源がなくなるまで最小自乗計算を行うもので、その他の方法では受け入れられる結果が得られなかった。またこの方法でも一致しない結果もあった。発生源のデータとしては<sup>4)</sup>から表 2.7.1 に示すような値を用いた。但し文献にあった元素状炭素の測定を行っていないので、元素数と発生源数が同数となってしまった。

E ビルの外気の測定結果について、図 2.7.1 と 2.7.2 に示すような推定値を得た。2.5  $\mu\text{m}$  以上の粒子では海塩粒子と道路粉じんが多く、0.25  $\mu\text{m}$  以下の粒子ではほとんどが自動車を発生源としている。ただし、ここで用いた発生源推定法がうまく当てはまらない場合も多かった。これらについては大気汚染の発生源のデータだけでなく、室内での汚染発生源(紙、コピー機など)のデータの調査が必要である。また測定成分として元素状炭素(可能なら有機炭素)を加えることで、より正確に求めることができると考えられる。

表 2.7.1 発生源データ

成分	発生源(mg/kg)					
	海塩	道路粉じん	自動車	重油燃焼	廃棄物	鉄鋼
Na	304000	11000	80	3540	107000	14000
Al	0	65000	200	3370	9700	10000
K	11000	9700	2340	24400	146000	13000
Ca	12000	60000	450	1970	87000	45000
V	0	210	50	3600	2	130
Mn	0	1500	120	39	94	22000

一都三県公害防止協議会「平成 8 年関東浮遊粒子状物質合同調査結果報告書」<sup>4)</sup>より

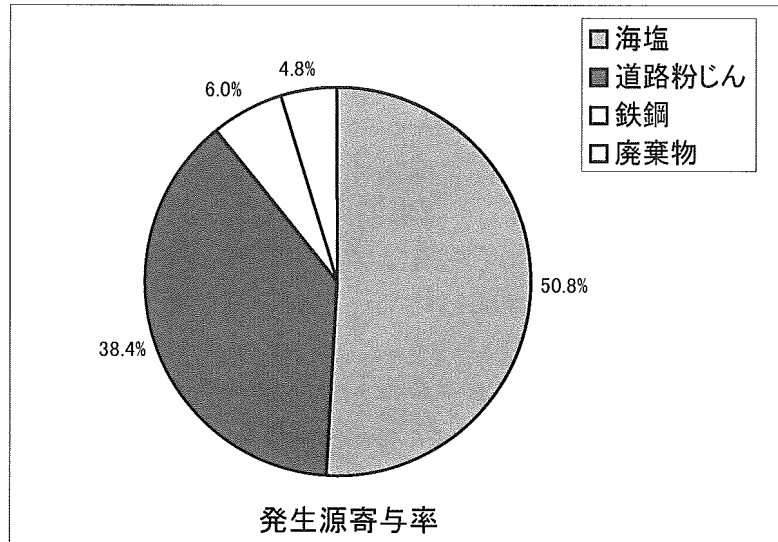


図 2.7.1 Eビル 屋外 フィルタ A(>2.5 μm)

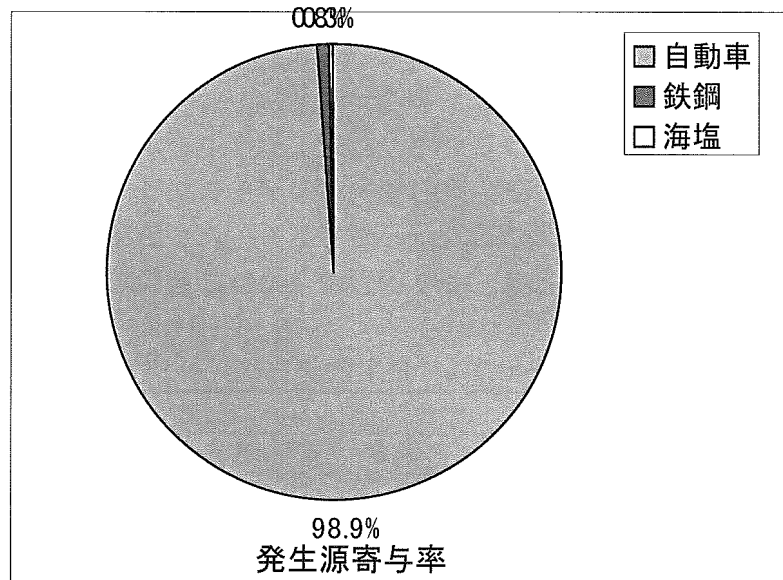


図 2.7.2 Eビル 屋外 フィルタ F(<0.25 μm)

