

厚生労働行政推進調査事業費補助金 (化学物質リスク研究事業)
分担研究報告書

室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の策定およびリスク低減化に関する研究

室内空气中総揮発性有機化合物 (TVOC) 試験法の開発

研究分担者 神野 透人 名城大学薬学部 教授

研究要旨: 本研究では、室内空气中の総揮発性有機化合物 (TVOC) 標準試験法を策定する際に試料採取条件等を決定する上で必要となる情報、ならびに家庭用品等からの TVOC 放散速度を基に室内空気質への寄与 (率) を定量的に評価する際に有効な情報として、実際の居室から単位時間あたりに放散する TVOC 量の評価方法について検討を行った。愛知県内の 20 家屋において、「室内空气中化学物質の測定マニュアル」の新築住宅における採取法にしたがって室内空気を採取し、加熱脱離-GC/MS で TVOC を測定した。換気回数は、一過性に負荷した CO₂ の減衰を基に、Seidel の式を用いて算出した。これらの実測値から、 $E_{TVOC} = n \times TVOC \times V$ (E_{TVOC} : TVOC 放散速度 [$\mu\text{g}/\text{h}$]、TVOC: TVOC 濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]、N: 換気回数 [回/h]) として求めた各居室の「TVOC 放散速度」は 546~76200 $\mu\text{g}/\text{h}$ の範囲で、平均値は 6790 $\mu\text{g}/\text{h}$ 、中央値は 2890 $\mu\text{g}/\text{h}$ であり、最大値と最小値には 140 倍の差異が存在した。本研究で確立した評価方法を用いて、今後、居室の「TVOC 放散速度」と製品等の「TVOC 放散速度」を直接比較することにより、室内空气中の VOC について効果的な低減策にかかる議論が加速化するものと期待される。

研究協力者: 香川 聡子 (横浜薬科大学)、内藤 光梨 (名城大学薬学部)、森 葉子 (名城大学薬学部)、青木 明 (名城大学薬学部)、岡本 誉士典 (名城大学薬学部)

A. 目的

室内空气中の化学物質はシックハウス症候群をはじめとする疾病の原因となるおそれがあることから、厚生労働省では揮発性有機化合物 (Volatile Organic Compound, VOC) および準揮発性有機化合物 (Semi-volatile Organic Compound, SVOC) 13 物質に室内濃度指針値を設定し、健全な室内空気質を維持するための指標として提示している。また、室内空気質を総体として評価するための指標として、総揮発性有機化合物 (Total VOC, TVOC) に暫定目標値 400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ が定められている。

平成 25 (2012) 年 9 月 28 日に開催された第 11 回シックハウス (室内空気汚染) 問題に関する検討会において、1) 平成 14 (2002) 年 1 月に最後の 2 物質 (Acetaldehyde および Fenobucarb) に室内濃度指針値が設定されてから約 10 年が経過し、代替物質による問題等が新たに指摘されていること、2) VOC の他に、SVOC や細菌由来の VOC 類 (MVOC) 等、新たな視点での指摘があること、3) WHO (Guidelines for indoor air quality: selected pollutants) の動向と整合を図る必要があること、などから、各種の最新の知見に基づき、室内濃度指針値の設定等の対策について検討が行われることとなった。

その後、12 回の検討会を経て、平成 31 (2019) 年 1 月 17 日に、「シックハウス (室内空気汚染) 問題に関する検討会 中間報告書 - 第 23 回までのまとめ」が発出され、Xylene、

Di-n-butyl phthalate および Di-2-ethylhexyl phthalate の3物質の室内濃度指針値がそれぞれ 200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、17 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に改定された。さらに、2-Ethyl-1-hexanol、2,2,4-Trimethyl-1,3-pentanediol monoisobutyrate および 2,2,4-Trimethyl-1,3-pentanediol diisobutyrate の3物質については、パブリックコメント等の意見を踏まえ、ヒトへの安全性に係る情報や代替物の情報等を引き続き集積し、国際動向も踏まえながら、指針値について再検討すること、Ethylbenzene については、海外のリスク評価の状況等を踏まえて指針値改定案を再検討することとなった。

室内濃度指針値にかかる上記のような流れを受けて、厚生労働行政推進調査事業費「室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の策定およびリスク低減化に関する研究(研究代表者 酒井信夫)では、「標準試験法の策定」および「リスク評価方法の開発」の両面から研究が進められている。本分担研究課題では、TVOC 標準試験法を策定する際に試料採取条件等を決定する上で必要となる情報、ならびに家庭用品等からの TVOC 放散速度を基に室内空気質への寄与(率)を定量的に評価するために必要な情報として、居室からの単位時間あたりの TVOC 放散量の評価方法について検討を行った。

