

グラム 2 で 138[$\mu\text{g}/\text{h}\cdot\text{unit}$]から 40.5[$\mu\text{g}/\text{h}\cdot\text{unit}$]、プログラム 3 では 146[$\mu\text{g}/\text{h}\cdot\text{unit}$]から 69.1[$\mu\text{g}/\text{h}\cdot\text{unit}$]となった。いずれのプログラムでも、ベイクアウトによる MEK 発生量の低減効果が示された。

ホルムアルデヒドと VOC の発生量低減率は、両物質において相対湿度を増大させることにより、発生量低減率の向上が示された。

ii) 多孔質材のベイクアウト

本研究は、1) 畳材の化学物質発生量と 2) 室内空気汚染低減対策技術として期待されるベイクアウト技術²⁾を畳材に適用した場合の化学物質発生量低減率を定量的に明らかにした。

畳材の化学物質放散速度測定では、全ての畳材において、アセトン、2-プロパノールが多量に検出された。当該物質が検出された原因として、畳材の作製から実験開始までの間に付着したことが考えられる。建材畳においては、他の試験片と比べブタノール、酢酸ブチルが多く検出された。

ベイクアウト実施に伴う化学物質発生量の低減性では、ベイクアウトの実施に伴い、トルエン放散速度が 46.9 [$\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$] から 0.91 [$\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$] に減少した。建材履歴試験においては 41.9 [$\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$] から 9.55 [$\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$] に減少した。ベンゼンについては、トルエンと同様の傾向が示された。また、建材畳、稲わら畳(防虫シート無)においても同様の傾向が確認された。次に、チェンバー内の濃度測定値から化学物質発生量低減率を求めた。ベイクアウトによる発生量低減率 R_b [%] は、今回の実験条件の場合、建材履歴試験による発生量低減率 R_m は大きくなることが確認された。これは、高濃度の VOC 濃度環境下に短期間の設置であったため、VOC が畳材の表面にとどまり、放散し易い状態であったことが考えられる。実環境において、ガス状汚染物質は内部(畳床)に徐々に浸透するものと考えられ、この場合の R_m は小さくなり、今回の実験結果とは異なる傾向を示す可能性が示唆された。

I-2. 6. 循環型換気システム

本研究では定常ガス発生装置を用いて、新たな試験評価方法による循環型換気システムの除去性能確認試験を行い、同換気システムの性能検証を行うことを目的とした。

換気システム運転に伴うホルムアルデヒド濃度の経時変化は、機器運転 30 分後にチェンバー内濃度は急激に減衰し、機器のホルムアルデヒドに対する優れた除去性能が確認された。エチルベンゼン、*m*-キシレン、スチレン濃度の経時変化は、機器運転後、チェンバー内濃度は緩やかに減衰し、機器の VOC に対する除去性能が確認された。

ホルムアルデヒド定常発生時のワンパス除去率は、機器運転当初では 47.0[%]と高く、平均では 39.0[%]となった。相当換気量は、機器運転当初では 35.2[m^3/h]となり、平均では 29.2[m^3/h]となった。

VOC の定常発生時のワンパス除去率は、機器運転当初では 12.4~20.5[%]で、平均では 9.40~13.6[%]となった。相当換気量は、機器運転当初では 9.3~15.3[m^3/h]で、平均では 7.07~10.2[m^3/h]となった。ただし、ホルムアルデヒドと同様に、雰囲気中 VOC 濃度の減衰に伴い、相当換気量も減少した。

I-2. 7. 発生抑制技術

室内化学物質の発生抑制技術の検討を行うことを目的として、建材等の化学物質放散面をある方法(ビニール製被覆テープ、杉製カバー、塗料により被覆、コーティング)で被覆し、化学物質発生量の低減性を実測調査、実験室実験により明らかにした。

i) チャンバー試験

発生抑制技術(S1~S5)によるエタノール発生抑制効果を3日間にわたって検証した。各試験片(S1~S5)の化学物質放散速度と低減率を求めると、S1(ブランク検体)のエタノール放散速度は 497~897[$\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$]の範囲であった。S2(ビニールテープ)のエタノール放散速度は 606~467[$\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$]であり、

被覆 3 日後に放散速度の減少を確認した。S3 (ビニールシート) のエタノール放散速度は 1070~2101[$\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$]の範囲であり、被覆 3 日後では 50[%]程度の抑制効果が見られた。S4 (水性アクリルエマルジョン+水性ウレタン塗料) のエタノール放散速度は 351~1998[$\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$]の範囲であり、低減率は 3 日目で 82.4[%]と全検体中最も高い低減率を示した。S5 (油性ウレタン塗料) のエタノール放散速度は 457~495[$\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$]の範囲であり、被覆処理による発生抑制効果は確認されなかった。S3 (ビニールシート) と S4 (水性アクリルエマルジョン+水性ウレタン塗料) において、被覆・コーティング処理に伴うエタノール発生量の抑制効果が確認された。

VOC 成分別の放散速度では、S5 (油性ウレタン塗料) において、塗料塗布後 1 日目に溶剤系化学物質の大幅な濃度上昇が確認された。しかし、3 日目には濃度は急激に減衰しており、表面蒸散型の発生特性が確認された。

ii) 住宅設置による調査

ビニール製被覆テープによる被覆処理前後の TVOC 濃度はそれぞれ 395 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]、371 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] であり、有意な変化は認められなかった。ただし、エタノール濃度は被覆処理に伴い、346[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]から 187[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]に減衰した。一方でトルエン濃度は 4.95[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]から 87.5[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]と被覆処理後にむしろ濃度が上昇した。ビニール製被覆テープの被覆処理により、エタノール濃度が約 55[%]低減した。ただし、被覆処理前後の室温に差異があり、ビニール製被覆テープ被覆処理による低減効果を確認するには至らなかった。また、トルエン濃度の上昇が示されたが、これはビニール製テープの接着剤からの放散が考えられる。

杉製カバーの設置前後の TVOC 濃度はそれぞれ 254 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]、865 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] であり、設置後に濃度が上昇した。成分別ではエタノール濃度が設置後に 155[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]から 832[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]に上昇した。一方でトルエン濃度は 93.3[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]から 3.66[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]に減衰した。杉製カバーに使用されている接着剤は、澱粉

系の接着剤であり、杉製カバー自体からのエタノール発生は考えにくい。室内エタノール濃度上昇の原因は、暖房器具運転に伴い室温が上昇し、エタノール発生源の発生量が増大したことによると考えられる。また 2F 居間において、封止系塗料は柱、梁のみならず、同室内にあるテーブル、サイドボード等にも塗布されており、これらからのエタノールの発生が測定結果に影響を与えている。特に、テーブルは杉製カバーの設置後に同室内に搬入されたものであり、同家具の発生強度は無視できない。

I-3. 実測調査による室内化学物質濃度の実態把握と対策技術の検証

種々の室内空気低減化泰作品を一般住宅おるいは事務室などに設置し、その効果を検証した。

I-3. 1. 一般住宅

本研究では、種々の空気汚染対策製品・技術を適用した住宅において、実測調査を行いその濃度低減効果を明らかにした。測定対象住宅は、東北地方の RC 造 3 階建ての一般住宅で、測定は 2004 年に 4 回、2006 年度に 6 回、2007 年に 1 回の計 11 回行った。

i) 化学物質の濃度

各室のホルムアルデヒド濃度は 4.3~28.8[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]の範囲にあり、全体的に低い値を示した。2006 年 9 月期における測定濃度が比較的高値であったが、測定日の室温が高いことに起因したと思われた。

各室の VOC 濃度は 37~2146[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]の範囲にあり、特に 2F の各室で高い値を示した。成分別ではエタノールが高濃度で検出された。室内濃度は 104~2108[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]の範囲にあり、平均値で 607[$\mu\text{g}/\text{m}^3$]であった。特に、1F 和室(西)は TVOC 値の約 98[%]がエタノールであった。2F 和室(西)では天井面(サワラ材に有機溶剤系塗装仕上げ)に VOC 放散抑制のため、封止系塗料を使用しているが、今回の調査で竿縁部分の塗膜形成が十分に成されていないことが判明した。これにより高濃

度のエタノール汚染が引起こされたものと考えられた。

各室の SVOC 濃度は数 $[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ 程度であった。フタル酸ジエチル、フタル酸ジエチルヘキシルが検出された。

ii) 一般住宅における低減対策品導入による実態調査

3F ホールにおいては、光触媒カーテンが使用されている。当該製品の適用前後の日程(2004年10月4日と12月29日)で試料空気の捕集を行った。光触媒カーテン使用前後におけるホールの VOC 濃度を比較すると、エタノールについて変化が認められた。当該製品の使用により、エタノール濃度は $401[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ から $270[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ に推移し、換気回数と室温等の変化がなければ、約 33[%]の濃度低減効果が示されたことになる。他の VOC については、測定値も低く有意な変化は見られなかった。

2F の居室とホール等の壁面には、ホルムアルデヒド分解剤入りの珪藻土建材が使用されている。珪藻土建材を使用する前後の日程(2004年11月15日と12月29日)で試料空気の捕集を行った。当該製品の使用前後における室内濃度を比較すると、トルエンは $70[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ から $4[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ 、リモネンは $38[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ から $5[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ に濃度が低減した。しかし、エタノール濃度は $212[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ から $262[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ にむしろ上昇している。塗布前後の室温に差があり、珪藻土建材の吸着効果を確認するには至らなかった。

3F 寝室においては吸着カーペットが敷設されている。吸着カーペット敷設前後の日程(2004年11月15日と12月29日)で試料空気の捕集を行った。吸着カーペットには、ホルムアルデヒドキャッチャー剤が使用されており、その濃度低減効果が期待された。しかし、当該製品敷設前のホルムアルデヒド濃度はそもそも低く $4.5[\text{ppb}]$ であり、敷設後は $0[\text{ppb}]$ になったが、当該製品による吸着効果かどうかは疑わしかった。また、アセトアルデヒド濃度は敷設前後で $5.6[\text{ppb}]$ と $6.9[\text{ppb}]$