## 2.8 パーティクルアナライザによる粒子状物質の化学組成分析

パーティクルアナライザはサイクロンパーティクルサンプラーやローボリュームサンプラーを用いてフィルタ上に捕集された微粒子を 1 個ずつアスピレータにより吸い上げ、順次 He マイクロ波誘導プラズマ (He-MIP) に導入し、プラズマ中で蒸発、原子化の過程を経て励起され、この励起に伴う発光スペクトルを利用して元素の定性を行うものである。従ってそれぞれの元素を含有する粒子個数を計測することができる。

また、パーティクルアナライザはプラズマ発光検出のため、ICP-MS 法で測定困難である炭素 (C)、ケイ素 (Si)、りん (P) なども測定可能であるなどの優れた特徴を有する。

今回、A ビル、C ビル、E ビルの 3 ビルを対象に、空調設備稼働時、非稼働時の室内空

気についてローボリュームサンプラーを用いて 2~6 L/min の流速で、30~120 分間、フィルタ捕集し、得られた粒子をパーティクルアナライザで測定した。測定元素は、リン(P)、カルシウム (Ca)、カリウム (K)、ナトリウム (Na)、けい素 (Si)、アルミニウム (Al)、炭素 (C)、マンガン (Mn)、銅 (Cu)、チタン (Ti)、亜鉛 (Zn)、ニッケル (Ni)、ジルコニウム (Zr)、コバルト (Co)、クロム (Cr) の 15 元素とした。また室内空気測定にあわせて外気の測定も実施した。

以下にパーティクルアナライザによる粒子状物質の化学組成分析結果を示す。

A ビルによる測定 (2004 年 3 月 9 日~10 日) では、室内空気を午前 10 時から翌日午前 2 時の間、合計 5 回 (10 時~12 時, 14 時~16 時, 18 時~20 時, 22 時~24 時, 24 時~翌日 2 時) の測定し、時間的な変化もみた。10 時~12 時, 14 時~16 時の 2 回は空調が稼動している状態で、18 時以降の場合は空調が止まった状態であった。また 10 時~12 時, 24 時~翌日 2 時においては、外気の測定も行った。測定結果を表 2.8.1 に示した。

表 2.8.1 A ビルにおけるパーティクルアナライザ測定結果

内外気	室内	室内	室内	室内	室内	外気	外気
実施日	04/3/9	04/3/9	04/3/9	04/3/9	04/3/9	04/3/9	04/3/9
開始	10:00	14:00	18:00	22:00	24:00	10:00	24:00
終了	12:00	16:00	20:00	0:00	2:00	12:00	2:00
捕集時間	120mi	120mi	120mi	120mi	120mi	120mi	120mi
流速	3L/mi	3L/mi	3L/mi	3L/mi	3L/mi	2L/mi	2L/mi
捕集量	360L	360L	360L	360L	360L	240L	240L
空調	空調	空調	非空調	非空調	非空調	空調	非空調
ラベル No	No190	No191	No192	No193	No194	No195	No196
P (個/m <sup>3</sup> )	6830	6570	9240	3630	1310	7850	5650
Ca (個/m <sup>3</sup> )	27500	16100	25700	42200	20000	82300	59400
K (個/m <sup>3</sup> )	20900	16500	21200	16000	3040	14500	11900
Na (個)	31600	18200	28300	31900	7750	23500	21300
Si (個/m <sup>3</sup> )	19300	11500	17000	13600	3820	23500	19400
Al (個/m <sup>3</sup> )	840	1470	1590	1310	706	2440	3180
C (個/m <sup>3</sup> )	37800	19700	27500	70400	44200	14400	13700
Mn (個)	15900	9600	12400	8500	2690	14800	13800
Cu (個/m <sup>3</sup> )	12900	5780	7090	2380	761	4080	4080
Ti (個/m <sup>3</sup> )	8000	5650	6070	3610	1200	5650	4670
Zn (個/m <sup>3</sup> )	17700	9650	12100	7160	1590	6270	8680
Ni (個/m <sup>3</sup> )	3190	2300	3350	1550	808	3970	2350
Zr (個/m <sup>3</sup> )	1330	1470	1510	651	785	2670	1300
Co (個/m <sup>3</sup> )	2300	2720	2510	1230	785	3920	2040
Cr (個/m <sup>3</sup> )	2140	2120	2100	863	337	2940	2270

同様に、C ビル (2004 年 7 月 6 日), E ビル (2004 年 10 月 26 日) についても測定した。この場合、室内測定では、空調稼動時と空調非稼動時の 2 回、それぞれ測定を実施し、これらに対応した外気測定も行った。得られた結果を表 2.8.2 に示した。