B. 実験方法

B.1 室内空気のサンプリング

2018年12月～2019年3月に、愛知県内の20軒の家屋を対象に調査を実施した。室内空気のサンプリングは、「室内空気中化学物質の測定マニュアル」(厚生労働省)の新築住宅における採取法にしたがって実施した。あらかじめ30分以上換気した調査対象居室を5時間以上密閉したのちに、GSP-300FT-2ポンプ(GASTEC社)を用いて、不活性処理ステンレス製 Tenax TA 吸着管(CAMSCO社)に100 mL/minの流速で28分間室内空気

を吸引した(採取量2.8 L)。同時に屋外の空気も採取した。居室の気積はレーザー距離計を用いて測定した3辺の長さから概算した。

B.2 換気回数の測定

調査対象の居室を密閉したのちに、ドライアイスを用いてCO₂濃度が約3000 ppmとなるまで、一過性にCO₂を負荷した。その後、無人の居室内のCO₂濃度の減衰をTR-76Ui(T&D社)を用いて記録した。観察されたCO₂濃度の経時変化を基に、Seidelの式を用いて換気回数(回/hr)を算出した。非線形回帰による曲線のフィッティングにはGraph-Pad Prism(version 6)を使用した。

B.3 加熱脱離-GC/MSによるTVOCの測定

加熱脱離-GC/MSによるTVOCの測定にはTD-20およびGCMS-TQ8030(島津製作所)を用いた。主要な測定条件をTable 1.に示した。TVOC濃度はn-Hexaneからn-Hexadecaneの保持時間の範囲で検出されたVOCのピーク面積の総和をToluene濃度に換算して算出した。

表1 加熱脱離-GC/MSによるTVOC測定条件

[Thermal Desorption]	
Desorption:	300°C, 8 min, 50 mL He/min
Cold Trap:	-20°C
Trap Desorption:	280°C, 5 min
Line Temp.:	250°C
Valve Temp.:	250°C
[GC]	
Column:	SH-Rtx-1 (0.32 mm i.d. × 60 m, 1 μm)
Carrier Gas:	He, 40 cm/sec
Injection Method:	Split (Split Ratio: 1:10)
Oven Temp.:	40°C - (5°C/min) - 280°C (4 min)
[MS]	
Interface Temp.:	250°C
Ion Source	200°C
Temp.:	
Scan Range:	m/z 40 - 450
Scan Rate:	5 Hz

C. 結果と考察

C-1. TVOC 濃度

愛知県内の 20 家屋において、「室内空気中化学物質の測定マニュアル」の新築住宅における採取法にしたがって室内空気 2.8 L を採取し、加熱脱離-GC/MS で TVOC を測定した。その結果、20 家屋の TVOC 濃度は 33~3240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲で、平均値は 374 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、中央値は 156 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。これらの中で、TVOC の暫定目標値である 400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えたものは 6 家屋であった。図 1 に TVOC 濃度の分布を示した。

C-2. 換気回数

一過性に負荷した CO_2 の減衰を基に各家屋の居室の換気回数を算出した結果、0.19~1.7 回/h の範囲で、平均値は 0.79 回/h、中央値は 0.65 回/h であった。20 家屋の換気回数の分布を図 2 に示した。

C-3. TVOC 放散速度

各家屋の居室において実測した TVOC 濃度と換気回数から、各居室に固有の「TVOC 放散速度」を次式にしたがって算出した。

$$E_{\text{TVOC}} = n \times \text{TVOC} \times V$$

ただし

E_{TVOC} : TVOC 放散速度 [$\mu\text{g}/\text{h}$]

TVOC: TVOC 濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

N: 換気回数 [回/h]

なお、換気にともなって居室に流入する空気は TVOC 成分を含まないものと仮定して TVOC 放散速度を算出した。

図 3 に示したように、各居室の TVOC 放散速度は 546~76200 $\mu\text{g}/\text{h}$ の範囲で、平均値は 6790 $\mu\text{g}/\text{h}$ 、中央値は 2890 $\mu\text{g}/\text{h}$ であった。最大値と最小値の比についてみると、TVOC 濃度では 98 倍、換気回数では 9 倍であるのに対し、TVOC 放散速度には 140 倍の差異が認められた。これらの結果は、それぞれの居室に固有の TVOC 放散速度には大きな差異が存在することを示しており、室内空気中の