であり、そもそも測定濃度が低く有意な吸着効果は示されていない。吸着カーペット敷設後でエタノール、 α -ピネン濃度の上昇が示されたが、同製品からの発生物質ではないと思われる。すなわち、同製品敷設前後の室内温度差が約 $5[^\circ\text{C}]$ あり、これによりこれらの物質の室内発生源発生量が増大し、室内濃度を上昇させたものと思われる。

3F 和室西においては空気清浄機を使用した。空気清浄機運転前後(2004年12月29日と11月15日)に試料空気の捕集を行った。空気清浄機運転に伴い、エタノール、 α -ピネン、TVOC濃度が、それぞれ 147 から $78[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ 、 21 から $2[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ 、 182 から $101[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ に低下した。空気清浄機運転による効果とみなす事もできるが、非運転日は温度が $5[^\circ\text{C}]$ 高いため、他の事例と同様に効果を確認するには至らなかった。

全室で第1種換気システムを運転した。第1種換気システム運転前後の日程(2006年10月10日と11月7日)で試料空気の捕集を行った。第1種換気システム運転前後の3F 寝室の化学物質濃度を比較すると、明らかな室内濃度低減効果が認められる。例えば、エタノールが $142[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ から $73[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ 、 α -ピネン $18.6[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ から $6.59[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ に低減した。また、2F 居間濃度はエタノールが $317[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ から $61.2[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ に低減した。当該第1種換気システム運転前には、第2種換気システムが運転されていた。この室内濃度低減効果により、当該換気システムの換気性能は第2種換気システムよりも大きな実態が示された。

畳材による VOC と農薬系化学物質汚染の実態を把握するダイアジノン、フェノブカルブ等の化学物質は検出されなかったために、測定対象室に於いて畳の入れ替えを行い、室内 VOC と SVOC 濃度を測定した。畳は稲わら畳、建材畳、化学畳等到大別される。稲わら畳と建材畳あるいは化学畳から、農薬系化学物質(SVOC)と VOC の発生が懸念される。そこで、これらの発生活化学物質を検証するため、2F 和室(西)(東)に農薬使用量を削減した

農薬系化学物質発生抑制仕様の畳（以下、農薬低放仕様散畳）を敷設し、その後農薬不使用の化学畳に変更した。試料空気の捕集は農薬低放散仕様畳敷設後（2006年12月29日）と化学畳敷設後（2007年1月6日）に行った。結果として、農薬低放散仕様畳と化学畳敷設後において、検出されたSVOCの室内濃度は低く、クロルピリホス、ダイアジノン、フェノブカルブ等の化学物質は検出されなかった。また、農薬低放散仕様畳あるいは化学畳敷設後に共に検出された物質はフタル酸ジブチルとフタル酸ジ-2-エチルヘキシルであった。

iii) 浴室における家庭用品中化学物質の暴露に関する研究

浴室内での化学物質暴露の実態を明らかにするため、協力者5名の入浴時の浴室内空気を採取して加熱脱着-GC/MSによる測定を行い、定性的及び半定量的な検討を行った。

研究方法は、入浴中に75 m³/minの流速で浴室内の空気を採取し、直列に接続した2本のTenax TA吸着管(Supelco)に化学物質を吸着させ、TD-GC/MSによる浴室内化学物質を分析した。

何れの浴室内空気からも香料に由来するD-Limoneneなどのテルペン類が検出された。その他に、揮発性環状シリコーンOctamethylcyclotetrasiloxaneも全ての浴室から検出された。

浴室内で使用する家庭用品由来のD-Limonene、Octamethylcyclotetrasiloxane、BHTでは、D-Limoneneが90-400 µg/m³、Octamethylcyclotetrasiloxaneが30-300 µg/m³の濃度範囲で存在することが明らかになった。

これらの研究結果から、浴室内D-Limonene濃度(90-400 µg/m³)は、筆者らが今年度実施した室内の揮発性有機化合物に関する実態調査で得られた居間のD-Limonene濃度(中央値13 µg/m³)の7-30倍という極めて高い濃度であった。また、浴室空気中にOctamethylcyclotetra- siloxane

及びBHTが存在することを見出した。Octamethylcyclotetrasiloxaneはエストロゲン作用をもつことが報告されている化合物で、BHTがマウスで肺発がんプロモーター作用を示すことが明らかにした。

以上のことより、水道水に由来する化学物質に加えて、家庭用品に由来すると考えられるD-Limoneneなどのテルペン類や揮発性シリコーンOctamethylcyclotetrasiloxane、抗酸化剤Butylated Hydroxytoluene(BHT)が検出された。

iv) 大学施設における揮発性有機化合物に関する研究

家庭用品の室内空気への影響をみるため、公共施設と一般住宅における室内VOCs濃度の測定を行い両者の濃度比較とVOCsの特異性を検討した。なお、公共施設として新築大学を選定し比較検討した。

試料採取場所は、対象施設(新築大学)の室内外としたが、室内の測定対象部屋は、倉庫、実験室、研究室などタイプや用途の異なる5部屋を選択した。

大学施設において測定したVOCsの分析結果は、竣工後の検出成分数は67~75成分であった。1ヵ月後は43~58成分で、3ヵ月後は53~83成分であり、多少の変動が見られた。なお、外気は竣工後、1ヵ月後、3ヵ月後で各々52、25、34成分であった。検出成分数は竣工後に比べ1ヵ月後は減少したが、3ヵ月後には増加した。3種類共にTVOC濃度は概ね、竣工後>1ヵ月後>3ヵ月後の順で濃度が高かった。次に、竣工後、1ヵ月後、3ヵ月後のTVOC濃度を比較すると、「VOC総和」の竣工後は203.8~6197.1µg/m³(平均1752.0µg/m³)であったが、1ヵ月後は127.5~702.1µg/m³(平均409.6µg/m³)、3ヵ月後は114.9~527.4µg/m³(平均282.7µg/m³)と平均濃度は竣工後と3ヵ月後では1/6に時間経過と共に減衰する傾向が見られた。全ての部屋で厚生労働省ガイドライン対象物質であるToluene、Xylene、Ethylbenzene、Styreneの芳香族炭化水素類が検出され、いずれも上

位 10 成分の入っていた。一般住宅でも同様の傾向が見られることから、これらの成分は一般的な建築資材に含まれていると考えられる。その他、Ethanol、2-Ethyl-1-hexanol が各部屋で検出され、特に 2-Ethyl-1-hexanol は全ての部屋で高い濃度を示した。

さらに、B1F 倉庫（竣工後）の 1,3,5-Trichlorobenzen、7F 研究室（3 ヶ月後）の Hexachlorocyclopentadiene など特異的な物質も検出された。

なお、密閉度の高い B1F 倉庫（竣工後）では、n-Decane 濃度(1750 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)が高く、他の部屋と異なり Trimethylbenzen(1256 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)が高濃度で検出された。

以下の結果より、日本の住宅の 70%が木造建築であり、テルペン類の主な発生源は木質系建材であることから一般住宅では濃度が高く、大学施設では鉄筋建築が主体のため濃度差が現れた。

また、大学施設は一般住宅に対し芳香族炭化水素類、脂肪族炭化水素類が多いことから大学等のオフィスビル施工者は一般住宅よりも室内化学物質による健康影響の意識が低いことも考えられた。

これらより、家庭用品に対する什器が搬入されている部屋で TVOC 濃度が高い傾向が見られた。これは竣工後に持ち込んだ什器などから VOCs が放散した影響を受けた結果と考えられた。

2-Ethyl-1-hexanol が全ての部屋で検出された。この物質は、アルコール類であり人体に対し呼気からの吸収や代謝作用を考慮すると、今後、健康影響を評価するのに重要な因子とも考えられる。また、特異的に 1,3,5-Trichlorobenzen や Hexachlorocyclopentadiene などが検出された。

I-3. 2. 事務室

本研究では、実在事務室の備品を除く 1)主要発生源の仕様、使用量、化学物質発生量を明らかにし、また 2)事務室内濃度の実測調査を行った。室内濃度予測法を用いて、3)室内濃度予測

を行い、実測値との関係から、4)使用建材、内装材、施工材が事務室内空気質に与える影響を解明した。本研究では、内装材(8 検体)と施工材(接着剤、3 検体)を測定対象とした。測定対象化学物質は、揮発性有機化合物(VOC(50 成分))、ホルムアルデヒド、フタル酸エステル類化合物(SVOC(6 成分))とした。

i) 化学物質

ホルムアルデヒドでは、長尺塩ビシート(A)(B)、ビニルクロス(A)(B)、ビニル系巾木、塩ビ系ブラインド、アクリル系カーペット、カーペット滑り止め材の放散速度は 0.38~5.34 $[\mu\text{g}/\text{h} \cdot \text{m}^2]$ で、接着剤は 8.96~18.2 $[\mu\text{g}/\text{h} \cdot \text{m}^2]$ の範囲にあった。

内装材と接着剤の VOC 放散速度は、長尺塩ビシート(A)において、165 $[\mu\text{g}/\text{h} \cdot \text{m}^2]$ と比較的大きな放散速度が示された。発生が確認された主成分はエチルベンゼン、キシレンである。接着剤の放散性を調べたところ、床用接着剤で 19324 $[\mu\text{g}/\text{h} \cdot \text{m}^2]$ の放散速度が示された。顕著な発生が確認された主成分は、デカンと 1,2,4-トリメチルベンゼンである。巾木用接着剤からはエチルベンゼンの発生が確認されたが、澱粉系の壁用接着剤からはほとんど放散が見られなかった。

内装材をチェンバー内に設置し、フタル酸エステル類化合物濃度を測定した。長尺塩ビシート(A)からはフタル酸ジ-2-エチルヘキシル、カーペット滑り止め材からはフタル酸ジエチルの発生が確認された。

事務室(A)、(B)の濃度はそれぞれ、ホルムアルデヒドは 13.3 $[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ 、27.1 $[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ 、TVOC は 194 $[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ 、253 $[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ であった。

ii) 室内の濃度予測

本実験で得られた化学物質発生量を室内濃度予測式に代入して、事務室(A)、(B)の室内濃度予測を行った。各内装材の使用面積、放散速度、放散量の予測条件は、事務室(A)において室換気回数 n : 1.14[1/h]、室気積 R : 56.3 $[\text{m}^3]$ 、吸着速度 a : 0[m/h]、事務室(B)においては室換気回数 n : 0.72[1/h]、室気積 R : 82.3 $[\text{m}^3]$ 、吸着速度 a : 0[m/h]とし、内装材下

