

厚生労働科学研究費補助金（化学物質リスク研究事業）
総合研究報告書

室内空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および
国際規制状況に関する研究

室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

研究分担者 田辺 新一 早稲田大学 建築学科 教授

研究要旨 厚生労働省のシックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会により、指針値の見直しや、新たな規制汚染物質の検討が継続的に行われている。本研究では、わが国で提案した精度の高いフタル酸エステル類の測定・分析方法の国際規格化の活動を行っている。日本が提案した方法に関しての審議は ISO-16000-33・WG20 において 2021 年度から現在まで行われている。最新の審議結果として、日本が提案した測定分析方法が ISO 16000-33 の Annex B として追加されることとなり、2023 年 12 月 4 日に FDIS 投票が進行中である。また、VOC による汚染が指摘されているスプレー剤を使用する建築製図室における室内空気質に関して、適切な換気手法・換気設備の提案を目的に測定を行った。加えて、建築室内において木材が使用された場合に、消毒に使用されるアルコールや Do It Yourself（以下、DIY）による植物油を主原料とした天然系塗料との接触により二次生成物質が生じる可能性がある。木材へのアルコールの噴霧や天然系塗料の塗布が室内空気質に与える影響を明らかにすることを目的として、チャンバー試験および臭気評価実験を行った。室内空気質の評価を行うためには、建材由来の VOC に加えてヒト由来の生体発散物質による空気質の悪化に関する必要がある。ヒト由来の生体発散物質除去効果及び知覚空気質へ与える影響を明らかにすることを目的として、チャンバー実験および臭気評価実験を行った。

A. 研究目的

A-1 ISO-16000-33（新規格案）

厚生労働省のシックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会が継続的に開催され、指針値の見直しや新たな規制汚染物質が検討されている。また、フタル酸エステル類について改正指針値に対応して精度の高い標準試験法が開発された。これは、日本薬学会編 衛生試験法・注解 2015：追補 2019 にて公表され、国内の規準となっている。この精度の高い国内規格を国際規格化とするために ISO 会議に新規案を提案した。本分担研究では、この国内のフタル酸エステル類の測定・分析方法を ISO/TC146(大気(の質))/SC6(室内空気)、ISO 16000-33：2017「Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)」に新規提案を行っているため、その進捗情報を報告する。

A-2 スプレー剤使用環境調査

VOCによる汚染が指摘されているスプレー式接着剤およびカラースプレーを使用する建築製図室における室内空気質に関して、適切な換気手法・換気設備の提案を目的に測定および化学物質分析を行った。

A-3 木材へのアルコールの噴霧実験

感染症対策として広く用いられているアルコール塗布が室内の知覚空気質およびスギ材自体の化学物質の構成変化に与える影響を把握することを目的にチャンバー実験および臭気評価実験を行った。

A-4 木材への天然系塗料塗布実験

市販天然系塗料の構成成分に関する実態調査を行い、一般消費者による塗装状況を考慮した場合に天然系塗料が室内空気質に与える影響を明らかにすることを目的に小型チャンバー実験を行い、化学物質分析と臭気

評価実験を実施した。

A-5 生体発散物質除去効果の評価

生体発散物質除去効果及び知覚空気質へ与える影響を明らかにすることを目的として、チャンバー実験および臭気評価実験を行った。

B. 研究方法

B-1 ISO-16000-33（新規格案）

研究グループによってシックハウス検討会の改正指針値に対応可能な精度の高いフタル酸エステル類の標準試験法が開発された。この試験法は日本薬学会編 衛生試験法・注解2015：追補2019にて公表された。この規格を国際標準化するために、フタル酸エステル類の測定・分析方法をISO/TC146(大気(の質)/SC6(室内空気)、ISO 16000-33：2017 Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)」に新規提案した。そのため、2021年度から現在までISO/TC146/SC6の国際会議に参加し、国際規格化に関する審議及びその結果を確認した。

B-2 スプレー剤使用環境調査

スプレー剤を不特定多数が、定期的かつ頻繁に使用する作業環境に関してアンケート調査及び実測調査を行なった。アンケート調査は早稲田大学建築学生を対象とし、実測調査ではアンケート回答者が普段使用する作業場所において化学物質放散濃度を測定した。

B-3 木材へのアルコールの噴霧実験

JIS A1901の小型チャンバー法を参照し、スギ材にアルコールを噴霧し、接触歴の有無の違いによる化学物質濃度の測定を行った。また、チャンバー内空気の知覚空気質評価を目的に、臭気評価被験者によるにおい袋法を用いた臭気評価を実施した。実験は早稲田大学倫理委員会の承認を得て行った。