TVOC 濃度の低減策を講じる際に、貴重な情報となり得るものと考えられる。

図 4 は TVOC 濃度の対数値と TVOC 放散速度の対数値の関係をプロットしたものである。両者には有意な相関 ($p < 0.01$) が認められ、相関係数 r の値は 0.8375 であった。これは、室内空気中の TVOC 濃度が居室からの単位時間あたりの TVOC 放散量に概ね比例することを示している。しかし、一方で、TVOC 濃度を 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 未満、100 以上 200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 未満および 400 以上 600 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の 3 つの範囲に区分して比較すると (図 5)、それぞれの区分内の TVOC 放散速度には 8 倍、5 倍、4 倍の差異が認められることから、TVOC 濃度のみでは居室から放散される TVOC 量を正確に評価することはできない。したがって、建材や持ち込み家具、あるいは家庭用品に由来する TVOC 成分の室内空気質への影響/寄与を定量的に議論するためには、本研究で示した居室の TVOC 放散速度を指標として用いる方が好ましいと考えられる。

C-4. TVOC 放散成分

図 6 は、各家屋の TVOC 構成成分を、芳香族/脂肪族炭化水素類、アルデヒド類、ケトン類、エステル類など、化学構造的な特徴にしたがって分類したものである。TVOC 放散速度が高い 5 家屋についてみると、存在比が最も高い成分は脂肪族炭化水素類 (4 家屋) またはシリコン化合物 (1 家屋) であった。

D. まとめ

室内空気中の VOC について効果的な低減策を議論するためには、まず室内環境中の放散源を特定し、放散速度を定量的に評価する必要がある。この目的で、20 L 小型チャンバー (JIS A 1901:2015) や μ -CTE と呼ばれる超小形チャンバーを用いる放散試験が汎用されている。この方法では、得られた放散速度と、換気回数 (一般的には 0.5 回/h) および部屋の気積 (20 m^3) および室内での製品の負荷量から定常状態の濃度増分値を予測することになる。ついで、この濃度増分値と、

実態調査などで得られる室内空気中の VOC 濃度の比較から、当該製品などの室内空気質への寄与を見積もることが一般に行われている。本研究では、このような寄与率推定方法の妥当性を確認し、低減化方法の効率を検証するための補完方法を確立する目的で、実際の居室で TVOC 濃度と換気回数を実測し、それらの結果を基にその「居室の TVOC 放散速度」を導出する方法を提示した。本法で得られる「居室の TVOC 放散速度」と製品等の「TVOC 放散速度」を直接比較することで効果的な低減方法にかかる議論が加速化するものと期待される。

E. 健康危険情報

なし

F. 研究発表

論文発表

なし

学会発表

- 1) 神野透人：室内空気汚染物質の実態把握と気道障害性の予測，シンポジウム「室内環境における化学物質管理の現状と関連法規制の動向」，環境科学会 2018 年会，東京，2018 年 9 月
- 2) 香川(田中)聡子，斎藤育江，酒井信夫，河上強志，田原麻衣子，上村 仁，千葉真弘，大貫 文，大泉詩織，武内伸治，磯部隆史，大河原 晋，越智定幸，五十嵐良明，埴岡伸光，神野透人：室内空気中 Dibutyl phthalate および Di(2ethylhexyl) phthalate 標準試験法の構築と妥当性評価，フォーラム 2018 衛生薬学・環境トキシコロジー，佐世保，2018 年 9 月
- 3) 香川(田中)聡子，斎藤育江，酒井信夫，河上強志，田原麻衣子，上村 仁，千葉真，武内伸治，大貫 文，大泉詩織，磯部隆史，

越智定幸，大河原 晋，五十嵐良明，埴岡伸光，神野透人：室内空気中フタル酸エステル類の固相吸着－溶媒抽出法を用いた GC/MS 標準試験法の確立：平成 30 年室内環境学会学術大会，東京，2018 年 12 月

- 4) 斎藤育江，大貫 文，酒井信夫，遠藤 治，杉田和俊，外山尚紀，鳥羽 陽，中島大介，星 純也，河上強志，田原麻衣子，上村 仁，千葉真弘，大泉詩織，磯部隆史，大河原 晋，五十嵐良明，埴岡伸光，神野透人，香川(田中)聡子：衛生試験法・注解 空気試験法 フタル酸ジ-n-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシル，日本薬学会第 139 年会，千葉，2019 年 3 月