地に使用した接着剤の放散速度は $0[m/h \cdot m^2]$ とした。

事務室におけるホルムアルデヒドと VOC の濃度予測結果は、ホルムアルデヒド、TVOC とともに実測値よりも低い値となった。ホルムアルデヒドでは予測値は実測値の約 48～62[%]、TVOC では約 17～31[%] の値となり、今回対象とした内装材が事務室内空気質に及ぼす影響が示された。事務室内には、建材以外にも机や事務機器等の発生源が存在するため、実測値が予測値を上回る結果が示されたが、今後さらにこれら事務機器等の発生量を明らかにし、物品を含めた室内濃度予測を行う必要があることが明らかとなった。

II. 家庭用品の未調査化学物質の検索と家庭用品中化学物質のデータベースの構築に関する研究

本課題では、平成 15 年度までの過去 8 年間にわたる全国調査により、室内空気中での存在が明らかとなった化学物質について発生源たる各種家庭用品それぞれの寄与率を評価するための基盤的研究を実施することとした。さらに、過去に調査がなされていない WHO 等の国際機関等により、室内汚染が指摘されている化学物質については存在実態を明らかにした上で評価を行うこととした。その具体的な研究テーマは以下の通りである。

1. 未調査化学物質の室内での存在に関する研究

2. 室内空気中化学物質発生源家庭用品データベースの構築に関する研究

昨年度は、2. のデータベースの構築に向けて、既に室内空気中化学物質のガイドライン値が設定されているホルムアルデヒドについて新しい毒性評価指針が示されたので、この化合物の毒性情報を収集した。

本年度は、1. 未調査化学物質の検討として、1.1. 室内における微小ナノ物質の挙動及び健康影響評価研究、2. 家庭用品に使用される化学物質のデータベースの構築に関する研究を行い、データベース構築に向けて、提出されたデータ

を下に暴露評価及びリスク評価手法を開発した。

II-1. 未調査化学物質の室内での存在に関する研究

II-1. 1. 家庭用品から放散される揮発有機化合物の相対的評価手法に関する研究

本研究ではマイクロチャンバー (μ CTE) による放散試験の High Throughput 化について検討を行った。

実験方法は、直径 45 mm の円形に裁断した検体を μ CTE のチャンバーにセットし、加湿純空気 20 mL/min の流速で通した。放散試験開始 1 日後、3 日後及び 7 日後に TO-17/2 吸着管 (Tenax TA/Carbograph 1TD/ Carboxen 1000) を用いて放散ガスをサンプリングした。86 種類の揮発性有機化合物 (VOCs) について Thermal Desorption-GC/MS による定量を行い行うとともに、AnalyzerPro ソフトウェアによるデコンボリューション解析を行った。

30 品目の家庭用品・建材について μ CTE 法による放散試験を実施し、1 日後、3 日後及び 7 日後の VOCs 放散量を測定した。塩化ビニル製品からフェノール及び *n*-アルカン類の放散がみられたこと、印刷物で炭素数 14 以上の *n*-アルカン類やアルキルシクロヘキサン類の放散がみられたこと、等が特徴的であった。クッションフロアの放散量が $5300 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$ と最も多く、その 50% 以上をトルエンが占めていた。ついで無垢フローリング 1 ($2700 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$)、塩ビ壁紙 ($1200 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$)、新聞 ($1100 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$) でも比較的多量の VOCs の放散が認められた。TVOC についても概ね個別 VOCs の場合と同様の傾向がみられ、個別 VOCs の総和としての放散量が多かったクッションフロア (1 日後の TVOC 放散量 $10000 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$)、塩ビ壁紙 ($7300 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$)、新聞 ($5700 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$)、無垢フローリング ($4700 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$) で多量の TVOC の放散が認められた。しかし、個別 VOCs の総量では放散量の低かった紙壁紙やポリプロピレンカーペットからもそれぞれ 2200 、 $1100 \mu\text{g}/\text{m}^2/\text{h}$ の TVOC 放散がみられ、家庭用品等から放散される化学物質を TVOC として総量で評価するこ

との重要性が再確認された。

これらの研究より、30品目の家庭用品・建材についてマイクロチャンバーによる放散試験を実施し、家庭用品から放散される化学物質のデータベース化に向けた High Throughput な放散試験として μ CTE法が有用な方法となり得ることを明らかにした。

II-1. 2. 室内における微小ナノ物質の存在量と挙動に関する研究

i) 室内における微小ナノ物質の存在量と挙動に関する研究

室内環境中には、建材や暖房器具、調理器具、家電製品、スプレーなどの家庭用品が存在し、ガス状物質、粒子状物質といった汚染物質の発生源となっている可能性が考えられる。

そこで、人への健康影響を総合的に評価するため室内環境のナノ粒子の領域を含んだ微小粒子領域の数濃度について実態を把握することとした。

微小粒子の測定は、携帯型凝縮粒子カウンター Model-3007 (TSI 製) を用いた。測定間隔は1秒とし、 $0.01\mu\text{m}$ ~ $1.0\mu\text{m}$ の範囲の粒子個数濃度 (p/cc) を測定対象とした。

(1) 事務所における数濃度

事務所の PC 稼動中に測定したところ、ベースは $1\sim 1.5\times 10^4$ p/cc 前後であったが、プリンタ使用時に若干数濃度が上昇する傾向が見られた。また、OA 機器の除塵用高圧ガススプレー (ガス成分: HFC-152a) を使用したところ約 1.6×10^5 p/cc と約 10 倍の数濃度が観測された。

(2) 一般住宅における数濃度

暖房器具、調理器具、家電製品、スプレーなどの家庭用品を使用した時の微小粒子数濃度の把握を目的とした。測定結果については一般住宅においてもベースの数濃度は概ね 1.0×10^4 p/cc であった。

(3) 走行自動車室内における数濃度

自動車車内における測定結果は、車内のベース数濃度は概ね $1\sim 1.5\times 10^4$ p/cc であ

った。一般道路走行時は最大で 7.0×10^4 p/cc、高速道路走行時は $1\sim 2.0\times 10^5$ p/cc 程度の数濃度が観測された。

本研究は以下のような結果が得られた。

- 1) 事務所、一般住宅及び走行自動車車内のバックグラウンド (ベースとなる数濃度) は概ね $1\sim 1.5\times 10^4$ p/cc であった。
- 2) 事務所内で OA 機器使用時に除塵高圧スプレーを使用すると 1.6×10^5 p/cc の数濃度が観測された。
- 3) 一般住宅では、暖房、調理及びヘアスプレー使用時に $2\sim 5.5\times 10^5$ p/cc オーダーの数濃度が観測された。なお、植物周辺でも数濃度の増加が観測された。調理の過程 (テフロンコーティングしたフライパンの使用時) でナノ粒子が増加することが報告されている¹⁵⁾が今回の結果はこれを裏付けるものである。
- 4) 走行自動車車内では、外気導入時に一般道路走行時に最大で約 7.0×10^4 p/cc、高速道路走行時に 10^5 p/cc オーダーの数濃度が観測された。
- 5) 室内や労働環境において自動車排気ガスと同程度もしくはそれ以上の微小粒子 (ナノ粒子含む) の数濃度が観測された。また、暖房、調理などの他にスプレーの使用などでも微小粒子が急激に増加する傾向が見られた。これらのことから人体への影響が懸念され、今後、粒径別の数濃度や家庭用品を使用する生活行為に伴う数濃度の増減など実態を把握することが重要と考えられた。

ii) 未調査化学物質の室内での存在に関する研究

近年、健康影響の観点から、 $10\mu\text{m}$ 以下の浮遊粒子状物質 (SPM) よりも微小な PM_{2.5} ($2.5\mu\text{m}$ 以下)、ナノ粒子などの研究が盛んに行われている。しかし、これらの調査の多くは自動車排出ガスを主とした一般環境におけるものが多く、室内環境における研究はシックハウス問題に係わる揮発性有機化合物調

査が多い。平成 17 年度調査で、室内環境中において暖房器具、調理器具、スプレーなどの家庭用品からナノ粒子を含む微小粒子は、外気導入時の走行車両内と同レベルの数濃度が観測された。

ナノ粒子は肺胞壁を通過し血中まで移行することが懸念されており、実態を把握する必要がある。平成 17 年度調査では、ナノ粒子を含む一定の粒径範囲の総数濃度を測定したに過ぎないが、今年度は粒径別にナノ粒子を測定し、より詳細な数濃度をについて把握した。

PM2.5 測定装置で一般家庭を想定した試験室にいれ、ナノ粒子の測定を行った。

生活行為におけるナノ粒子暴露を想定した内、喫煙時、暖房器具使用時を想定して測定を行った。概ね、 10^5 のオーダーの数濃度が観測された。より小さい粒子径の数濃度が多い傾向も見られるケースが多かった。道路沿道では数濃度自体も多いが、観測できる粒子径の範囲の内、より小さい粒子径の数濃度が多い傾向にある。また、経過時間とともに粒子の凝縮による粒子径の変化なども観測される。

今後は、より多くの生活行為を設定し実態を把握するとともに、健康に対する影響についても検討が必要となる。そのためにナノ粒子領域の重量、成分に関する定量的な調査も今後必要になるとと思われる。

II-2. 家庭用品に使用される化学物質のデータベースの構築に関する研究

平成 16 年度は、IARC の Press release で、従来 Group 2A(動物実験の証拠からヒトに対する発がん性があると推定される物質)に分類されていたホルムアルデヒドを Group 1(ヒトに対する発がん性が既知である物質)に分類することが報告された。そこで、ホルムアルデヒドのモノグラフに用いられた文献の入手のための探索及び入手した主要文献について日本語訳の翻訳を行った。