B-4 木材への天然系塗料塗布実験

石油由来の有機合成成分を含んだ天然系塗料を「自然系塗料」、天然成分のみで構成された天然系塗料を「自然塗料」と定義し、構成成分の異なる自然系塗料および自然塗料を2種類ずつチャンバー試験用に選定した。室内における木材への天然系塗料の塗装が化学物質の放散特性に与える影響を把握することを目的に、JIS A 1901 に則り、チャンバー実験を行った。また、

チャンバー内空気の知覚空気質評価を目的に、臭気評価被験者によるにおい袋法を用いた臭気評価を実施した。実験は早稲田大学倫理委員会の承認を得て行った。

B-5 生体発散物質除去効果の評価

ISOの手法を参照し、チャンバー内に被験者を座位安静状態で在室させた。空気清浄機の運転前後におけるチャンバー内空気に対し、生体発散物質を主とする化学物質気中濃度、知覚空気質に与える影響を把握することを目的に実施した。実験は早稲田大学倫理委員会の承認を得て行った。

C. 研究結果

C-1 ISO-16000-33（新規格案）

2021年度から2023年度までISOの国際会議を行った結果として、2021年度はISO-16000-33のAnnex Bに技術的な情報などを追記することで合意し、委員会原案(CD)を登録することになった。

2022年度のISO/TC146/SC6 WG 20がオンライン会議で開催された。日本の代表団は田辺新一(早稲田大学)、酒井信夫(国立医薬品食品衛生研究所)、伊藤一秀(九州大学)、金炫兌(山口大学)以上4名が参加した。WG 20では、ISO16000-33の改正案について議論が行われ、わが国が提案した「ODS固相ディスクまたはSDB共重合体カートリッジによるサンプリング方法と溶媒抽出・分析方法」がISO-16000-33のAnnex Bに追加されることになった。そのため、2022年末までDISの最終版を提出することになった。

2023年度はISO/TC146/SC6 WG 20が現地会議で開催され、ISO16000-33の改正案について議論が行われた。わが国が提案した分析方法がDISとして賛成される結果となった。2023年12月4日にFDISとして投票が進行中である。

C-2 スプレー剤使用環境調査

化学物質の実測において、日本国内の指針値は超過しなかったが、エーテル類について一部の測定箇所ドイツの指針値を超過した。また、実測対象となった一部の研究室においてはCO₂濃度が1000 ppmを下回った。一方で、VOC濃度は室外に設置されたスプレーブース近傍だけでなく室内でも一部濃度が高かった。

C-3 木材へのアルコールの噴霧実験

アルコール噴霧によりAcetaldehydeの気中濃度は大幅に上昇した。アルコール接触歴のあるスギ材は以前のアルコール塗布から82日が経過していたがAcetaldehyde気中濃度は1680 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と高く、室内濃度指針値を大幅に超過した。アルコール噴霧をしたスギ材は5日後においてもAcetaldehyde気中濃度は実験前と比較して実験後の方が高かった。空気許容度はアルコール噴霧の有無に関わらず全臭気評価時刻で受け入れられる側の申告であった。快不快申告の平均値は概ね全ての条件の全評価時刻で、アルコール噴霧の有無に関わらず快適側の申告となった。

C-4 木材への天然系塗料塗布実験

Acetaldehydeは木材の全経過時刻において塗料種別に関わらず一部の塗料で室内濃度指針値を超過した。自然塗料の一種では24時間時におけるAcetaldehydeの放散量は、木材とアルミ板では放散挙動が異なった。実際に木材へ塗装した場合、JISによるアルミ板試験では放散されない二次生成物が放散することが明らかになった。臭気評価においては、自然塗料と比較して自然系塗料の方が知覚空気質は悪い傾向があった。

C-5 生体発散物質除去効果の評価

チャンパー内に被験者を座位安静状態で在室させ空気質の評価を行った結果、活性炭を使用した空気清浄機の運転によりAmmoniaやNonanalなど生体発散物質である化学物質濃度が低下した。また、知覚空気質のうち臭気強度が低下した。

D. 考察

D-1 ISO-16000-33 (新規格案)

我が国が提案した分析方法を国際規格化するため、ISO/TC 146/SC 6/WG 20に「ODS固相ディスクまたはSDB共重合体カートリッジによるサンプリング方法と溶媒抽出・分析方法」を新規案(NWIP)を提案した。その後作業原案(WD)の審議を行い、委員会原案(CD)に登録される。また、委員会原案は委員会で賛成された後、P-メンバーによるDIS投票とコメントを受け、審査結果に従った修正版の提出が必要である。DISの投票結果が賛成の場合、提案した規格がFDISの投票に進められる。我が国で提案した分析方法は以上の過程を経て今現在FDIS投票が進行中である。以下、2023年度WG20

での国際会議後、ISO/TC 146/SC 6/WG 20 N66「Recommendations」が作成された。内容は以下に示す。

・ Recommendation 44

ISO/TC 146/SC 6/WG 20 decides to submit the revised draft of ISO 16000-33 to FDIS ballot.