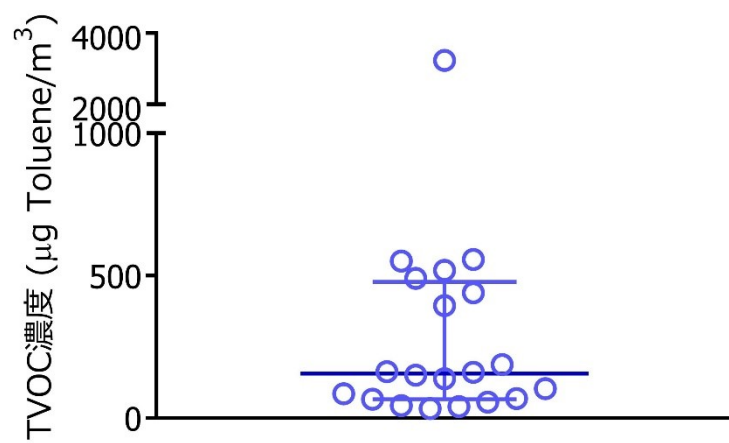


図1 TVOC 濃度の分布

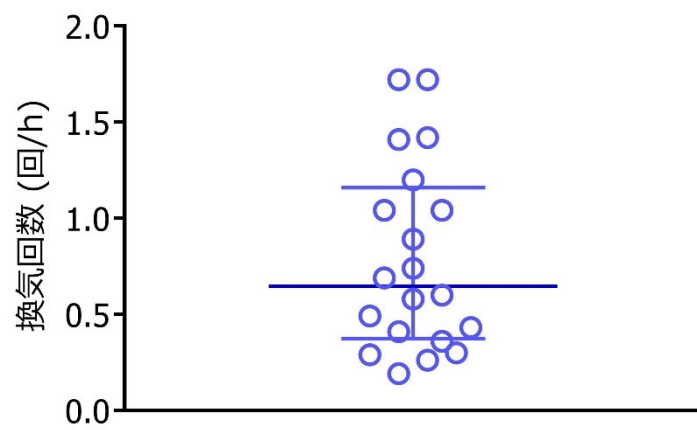


図 2 換気回数の分布

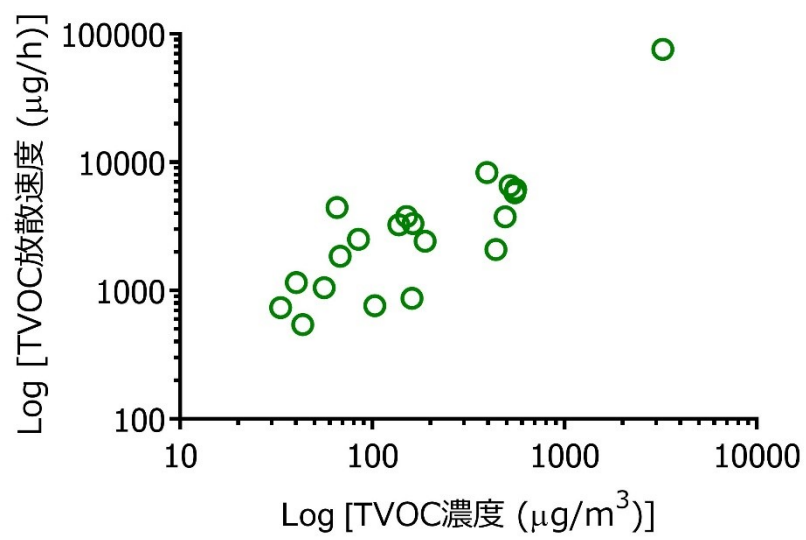


図4 TVOC濃度とTVOC放散速度の相関

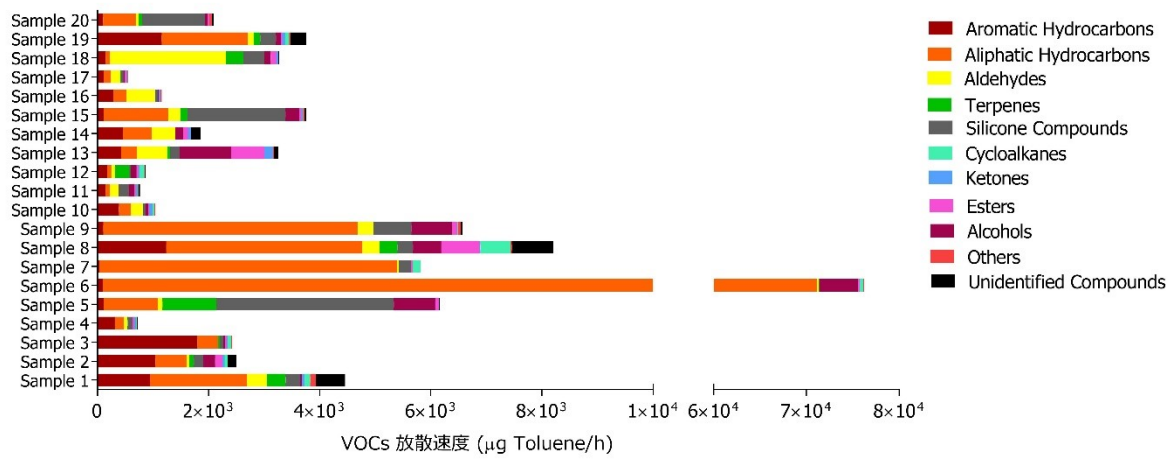


図5 TVOCを構成する主要成分