IARC モノグラフは、Section 1 - Exposure

data, Section 2 - Studies of cancer in humans, Section 3 - Studies of cancer in experimental animal, Section 4 - Other relevant data に分類されており、モノグラフの引用文献を入手した。入手した文献情報から、各 Section の文献 (Section 1 は 52 報、Section 2 は 66 報、Section 3 は 22 報及び Section 4 は 141 報) を収集した。また、特に重要と思われる文献について要旨の日本語の翻訳を行った (Section 1 は 16 報、Section 2 は 15 報、Section 3 は 13 報及び Section 4 は 14 報)。

ホルムアルデヒドはヒト鼻咽腔がんの外に、鼻腔と副鼻腔のがんに対する限られた証拠と、白血病に対する強いが十分ではない証拠も見出している。今回、IARC のモノグラフに用いられている文献情報を入手し、出来る限りの文献を収集し、特に重要な文献については、各 Section について約 15 報の要旨の日本語への翻訳を行った。

平成 17 年度は、現在 13 物質の指針値を厚生労働省は制定しているが、現実にはその数倍以上の化学物質が室内空气中に検出されているため、更に室内濃度指針値の策定の必要性があるものと思われる。そこで、日本の室内空气中で検出された揮発性有機化合物 (VOC) について GHS (Globally Harmonized System of Classification and Labeling of Chemicals) 分類に基づいて VOC の 10 項目の健康に対する有害性の情報を入手し、評価を行った。

日本の住宅室内空气中で平成 17 年に調査・報告され、中央値の高い 31 物質の VOC について、国内外のデータベース、評価書あるいは成書から有害性データを収集・評価した後、GHS 分類に基づいて 10 項目の健康に対する有害性の評価を行った。31 物質の健康に対する有害性は、①急性毒性 (経口、経皮、吸入)、②皮膚腐食性/刺激性、③眼に対する重篤な損傷性/刺激性、④呼吸器感作性または皮膚感作性、⑤生殖細胞変異原性、⑥発がん性、⑦生殖毒性、⑧特定標的臓器/全身毒性 (単回暴露)、⑨特定標的臓器/全身毒性 (反復暴露) 及び⑩吸引性呼吸器有害性について評価した。

吸入暴露での急性毒性で、トリデカン、テトラデカン、ドデカン、酢酸ブチルで強い急性毒性に分類された。これらの物質は毒物相当のLC50値を示していた。発がん性に関しては、ベンゼンでヒト発がん性が知られているの区分に、エチルベンゼン、1,4-ジクロロベンゼンでヒト発がん性が疑われる物質の区分に分類され、発がん性とベンゼンおよびその誘導体との関連性が考えられる。生殖毒性に関しては、トルエン、*p*-、*m*-、*o*-キシレン、ベンゼン、1,4-ジクロロベンゼン、ヘキサン、酢酸ブチルでヒトに対する生殖毒性が疑われるに分類された。

平成18年度は、家庭用品から室内環境中に放散する化学物質は、主に吸入経路により体内に侵入するが、化学物質の吸入毒性の情報は少ない。そこで吸入暴露による毒性を経口投与実験のデータから推定するための基礎データを得ることを目的としているが、個々の化学物質の経口等の暴露データ及びその物性を知る必要がある。そこで、トルエンとクロロホルムについて、GHS分類に基づいて、10項目の健康に対する有害性及び16項目の物理化学的危険性の情報を入手し、評価を行った。

トルエンとクロロホルムについて、国内外のデータベース、評価書あるいは成書から有害性データを収集・評価した後、GHS分類に基づいて10項目の健康に対する有害性及び16項目の物理化学的危険性の情報を入手し評価を行った。トルエンとクロロホルムの10項目の健康に対する有害性は上記の項目を評価した。また、物理化学的危険性は、①火薬類、②引火性/可燃性ガス、③引火性エアゾール、④酸化性ガス類、⑤高圧ガス、⑥引火性液体、⑦可燃性固体、⑧自己反応性化学品、⑨自然発火性液体、⑩自然発火性固体、⑪自己発熱性化学品、⑫水反応可燃性物質、⑬酸化性液体、⑭酸化性固体、⑮有機過酸化物及び⑯金属腐食性物質について評価した。

クロロホルムの急性毒性はやや強いに分類されたが、皮膚及び眼刺激性、生殖細胞変異原性、発がん性、生殖毒性、単回及び反復暴露で強い有害性に分類された。トルエンは急性毒性は弱

かったが、皮膚刺激性、生殖毒性、単回及び反復暴露で強い有害性に分類された。また、トルエンの物理化学的危険性は国連危険物輸送勧告で引火性液体に該当していた。

Ⅲ. 室内空气中化学物質の中長期低濃度及び短期高濃度の吸入毒性評価に関する研究

家庭用品中に含有する化学物質の吸入毒性の情報は極めて少ないので、家庭用品で用いられる化学物質のうち、昨年度までの研究の情報を基にプライオリティ上位の化学物質について、吸入毒性試験を実施することとした。室内空気暴露の条件は、長期間にわたる低濃度継続暴露から短期間における高濃度の間欠暴露まで、いろいろな暴露形態が考えられる。このことから、吸入毒性試験は28～90日間の亜急性毒性と1～数日程度の高濃度短期暴露試験の少なくとも2種の方法の試験を実施する。これらの試験において、従来の毒性指標に加えて、大脳辺縁系、呼吸中枢神経系、嗅覚神経系等の電気生理学あるいは薬理的検討と、嗅覚関連器官、神経関連器官及び免疫関連器官における機能生理学的などの新たな毒性指標の追加を検討することとした。ここで得られた情報を基に、長期暴露及び短期暴露のリスク管理の資料を得ることを目的として、以下のテーマで研究することとした。

1. 吸入による低濃度長期および高濃度短期の暴露における健康影響評価に関する研究
2. 免疫、神経、生理学あるいは生化学に関連する新たな毒性評価指標による影響に関する研究

今年度は、1.1.家庭空气中化学物質の中長期低濃度及び短期高濃度の吸入毒性評価に関する研究、1.2.低濃度アセトアルデヒド経気道暴露による生態影響評価、2.1.家庭用品中化学物質による過敏症の発現機構に関する研究について検討した。

Ⅲ-1. 吸入による低濃度長期および高濃度短期の暴露における健康影響評価に関する研究

Ⅲ-1. 1. 家庭空气中化学物質の中長期低濃度及び短期高濃度の吸入毒性評価に関する研究

ⅰ) トルエンの吸入毒性の評価に関する研究

本研究は、吸入毒性を経口投与実験のデータから推定するための基礎データを得ることを目的として、トルエンをモデルとして、経口投与実験のデータから吸入暴露による生体影響を推定する換算式の有効性について体内暴露量を指標にして検証した。

実験方法は、トルエンを雄ラットに 25、50、100、200 ppm の濃度で 6 時間全身吸入暴露、また、25、50、100、200 mg/kg 体重の用量で単回強制経口投与し、血液中のトルエン濃度をヘッドスペース-GC/MS により経時的に測定し、体内負荷量 (Area Under the Curve、AUC) を算出した。経口投与の各投与用量に相当する AUC が得られる吸入の暴露濃度を、換算式 (経口投与用量×経口投与の吸収率=吸入暴露濃度×呼吸量×吸入暴露の吸収率) から算出した値と比較した。なお、ラットの呼吸量は 561 mL/kg 体重・分、吸収率は経口投与と吸入暴露が等しいとして計算した。

トルエンの AUC は、経口投与の場合、今回用いた投与用量の範囲内では投与用量の増加に相応して上昇した。これに対し、吸入暴露の場合には、暴露濃度の増加を超える上昇を示す現象がみられた。経口投与の用量 25、50、100 および 200 mg/kg に相当する AUC が得られる吸入暴露の濃度は、35、45、75 および 155 ppm であった。これに対し、換算式から得られた値は、それぞれ 32、65、129 および 258 ppm であった。

これらの結果から、換算式から得られた値は、AUC から推測される暴露濃度と比較して、低用量では一致し、高用量ではやや高くなるが 1.8 倍以内の差であり毒性を過小に推定すると考えられた。

トルエンをモデルとした検証では、経口投与の実験データから換算式を用いて吸入暴露による毒性を推定する方法は、呼吸量を 561 mL/kg 体重・分として換算すると、体内暴露

量に基づいて推測された暴露濃度に近似した値が得られる。ただし、高用量ではやや高い値になり、毒性を過小に推定するが、その差は 1.8 倍以内である。

ⅱ) トルエンとクロロホルムの吸入毒性の評価の違いに関する研究

17 年度は、クロロホルムをモデルとして、経口投与実験のデータから吸入暴露による生体影響を推定する換算式の有効性について体内暴露量を指標にして検証した。また、換算式を用いた推定における経口投与と吸入暴露の吸収率の要因について検討するため、トルエンとクロロホルムについて、吸収率が 100% と仮定できる腹腔内投与による体内暴露量を測定し、吸入暴露と経口投与による体内暴露量と比較することにより吸収率を推測した。さらに、呼気への化学物質の排泄量を測定する手法について検討した。

1) 換算式の有効性の検証

クロロホルムを雄ラットに 50、100、200、400 ppm の濃度で 6 時間全身吸入暴露、また、12.5、25、50、100 mg/kg 体重の用量で単回強制経口投与し、血液中のクロロホルム濃度をヘッドスペース-GC/MS により経時的に測定、AUC を算出し、平成 16 年度と同様の方法で経口投与の各投与用量に相当する AUC が得られる吸入の暴露濃度を、換算式から算出した値と比較した。

2) 吸収率の推測

トルエンとクロロホルムについて、腹腔内投与し血液中濃度を経時的に測定、AUC を算出し、吸入暴露と経口投与の AUC と比較することによって吸収率を算出した。

3) 呼気への化学物質の排泄

吸入実験装置に簡単な改良を加えた装置を作製した。トルエンを腹腔内投与したラットを装置内に入れ、装置内の空気から捕集管を用いてトルエンを捕集、分析し、この手法の有効性を調べた。

研究結果は、以下の通りである。

1) 換算式の有効性の検証

クロロホルムの経口投与の用量 12.5、25、

50 および 100 mg/kg に相当する AUC が得られる吸入暴露の濃度は、25 以下、45、120 および 195 ppm であった。これに対し、換算式から得られた値は、それぞれ 12.7、25、51 および 101 ppm であり、AUC から推測される暴露濃度と比較して 0.43~0.56 倍であった。