D-2 スプレー剤使用環境調査

化学物質の実測結果ではエーテル類がドイツの指針値を超過したことから、人体への有害性を考慮し、我が国でも濃度低減対策を図る必要があると考えられる。同研究室においてはCO₂濃度が1000 ppmを下回り必要換気量は確保されていたが、VOC濃度は室外スプレーブース近傍だけでなく室内でも一部濃度が高かった。要因として、スプレー由来の化学物質の換気による濃度の減衰挙動がCO₂濃度とは異なり、より多くの換気量を必要とする可能性が考えられる。

D-3 木材へのアルコールの噴霧実験

自然乾燥処理が施された無塗装のスギ材にアルコールが接触した場合には長期間Acetaldehydeが室内濃度指針値を上回る濃度で放散し続けることが明らかになった。一方で、高濃度のAcetaldehyde気中濃度である場合においても、室内空気質の悪化を人間が知覚していないことが示された。木材から放散するテルペン類がAcetaldehydeと混合することで生じた複合臭気のレベルが元の悪臭臭気よりも低下した可能性がある。

D-4 木材への天然系塗料塗布実験

木材に塗料を塗布した場合、塗料中の亜麻仁油の酸化反応や、塗料に含まれるEthanolが木材に接触した際にAlcohol Dehydrogenase (以下、ADH)による酸化促進によって、Acetaldehydeの気中濃度が指針値を超過したと考えられる。また、臭気評価においては自然塗料ではアルデヒド等の臭気寄与物質やTVOC放散量が少なかったことやテルペン類のマスクング効果により、Acetaldehydeの刺激臭が緩和され、非容認率が低くなったと考えられる。

D-5 生体発散物質除去効果の評価

空気清浄機の生体発散物質除去効果により化学物質が活性炭に吸着されることで濃度が低下したと考えられる。臭気源となる化学物質濃度の低下により、臭気強度も低下したと考えられる。

E. 結論

E-1 ISO-16000-33 (新規格案)

フタル酸エステル類の測定・分析方法をISO 16000-33 : 2017「Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)」に新規提案した。現在、DISとして賛成され、FDISの投票が進行されている。

E-2 スプレー剤使用環境調査

換気量が確保されている室内においてもスプレー剤による空気質悪化が見られた。スプレー剤など入室者の行動により特定のVOCの放散量が多くなると見込まれる場合には局所換気など換気設備を追加し、作業者近傍に加え室全体での良好な室内空気質の確保を目指す必要があると考えられる。

E-3 木材へのアルコールの噴霧実験

アルコール塗布履歴があるスギ材からは半年後でもAcetaldehydeが室内濃度指針値を上回る濃度での放散が持続し、木材表面にアルコールを繰り返し噴霧した場合には繰り返し同程度のAcetaldehydeが生成され続けることが明らかになった。一方で、Acetaldehyde気中濃度が室内濃度指針値を大幅に超過する場合でも木材の中和効果が作用した場合には、空気質の悪化を人間が知覚出来ない状況があることが示された。

E-4 木材への天然系塗料塗布実験

木材に塗料を塗布した場合、塗料種別に関わらず一部の塗料で全経過時刻においてAcetaldehydeが室内濃度指針値を超過した。乾燥過程における植物油の酸化反応および塗料中のEthanolと木材中のADHの反応による放散促進が要因として考えられる。また、臭気評価実験の結果、自然塗料と比較して自然系塗料の方が知覚空気質は悪い傾向があった。要因として、自然系塗料においては多く放散されていたNonanalやAcetaldehyde、2E1Hの刺激臭が知覚空気質悪化に寄与したと考えられる。

E-5 生体発散物質除去効果の評価

生体発散物質除去効果及び知覚空気質へ与える影響を明らかにすることを目的として、チャンバー実験および臭気評価を行った。空気清浄機の運転により生体発散物質除去効果が見られ、臭気に関しても知覚空気質改善効果が見られた。

F. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 稲坂まりな, 赤松奈美, 菅野颯馬, 池内宏維, 高橋秀介, 田崎未空, 金炫兌, 田辺新一, 異なる木材表面へのアルコール塗布がVOC放散量および知覚空気質に与える影響, 日本建築学会環境系論文集, Vol. 87, No. 802, 2022. 12
- 2) 池内 宏維, 富田 奈歩, 赤松 奈美, 新納 稔樹, 田崎 未空, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一. 木材への天然系塗料の塗布が揮発性有機化合物放散量および知覚空気質に与える影響. 日本建築学会環境系論文集, 2023年, 88巻, 811号, pp. 716-725.
- 3) Nami Akamatsu, Soma Sugano, Kanta Amada, Naho Tomita, Hidetaka Iwaizumi, Yuki Takeda, Pawel Wargocki, Bjarne W. Olesen, Shin-ichi Tanabe, Effects of Gas-phase Air Cleaner on Removing Human Bioeffluents and Improving Perceived Air Quality, Building and Environment. 審査中

2. 学会発表

- 1) 益崎慶人, 金炫兌, 小金井真, 田辺新一, TXIB及びTEXANOLの放散挙動に関する研究, 日本建築学会大会学術講演梗概集(東海), pp.1533-1534, 2021.9
- 2) 益崎慶人, 金炫兌, 小金井真, 田辺新一 仕上げ材からのSVOC放散速度測定, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集, pp.85-88, 2021.9
- 3) Yoshihito Masuzaki, Hyuntae Kim, Makoto Koganei, Shin-ichi Tanabe, A Study on Emission Behavior of SVOC Material in Real Space Model, Healthy Buildings 2021, Honolulu HI, USA, 2022.1
- 4) 赤松奈美, 池内宏維, 稲坂まりな, 小野田亮介, 松尾和弥, 田崎美空, 菅野颯馬, 金炫兌, 田辺 新一, 木材表面へのアルコール清拭がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 第1報: 実験概要と化学物質分析の測定結果, 日本建築学会学術講演梗概集, Vol.2022, pp.1595-1596, 2022.9
- 5) 池内宏維, 赤松奈美, 稲坂まりな, 小野田亮介, 松尾和弥, 田崎美空, 菅野颯馬, 金炫兌, 田辺 新一, 木材表面へのアルコール清拭がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 第2報: 実験概要と化学

物質分析の測定結果, 日本建築学会学術講演梗概集, Vol.2022, pp.1597-1598, 2022.9

- 6) 赤松奈美, 池内宏維, 稲坂まりな, 菅野颯馬, 金炫兌, 田辺新一, 木材表面へのアルコールの塗布・噴霧がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 (第1報) アルコールの1回塗布によるチャンバー実験結果, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集 (神戸) 、 pp.9-12, 2022.9
- 7) 池内宏維, 赤松奈美, 稲坂まりな, 菅野颯馬, 金炫兌, 田辺新一, 木材表面へのアルコールの塗布・噴霧がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 (第2報) アルコールの繰り返し噴霧によるチャンバー実験結果, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集 (神戸) 、 pp.13-16. 2022.9
- 8) Kosuke Ikeuchi, Nami Akamatsu, Marina Inasaka, Soma Sugano, Hyuntae Kim, Shin-ichi Tanabe, Effects of Applying Alcohol to Wood on Acetaldehyde Emissions, Indoor Air 2022, Kuopio, Finland, 2022.6
- 9) N. Akamatsu, M. Inasaka, K. Ikeuchi, S. Sugano, H. Kim, S. Tanabe. Effect of Applying Alcohol to Wooden Surfaces on VOC Emissions and Perceived Air Quality. 18th Healthy Buildings Europe Conference, 11th – 14th June 2023, Aachen, Germany
- 10) 富田 奈歩, 赤松 奈美, 池内 宏維, 深和 佑太, 金炫兌, 田辺 新一. 含有物質の異なる天然系塗料の

木材への塗布が室内空気質に与える影響. 令和五年度空気調和・衛生工学会大会[福井].

- 11) 赤松 奈美, 富田 奈歩, 池内 宏維, 深和 佑太, 金炫兌, 田辺 新一. 木材へのアルコールの塗布・噴霧がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 (第3報) 塗装木材へのアルコール塗布によるチャンバー実験結果. 令和五年度空気調和・衛生工学会大会[福井].
- 12) 富田 奈歩, 赤松 奈美, 池内 宏維, 新納 稔樹, 田崎 未空, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一. 天然系塗料の木材表面への塗布がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 (第1報) 実験概要と化学物質分析の測定結果. 2023年度日本建築学会大会.
- 13) 赤松 奈美, 富田 奈歩, 池内 宏維, 新納 稔樹, 田崎 未空, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一. 天然系塗料の木材表面への塗布がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 (第2報) 被験者実験による臭気評価結果. 2023年度日本建築学会大会.

G. 知的所有権の取得状況

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

なし