2) 吸収率の推測

トルエンの吸入暴露による吸収率は暴露濃度が 25 ppm で 20%、50 ppm で 29%、100 ppm で 62%、200 ppm で 59%、経口投与による吸収率は投与用量が 25 mg/kg で 28%、50 mg/kg で 19%、100 mg/kg で 27%、200 mg/kg で 38%であった。クロロホルムの吸入暴露による吸収率は暴露濃度が 50 ppm で 32%、100 ppm 群で 10%、経口投与による吸収率は投与用量が 12.5 mg/kg で 47%、25 mg/kg で 52%、50 mg/kg で 54%、100 mg/kg で 30%であった。

3) 呼気への化学物質の排泄

腹腔内投与したトルエンの量に対し、投与用量が 25 mg/kg で 34%、50 mg/kg で 46%、100 mg/kg で 42%、200 mg/kg では 73%が投与後 540 分までに捕集された。

これらの結果から、クロロホルムをモデルにした実験では、換算式を用いて計算した暴露濃度は体内暴露量に基づいて推測された暴露濃度に比べ約 0.5 倍低い値になり、毒性を過大に評価する可能性があると考えられた。この結果は、平成 16 年度に実施したトルエンをモデルにした実験の結果とは差があり、化学物質の種類によって換算式の有効性が異なることを示している。

クロロホルムの吸入暴露による吸収率（10%~32%）は各濃度とも経口投与による吸収率（30%~54%）に比較して低く、換算式から得られる値と体内暴露量からの推測値の差は吸収率の差が原因になっていると考えられた。トルエンについては、平成 16 年度の研究から、換算式から得られた値は AUC から推測される暴露濃度と比較して低用量では一致し高用量では 1.8 倍高くなるという結

果が得られている。トルエンの吸入暴露による吸収率は、低濃度では経口投与の吸収率に近似していたのに対し、高濃度では経口投与の約 2 倍であり、クロロホルムと同様に、換算式から得られる値と体内暴露量からの推測値の差は吸収率の差が原因になっていると考えられた。

トルエンの呼気中への排泄に関する過去の報告では、投与した量の約 20%から 40%が呼気中に未変化体として速やかに排泄されると報告されている。今回の方法での 25 から 100 mg/kg における捕集率（34%~46%）は過去の報告に近い値であり、今回開発した方法は呼気中への化学物質の排泄量の測定に有効な方法であると考えられた。

経口投与実験のデータから吸入暴露による生体影響を推定する換算式の有効性は、1) 化学物質の種類によって換算式の有効性が異なること、2) 換算式から得られた値と実際の値の間には約 2 倍から 0.5 倍の差が生じる可能性があることがわかった。換算式から得られる値と体内暴露量からの推測値の差は投与経路間の吸収率の差が原因である可能性が示唆され、換算式の使用に際して吸収率を考慮することの必要性が示された。また、呼気への化学物質の排泄量を測定するために吸入実験装置に簡単な改良を加えた装置を作製し、この方法の有効性を調べた結果、呼気中への排泄量の測定に利用できることがわかった。

iii) エチルベンゼンの吸入と経口毒性の評価に関する研究

18 年度は、トルエンと化学構造が類似したエチルベンゼンをモデルとして、経口投与と実験のデータから吸入暴露による生体影響を推定する換算式の有効性について体内暴露量を指標にして検証した。また、換算式を用いた推定における経口投与と吸入暴露の吸収率の要因について検討するため、腹腔内投与による体内暴露量を測定し、吸入暴露と経口投与による体内暴露量と比較することにより吸収率を推測した。

実験方法は、以下の通り。

1) 換算式の有効性の検証

エチルベンゼンを雄ラットに 25、50、100、200 ppm の濃度で 6 時間全身吸入暴露、また、25、50、100、200 mg/kg 体重の用量で単回強制経口投与し、血液中のエチルベンゼン濃度をヘッドスペース-GC/MS により経時的に測定、AUC を算出し、平成 16 年度と同様の方法で経口投与の各投与用量に相当する AUC が得られる吸入の暴露濃度を、換算式から算出した値と比較した。

2) 吸収率の推測

エチルベンゼンを腹腔内投与し血液中濃度を経時的に測定、AUC を算出し、吸入暴露と経口投与の AUC と比較することによって吸収率を算出した。

エチルベンゼンの経口投与の用量 25、50、100 および 200 mg/kg に相当する AUC が得られる吸入暴露の濃度は、28、76、292 および 524 ppm であった。これに対し、換算式から得られた値は、それぞれ 29、57、114 および 228 ppm であり、AUC から推測される暴露濃度と比較して低用量である 25 mg/kg 群はよく一致したが、高用量になるに従って低い値 (0.75 倍～0.39 倍) になった。

吸入暴露による吸収率は暴露濃度が 25 ppm で 40%、50 ppm で 38%、100 ppm で 25%、200 ppm で 22%、経口投与による吸収率は投与用量が 25 mg/kg で 34%、50 mg/kg で 60%、100 mg/kg で 49%、200 mg/kg で 51% であった。

換算式を用いて計算した暴露濃度は、低用量では体内暴露量に基づいて推測された暴露濃度に近似した。しかし、高用量になると低い値 (0.75 倍～0.39 倍) になり、毒性を過大に評価する可能性があると考えられた。吸入暴露による吸収率は、低濃度では 40% であり経口投与による吸収率と近似していた。しかし、高濃度では 22% になり経口投与の約 1/2 の吸収率になった。従って、換算式から得られる値と体内暴露量からの推測値の差は吸収率の差が原因になっていると考えられた。

iv) 経口あるいは腹腔内暴露からの毒性評価から吸入暴露の予測

トルエンとエチルベンゼンは化学構造が類似しているが、両者の体内暴露量 (AUC)、換算式の有効性、吸収率には差があり、化学構造が類似していても体内暴露量 (AUC) や換算式の有効性、吸収率が近いとは言えないことがわかった。また、両者の差は主に吸収率の差によって生じると考えられた。

トルエン (平成 16 年度) およびクロロホルム (平成 17 年度) をモデルとした検証結果と合わせ、1) 経口投与実験のデータから吸入暴露による生体影響を推定する換算式の有効性は化学物質の種類や用量によって異なること、2) 換算式から得られた値と実際の値の間には約 2 倍から 0.4 倍の差が生じる可能性がある結論された。換算式から得られる値と体内暴露量からの推測値の差は投与経路間の吸収率の差が原因である可能性が示唆され、換算式の使用に際して吸収率を考慮することの必要性が示された。また、化学構造が類似しているトルエンとの比較から、化学構造が類似していても体内暴露量 (AUC) や換算式の有効性、吸収率が近いとは言えないことがわかり、個々の化学物質について経口投与と吸入暴露の吸収率を測定することが必要であると結論された。

III-1. 2. 低濃度アセトアルデヒド経気道曝露による生体影響評価

近年我々の生活環境中の化学物質の種類増加は著しい。さらにオフィスや住宅の建材の変化・気密性の増加なども加わり、種々の症状を訴える人が増加し、シックビルディング症候群あるいは化学物質過敏症 (以下 MCS) という概念が提唱され、その対応が緊急に迫られている。一方で MCS に関しては概念・病態は解明されておらず、定義もいくつかあるなどコンセンサスが得られていない部分が多く問題が残されている。

ホルムアルデヒドの発生源、MCS への関与などの指摘より代替物質としてのアセトアルデヒ

ドの使用増加が懸念される。アセトアルデヒドはラットの経気道曝露による鼻腔臭覚上皮への影響を考慮して室内濃度指針値 30ppb が設定されている。この様な状況下で本研究ではアセトアルデヒドについて経気道曝露実験系を確立し、その生態影響を評価することを実施した。

実験は、吸入曝露装置の開発、アルデヒド代謝酵素のノックアウトマウスによるバイオ、変異、免疫、病理学的検索を行った。

アセトアルデヒドガスの発生には、当初ディフュージョンチューブ法（ガス拡散管法）を用いた動的ガス発生法によったが、曝露開始時に濃度調整がやや不安定な時間があるため、発生装置を改良し特殊なメンテナンスをほとんど必要とせず安定した曝露を実施できる圧力容器による発生法を完成した。

1. 曝露濃度および体重変化：曝露法を改良したことにより非常に安定した曝露が実施できた。各群の体重を計測観察した結果、ALDH2 活性を有する野生型マウスでは体重増加が観察されたが、*Aldh2*^{-/-}マウスでは 500ppm 曝露により体重減少が認められた。
2. バイオロジカルモニタリング：アセトアルデヒド曝露により両系統マウスとも濃度依存的に有意な付加体の増加を認め、特に *Aldh2*^{-/-}マウスにおいて顕著であり、*Aldh2*^{+/+}マウス比べ有意に高値であった。
3. 変異原性試験：小核頻度および *TCR* 遺伝子座突然変異頻度ともに *Aldh2*^{+/+}マウスにおいては 500ppm 曝露においても有意な増加を認めなかったが、*Aldh2*^{-/-}マウスにおいては濃度依存的に有意な増加を認めた。
4. 免疫学的検索：
 - ①脾細胞数・細胞分画：各群マウスの個体あたりの脾細胞数の相違は、認めなかった。脾細胞中の細胞分画を FACS にて解析した結果、大きな変化は認めなかった。
 - ②細胞増殖：マイトジェン刺激したときの細胞増殖を Stimulation index で比較した。LPS 刺激では、アセトアルデヒド曝露群においてもコントロール群と差異は認めなかったが、Con A 刺激に際しては、ア

セトアルデヒドの曝露濃度依存的に細胞増殖の増大が観察された。

- ③サイトカイン類の測定：脾細胞を LPS 刺激した培養上清中の IL-6 濃度、あるいは各群マウスの肺胞洗浄液中の各サイトカイン濃度は、特に相違を認めなかった。

5. 病理学的検索：頭部鼻腔組織に関して、一般に鼻腔上方は一部を嗅上皮、下方を扁平上皮、呼吸上皮で覆われている。野生型マウスにおいて 125ppm 曝露群においてもこれら組織において上皮のびらん、出血、変性像などの明らかな変化は認められなかった。

アセトアルデヒドの人への健康影響としては、飲酒時のいわゆる二日酔いの原因物質の一つとして知られる。また蒸気は目、鼻、のどに刺激がある。目に侵入すると結膜炎や目のかすみを起こす。長期間の直接接触により発赤、皮膚炎を起こすことがある。高濃度蒸気の吸入による中毒症状として、麻酔作用、意識混濁、気管支炎、肺浮腫等があり、初期症状は慢性アルコール中毒に似ている。また日本人を含む東洋人の約半数においては生体内においてアセトアルデヒドを主に代謝するアルデヒド脱水素酵素活性を欠損していることが知られている。

曝露系は、初年度、10ppm 前後の低濃度アセトアルデヒドの吸入曝露実験系を確立した。初年度の方法を改良して次年度は 25ppm、125ppm の濃度にてマウス経気道曝露を実施し、変異原性試験、免疫学的パラメーターの変化、病理学的変化の有無などについて包括的に観察し、生体影響を検討した。

その結果、この程度の曝露濃度・曝露期間では、病理学的に明らかな悪影響を思わせる変化は認めなかった。また赤血球中のアセトアルデヒド-ヘモグロビン付加体濃度は、25ppm、125ppm、どちらの曝露も増加が観察されなかった。さらに 125ppm 曝露を行っても、TCR 遺伝子座突然変異の検出系では突然変異の増加は観察されなかった。今回の実験結果のように比較的低濃度曝露では、生体内代謝が早いので、ヘモグロビン付加体や変異原性が観察可能なほど血中濃度が

高値を維持しないことが示唆された。

一方アセトアルデヒドは *in vitro* の実験系では種々の変異原性試験において陽性結果も得られ、さらに *in vivo* における小核試験などでも陽性所見が報告されている。国際がん研究機関 (IARC) の分類では 2B (人に対して発がん性があるかもしれない) に分類されている。また前述のように遺伝子多型により日本人の約半数においてはアルデヒド脱水素酵素活性を欠損している。これらの人においてはアセトアルデヒドに対して高感受性を示す可能性が懸念される。そこで最終年度においてはアルデヒド脱水素酵素活性欠損のモデルマウスを導入して実験した。その結果、ヘモグロビン付加体、各種変異原性試験いずれにおいても *Aldh2*^{-/-}マウスにおいては高感受性を示すことが確認された。

また、免疫学的パラメータに関しては、マイトジェン刺激に伴う細胞増殖の増強などの変化が観察された。特に T リンパ球系のマイトジェンである ConA 刺激に関しては明らかな増殖能の増加が認められた。各種サイトカインに関しては変化は認められなかったが、この程度の濃度のアセトアルデヒドの経気道曝露で免疫系のパラメータが変化することは興味深いことであり、今後さらに検討が必要と思われる。

Ⅲ-2. 免疫、神経、生理学あるいは生化学に関連する新たな毒性評価指標による影響に関する研究

Ⅲ-2. 1. 家庭用品中化学物質による過敏症の発現機構に関する研究

N-メチル-D-アスパラギン酸(NMDA)受容体は、学習や記憶など中枢系の本質的な機能に対して重要な役割を引き起こす。近年、本態性多種化学物質過敏症の発症機序のひとつとして化学物質によるこの受容体の活性化が指摘された。従って、この受容体を指標とした迅速かつ簡便な定量法の開発は家庭用品から排出される化学物質のリスクを評価する上で重要であると考えられる。そこで今回、NMDA 受容体のサブタイプである NR1 splice variant の SYBR Green リアルタイム PCR 法による分別

定量法の開発を行った。

マウス海馬由来 totalRNA から、逆転写反応により cDNA を合成した。NR1 遺伝子の N 末と C 末領域を増幅させるプライマーを用いて PCR 法により 8 種の splice variants に相当するフラグメントを増幅した。各フラグメントを pCR4-TOPO ベクターにサブクローニングし、塩基配列を確認した後に、定量用のスタンダードとして用いた。それぞれのリアルタイム PCR による mRNA 発現量の定量には SYBR Green PCR Master Mix (Applied Biosystems)を用いた。

それぞれの variant に特異的な領域約 100 bp を増幅させるプライマーを設計し、定量用スタンダードを鋳型としてリアルタイム PCR を行った。その結果、対応する variant 特異的プライマーと定量用スタンダードの組み合わせの場合のみ指数関数的に増幅する蛍光シグナルが確認された。また、その PCR 反応溶液をアガロース電気泳動により確認したところ、目的とする長さのバンドが確認でき、非特異的なバンドは検出されなかった。これらの結果から、構築したプライマーによって N 末領域ならびに C 末領域の NR1 splice variant を少なくとも 500 倍の選択性で識別できることが明らかとなった。さらに、スタンダードを段階希釈して作成した検量線をもとに、SAMP8 および SAMR1 マウスの脳における NR1 splice variant の発現量を比較した。その結果、いずれの variant の発現量にも有意な差は認められなかったことから、SAMP8 に出現する記憶・学習障害は NR1 splice variant の構成比の変化を伴わない可能性が示唆された。

本研究において、さまざまな神経疾患の発現に重要な役割を果たす可能性が示されている NMDA Receptor の Splice Variant を高感度かつ迅速に識別、定量する方法を確立した。本分析法は、室内環境化学物質に起因する本態性多種化学物質過敏状態等の発症メカニズムを明らかにする上で有効な方法となると考えられる。

Ⅲ-2. 2. TRPV3 受容体の細胞発現系を用いた in vitro スクリーニング系の確立

本年度は、化学物質過敏症などの嗅覚に関連する遺伝子の多型について評価するため TRPV3 受容体の細胞発現系を用いた in vitro スクリーニング系の確立を行った。TRPV は、痛覚や体液の調節など生理的に重要な役割を引き起こすイオンチャネル型の受容体である。近年、本態性多種化学物質過敏症の発症機序のひとつとして化学物質によるこの受容体の活性化が指摘された。本研究は、皮膚に多く発現する TRPV3 受容体の細胞発現系を構築しカルシウム流入を指標としたスクリーニング系の開発を行った。

ヒト TRPV3 の翻訳領域を pcDNA-DEST40 ベクターにサブクローニングし、これを LipofectamineTMLTX 試薬で HEK293 細胞に遺伝子導入した。24 時間後、培地を Tyrode 溶液に置換し Ca²⁺ 蛍光指示薬 Fluo4-AM (Molecular Probe 社)を細胞に 30 分間負荷させて細胞内に導入し、Aqua Cosmos (浜松フォトニクス社)を用いて測定した。刺激に対する応答として Fluo4 の 492nm 励起による蛍光強度の変化により、細胞内 Ca²⁺流入率を測定した。リガンド刺激は蛍光顕微鏡下で行い、リガンドとして 1 mM Camphor、3 mM Eugenol を用いた。

ヒト TRPV3 受容体を強制的に発現させた HEK293 細胞において、Camphor に応答して蛍光強度の増加が認められ、この応答は 300 秒後まで継続した。また、Eugenol についても蛍光強度の増加が認められた。この現象は、すでに他の研究グループより報告されている結果と一致した。この蛍光強度の増加は、TRPV3 受容体が Camphor および Eugenol といったリガンドに応答し細胞内 Ca²⁺濃度の急激な増加を引き起こしたことを示している。今後は化学物質のスクリーニングを開始するとともに、化学物質同士の相互作用についても解析を進めていきたいと考えている。

本研究において、TRPV3 受容体の細胞発現系を構築しカルシウム流入を指標としたスクリーニング系を確立した。本分析法は、室内環境

化学物質に起因する本態性多種化学物質過敏状態等の発症メカニズムを明らかにする上で有効な方法となると考えられる。

皮膚に多く発現する TRPV3 受容体の細胞発現系を構築しカルシウム流入を指標としたスクリーニング系の開発を行った。多種化学物質過敏状態等の発症メカニズムを明らかにする上で有効な方法となると考えられた。

IV. 家庭用品由来化学物質の測定技術の開発と室内濃度予測手法に関する研究

家庭用品中放散性化学物質の室内での濃度は、室内空間を形成する建築資材からも発生している。このことから、家庭用品に由来する化学物質の室内の濃度予測は計測のみで求めることはできない。したがって、この予測モデルの構築が不可欠である一方、主任研究者が平成 8～15 年度まで実施してきた研究から全国における暴露濃度は 10²～10⁵ の開きがあること認められた。このことは、人によって暴露によるリスクが極端に異なることを意味し、動物実験データを基にしたヒトでの用量-反応評価における基本的不確か率係数（種差：10、個体差：10、全体：100）よりもさらに大きな不確か率が発生していることとなる。したがって、暴露によるリスクについて評価するには新たな評価を行う必要があることから、低濃度（平均的）あるいは高濃度暴露におけるリスクの考え方を構築するため、家庭用品から放散される化学物質の室内における放散濃度、頻度、期間などの違いによる暴露評価を行うこととした。さらに、室内空気による化学物質の暴露は人の行動パターンによって大きく左右されて暴露量に反映されることから、我が国における各施設、居室、移動媒体、大気などでの存在状況を把握し、行動パターンを解析することとした。このため、家庭用品からの化学物質暴露のシナリオ、推計モデルを開発することを目的として、以下の研究テーマで実施することとした。

IV-1. 家庭用品中放散性化学物質の検索及び放散方法の開発に関する研究

IV-1. 1. 家庭用品から放散される揮発性 有機化合物の測定方法に関する研究

建材や家庭用品等から放散・放出される化学物質を効率良く低減化して健康被害を未然に防止するためには、室内空気質に対する両者の影響を同一のプラットフォームで評価するための試験法が必要不可欠であると考えられる。そこで本研究では、空間容積当たりの家庭用品使用量が多いと考えられる浴室での化学物質暴露について調査を行うとともに、溶液状態の家庭用品にも適用可能な放散化学物質評価法としてダイナミックヘッドスペース(DHS)法による放散試験法及び平面状の家庭用品を対象にしたマイクロチャンバー(μ CTE)による放散試験法の確立について検討を行った。

浴室空气中VOCsの分析では、防水ケースに収納した携帯型空気サンプリングポンプを用いて浴室内の空気をTenax TA吸着管で採取し、加熱脱着-GC/MSによる分析を行った。

TVOC定量対象化合物の選定では、全国調査のデータを解析し、室内(居間)空气中で50%以上の頻度で検出された70種類のVOCsをTVOC測定時の定量対象物質、いわゆる必須VOCとして選定した。

DHS-GC/MS法による家庭用品の放散ガス分析では、ガラス製バイアルに封入した試料にヘリウムガスを通気し、揮散したVOCsをトラップトラップ管に捕集した。トラップを加熱し、脱着したVOCsをGC/MSで分離、定量した。

μ CTE法による放散試験では、直径約45 mmの円形に裁断した試料を μ -CTEにセットして加湿純空気を通気し、試料から放散するVOCsをTenax TA/Carbograph 1TD/ Carboxen 1000の3層の吸着剤を充填したTO-17/2吸着管でサンプリングし、加熱脱着装置-GC/MSで分離、定量した。以上の方法により、下記のような結果を得られた。

浴室空气中VOCsの分析では、水道水の消毒副生成物に由来すると考えられるトリハロメタン類の他に、d-リモネン等の香料成分やオクタメチルシクロテトラシロキサンが普遍的かつ比較的高い濃度で検出された。また、抗酸化剤BHT

が検出された家庭も存在した。

TVOC定量対象化合物選定及び保持指標の導入では、必須VOCとして選定した芳香族炭化水素類18物質、鎖状脂肪族炭化水素類21物質、環状脂肪族炭化水素類4物質、テルペン類6物質、アルコール・フェノール類3物質、グリコール・グリコールエーテル類1物質、ケトン類3物質、有機塩素化合物8物質、エステル類5物質、エーテル類1物質の計70物質について保持指標 I_{TPGC} を算出した。

DHS-GC/MS法による家庭用品の放散ガス分析では、20品目の家庭用品について放散ガス分析を実施し、C10~C12の直鎖及び分岐脂肪族炭化水素、トルエン、酢酸エチル、アクリル酸、メチルイソブチルケトン等のVOCsを同定した。

μ CTE法による放散試験では、30品目の家庭用品・建材について μ CTE法による放散試験を実施し、86物質を定量した。塩ビ製クッションフロアー、塩ビ製壁紙、新聞で多量のTVOC放散が認められた。86物質を対象としたVOCs総量では放散量の低かった紙壁紙やポリプロピレンカーペットからも比較的多量のTVOC放散がみられ、家庭用品等から放散される化学物質をTVOCとして総量で評価することの重要性が再確認された。

IV-1. 2. 放散試験のための分析方法の検討

i) 炭素系吸着剤の常温吸着・熱脱離特性の測定

空气中化学物質の定性、定量分析のために、捕集剤として多くの種類の炭素系吸着剤が利用されている。しかし、個々の吸着剤に関して、測定対象物質による吸着や脱離などの基礎特性は明らかにされていない。本研究では、各種炭素系吸着剤の化学物質ごとの破過曲線を測定することにより吸着特性を検討した。また、吸着した化学物質の熱脱離による挙動も測定した。

カーボンモレキュラーシーブ類に対する破過曲線では、カーボシーブ SIII とカーボシーブ G の α -ピネンに対する破過容量は他の吸着剤に比べてほとんど吸着していないこと

が明らかになった。トルエンの場合では、カーボシーブ SIII 及びグラファイトカーボン類の破過容量は高い値となった。一方、熱脱離特性では、表面積の大きい吸着剤ほど脱離には高い温度と多くのパージガスを要することが明らかになった。したがって、空気中の化学物質を分析する際には、測定対象成分の吸脱着特性を予め測定しておく必要がある。

ii) アルデヒド-2,4-ジニトロフェニルヒドラゾン誘導体の異性化

現在広く利用されているアルデヒド類、ケトン類の分析法は 2,4-ジニトロフェニルヒドラジン (DNPH) を用いた誘導体化法である。しかし、ホルムアルデヒド以外の非対称アルデヒド類やケトン類の DNPH 誘導体は幾何異性体(*E*, *Z*)を有するので、HPLC 分析時に問題が生じる。そこで、これら DNPH 誘導体の酸や光による異性化反応を定量的に追究し、最良の分析条件を開発した。また、二重結合を有するアルデヒドの異性化についても検討した。

iii) カルボン酸とアルデヒド・ケトン類の同時分析

カルボン酸とアルデヒド、ケトン類を同時に分析する方法を開発した。本研究の最も重要な発見は、カルボン酸が 2,4-ジニトロフェニルヒドラゾンと反応し、安定なヒドラジド誘導体を生成することである。試料空気を 100ml/min の流速で 24 時間吸引した場合、LOD は 0.4 ug/m³であった。

iv) フタルアルデヒドの分析

フタルアルデヒドはグルタルアルデヒドの代替消毒剤として使用され始めているが、現在のところ分析方法は無い。本研究では空気中のフタルアルデヒドを 2,4-ジニトロフェニルヒドラジンを含浸させたシリカゲルを捕集剤とするカートリッジ (DNPH-cartridge) で捕集し、高速液体クロマトグラフ (HPLC) で分析する方法を開発した。DNPH-cartridge を用いて大気中のオルトフタルアルデヒドを HPLC で分析するとき、ビス誘導体として定量することができる。

IV-2. 評価手法の検証のための実験装置・周辺機器の開発

IV-2. 1. 小型家庭用品の放散試験方法の開発

分子拡散サンプラー (DSD-VOC, DSD-DNPH) を用いて、樹脂製容器の内外部から発生する化学物質を測定する方法を開発した。試験製品の樹脂製密閉容器をテドラーバッグの中に入れ、密閉容器内部に DSD サンプラーを置くことにより、内部から発生する化学物質を捕集し、同時に、テドラーバッグ内に DSD サンプラーを置くことにより、外部から発生する化学物質を捕集した。悪臭を放つ飲用ボトルをサンプルとして測定を行ったところ、検出された VOC、カルボニル化合物のほとんどは内部の方が外部より発生量が多かった。また、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、酪酸などの低級脂肪酸が高濃度で検出され、悪臭の原因であることも明らかになった。これらの脂肪酸は合成樹脂の酸化防止剤として使用されていた物質が、分解して生成することが推測された。この他、可塑剤として使用されていたフタル酸エステル類の発生量も多く、フタル酸ジエチル、フタル酸ジイソブチル、フタル酸ジブチル、フタル酸 *n*-オクチルなどが検出された。これらのフタル酸エステルの中でフタル酸ジエチル、フタル酸ジイソブチルはボトル内部、外部とも同程度の発生量であったが、フタル酸ジブチル、フタル酸 *n*-オクチルはボトル外部より内部からの発生量の方が多いことがわかった。本測定法により、密閉空間から発生する化学物質の測定を簡便に行うことが可能になった。

IV-2. 2. 微量化学物質測定チェンバーの性能検証

本研究では、新型の微量化学物質測定用チェンバーの性能検証を行った。具体的には、1) 温湿度と換気量についての制御値と実測値の符合性を検証し、2) チェンバーブランク値の推移を測定し、3) チェンバーブランク値が高い場合の対処法を明らかにすることとした。

チェンバーの性能については、測定期間中の外気温度は低く、設定値と外気温度の差は10[°C]を超えており、相対湿度の差も30～40[%]に達していた。この様に、供給空気中の温度、湿度と目的値に大きな差がある状況ではあるが、設定値（目的値）と実測値とはよく符合しており、本チェンバーの温湿度制御機構は有効に機能していると判断された。

本チェンバーの換気量制御は、給排気装置の回転数をインバータ制御により行っている。そこで、インバータ値と換気回数の関係をトレーサーガス濃度減衰法により検証した。チェンバー内に六フッ化硫黄ガス(SF₆)を供給し、その室内濃度の減衰性から換気回数 $M[1/h]$ を算出した。換気回数 $M[1/h]$ の算出には次式を用いた。その結果、インバータ値が給気側 12.5[Hz]、排気側 4.0[Hz]の時にチェンバー内圧力は微正圧となり、目的換気回数の 0.50[1/h] になった。

$$N = 2.303 \times \frac{1}{t} \times \log \left\{ \frac{C_1 - C_0}{C_2 - C_0} \right\}$$

ここで、 N :換気回数[1/h]、 t :測定時間[h]、 C_1 :測定開始時におけるチェンバー内 SF₆ 濃度 [ppm]、 C_2 :測定開始から $t[h]$ 後のチェンバー内 SF₆濃度 [ppm]、 C_0 :供給空気中の SF₆濃度 [ppm] である。

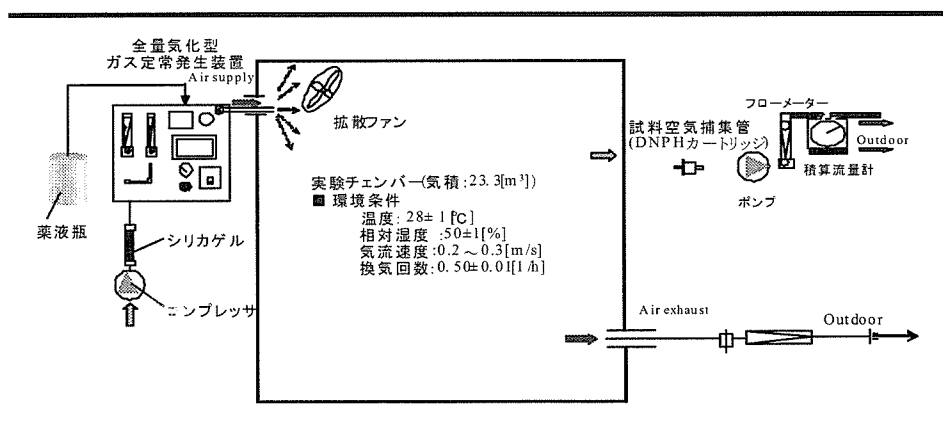
一般に、新しいチェンバーのブランク値は高く、微量化学分析に問題があると言われている。そこで、新しいチェンバーのホルムアルデヒドと VOC のチェンバーブランク値を実験的に検

証した。チェンバーブランク値は、ホルムアルデヒドで 22.6[μg/m³]、TVOC 濃度で 882[μg/m³]と高く、本チェンバーで微小発生量の物品測定は行えないと判断された。

この原因を調査したところ、1)表面材（ステンレス (SUS304) 製）の接合部に微量使用されたシーリング材、2)外気と水蒸気の混合器内に使用されたと思われる溶剤系洗浄剤、3)ガス除去フィルタ装置のフィルターボックス内に施された焼付け塗料によるものと判断された。そこで、各所発生源の 1)物理的除去、2)薬液洗浄、3)アルミテープ等を用いた封止、4)加熱燻蒸処理(Bake-out)を行い、約 90 日にわたってチェンバーブランク値の推移を観察した。チェンバーブランク値は、ホルムアルデヒドと VOC 共に指数関数的に減衰し、2006 年 9 月 29 日の時点で、数[μg/m³]程度となり、微小発生量の物品測定に耐えうる性能を発揮した。

IV-2. 3. ガス定常発生装置の検証

シックハウス問題の顕在化に伴い、室内空気汚染対策製品が数多く市販されており、これらの技術製品について多面的な試験評価法の検討が行われている。ただし、いずれの試験法に於いても、チェンバーや試験室にある一定量のガス状汚染物質を供給する装置（以下、ガス定常発生装置）が求められている。本研究では、本実験装置を用いたチェンバー内のホルムアルデヒド定常濃度構築実験を行い、本ガス定常発生装置の実用性の検討を行った。



チェンバー内定常濃度から算出するもので、次式により求められる。

$$M_1 = Q(C_{ss} - C_0)$$

ここで、 Q : チェンバー換気量[m³/h]、 C_{ss} : 汚染物質定常濃度[μg/m³]、 C_0 : チェンバー供給空气中汚染物質濃度[μg/m³]とする。

発生量を発生装置運転中の薬液消費重量から求める。

$$M_2 = W \cdot D / t$$

ここで、 W : 薬液消費重量[μg]、 D : 薬液希釈率[%]、 t : 機器運転時間[h]とする。

換気回数 0.5[1/h] の 6 畳大チェンバー (23.3[m³]) 内において、実験 I では約 500[ppb]、実験 II では約 300[ppb]、実験 III では約 200[ppb] のホルムアルデヒド定常濃度を構築することに成功した。

測定結果を(1)式に代入し、定常濃度から求めた発生量(M_1)は、実験 I (5544[μg/h])、実験 II (3003[μg/h])、実験 III (1905[μg/h]) となった。また、発生量(M_1)と薬液消費重量から求めた発生量(M_2)の比較を実験□において行った。結果として、 M_1 は 1905[μg/h]、 M_2 は 1997[μg/h] となり、 M_1 が M_2 と比較して、4.6[%]小さい値を示した。この差はチェンバー表面への吸着、気中での化学変化又は、測定誤差によるものと考えられる。

IV-2. 4. 初期性能と空気濃度予測

身近な対策技術の一つとして空気清浄機が注目され、その化学物質除去性能についての研究が進められ、機器の実用的性能評価指標として「相当換気量 Q_{eq} [m³/h]」が提案されている。国土交通省、経済産業省、厚生労働省、林野省と各種の財団や研究機関等で構成された「室内空気対策研究会」と国土交通省主導の「シックハウス総プロ」委員会あるいは日本建築学会において、実用的性能試験法の「定常法除去性能試験」が提案されている。

(1)初期性能と空気濃度予測

本研究では、1)定常発生法を用いた性能評

価試験法を開発し、提案するものである。次に、同試験法を用いて、2)空気清浄機の化学物質除去性能を求め、さらには3)空気清浄機使用室における信頼性の高い室内化学物質濃度予測法を実現するものである。

各 測 定 値 を

$$Q_{eq} = \frac{M}{C_{ss}} + Q \left(\frac{C_0}{C_{ss}} - 1 \right) - aA$$

式に代入

して、機器の相当換気量を算出した。

ホルムアルデヒド相当換気量の除去対象濃度依存性はほとんど認められなかった。また、機器風量の増大に伴いホルムアルデヒド相当換気量は増大することが示された。ホルムアルデヒドと同様に機器風量の増大に伴い VOC 相当換気量は増大する。

$$C = C_1 e^{-\left(\frac{Q+aA+Q_{eq}}{R}\right)t} + \frac{M+QC_0}{Q+aA+Q_{eq}} \left(1 - e^{-\left(\frac{Q+aA+Q_{eq}}{R}\right)t} \right)$$

式の化学物質濃度予測式を用いて化学物質濃度予測値と実測値との符合率を算出した。

定常発生法除去試験におけるホルムアルデヒド濃度の符合率は機器風量が異なる場合でも、平均で 96.0[%]となり、高い割合で符合した。また、除去対象濃度に関わらず、濃度予測値と実測値は高い割合で符合した。

定常発生法におけるエチルベンゼン、m-キシレン、スチレン濃度の予測値と実測値との符合率は、機器風量が異なる場合でも高く、それぞれ 94.2[%]、94.0[%]、94.0[%]となり高い割合で符合した。ホルムアルデヒド、VOC 共に予測精度は高く、空気清浄機使用室における高精度の室内化学物質濃度予測法が実現した。

(2)検証試験

本研究では、1)最新の家庭用空気清浄機のホルムアルデヒド除去性能を求め、2)家庭用空気清浄機使用室の室内濃度の予測法を明らかにし、3)家庭用空気清浄機のホルムアルデヒド除去性能の変遷を明らかにするものである。

気積の異なる 2 つのチェンバー (5[m³]、23[m³]) を使用し、チェンバー内にはホルム

アルデヒド定常濃度のとある一定の環境条件(温度:28±1[°C]、相対湿度:50±1[%]、換気回数:0.50±0.05[1/h])に制御した。この定常状態において家庭用空気清浄機を運転し、室内ホルムアルデヒド濃度を測定すると、機器運転に伴い室内濃度の減衰パターンが確認した。

濃度測定値を

$$Q_{eq} = \frac{M}{C_{ss}} + Q \left(\frac{C_o}{C_{ss}} - 1 \right) - \alpha R \quad (2) \text{ 式に}$$

代入し、表-1 の家庭用空気清浄機における相当換気量を求めた。5[m³]、23[m³]チェンバーにおける相当換気量(Q_{eq} [m³/h])の平均値はそれぞれ 97.3[m³/h]、117[m³/h]であり、とても大きい。また、23[m³]チェンバーの Q_{eq} は 5[m³]値と比較して 16.8[%]大きい、これは別機種での実験報告値 2)の 17.8[%]とほぼ同じ値であり、チェンバー吸着率等の影響によるものと考えられる。機器の製造年別ホルムアルデヒド除去性能を整理したところ、1995 年からの 10 年間で大きな向上を示し、特に 2005 年からは検証機器数が少ないものの、より大きなホルムアルデヒド除去性能の向上が見られた。5[m³]チェンバーにより得られた相当換気量を室内化学物質濃度予測式に代入し、23[m³]チェンバーにおけるホルムアルデヒド濃度予測を行った。濃度予測値と実測値を比較し符合率を算出したところ、平均で 82.6[%]の割合で符合した。

(3)家庭用空気清浄機の製造年と初期性能との関係

本研究は、これまでに解明してきた同機器のホルムアルデヒド除去性能について整理し、総括的に検討するものである。

機器定格風量、適用床面積、フィルタ構成の変遷では、家庭用空気清浄機の機器最大風量、適用床面積は年々増加傾向にある。また、使用フィルタの種類が 1995 年製では平均で、2.6[種類/台]であったのに対し、2000~2002 年製では 3.1[種類/台]、2003~2006 年製では 4.5[種類/台]に増加した。近年の機器は、従来の集塵フィルタや活性炭フィルタのように物理作用による除去方式のフィルタのみならず、

触媒技術やプラズマ技術を用いて、化学的または電氣的に化学物質を除去・分解するフィルタを搭載していた。

家庭用空気清浄機のホルムアルデヒド除去性能では、実験により得られたチェンバー内ホルムアルデヒド濃度を、相当換気量算出式に代入し、機器の性能評価を行った。家庭用空気清浄機のホルムアルデヒド相当換気量は、機器の相当換気量は 0~97.9[m³/h]の範囲にあり、除去原理やフィルタ構成により性能に大きな差が生じた。0[m³/h]の機種は、ファンを搭載しないイオン式の機器であった。

家庭用空気清浄機のホルムアルデヒド除去性能の製造年別推移では、機器の製造年別ホルムアルデヒド除去性能を整理したところ、1995 年からの 10 年間で大きく向上し、特に 2005 年から機器数は少ないが飛躍的なホルムアルデヒド除去性能の向上が示された。

IV-3. 家庭用品由来化学物質の室内化学物質の濃度予測

IV-3. 1. 化学吸着材

近年、室内空気汚染対策として吸着系製品が数多く市販されている。そこで本研究では、化学吸着材の吸着性能を明らかにすることを目的とした。

測定結果から相当換気量算出式を用いて Q_{eq} を算出した。24 時間後での化学吸着材 B、D、E の Q_{eq} は 2.02~2.43[m³/h・m²]、72 時間後でも化学吸着材 B、E の Q_{eq} は 2.02~2.06[m³/h・m²]となり、粉末状の活性炭とほぼ同等の吸着性能を有することが示された。ただし、使用時間の経過に伴い、吸着性能は低下する傾向を示した。

化学吸着材施工室における化学物質濃度予測式を次式に示す。

$$C = C_1 e^{-\frac{Q+aA+Q_{eq}}{R}t} + \frac{M+QCo}{Q+aA+Q_{eq}} (1 - e^{-\frac{Q+aA+Q_{eq}}{R}t})$$

ここで、 M : 化学物質発生量[μg/h]、 Q : 室換気量[m³/h]、 C_o : チェンバー供給空気中の対象化学物質濃度[μg/m³]、 Q_{eq} : 相当換気量[m³/h]、