

超微粒子域を含む粒子状汚染物質の実態調査

Investigation of Actual Conditions of Suspended Particle Mater Including Ultra-fine Particle region

J06039-0 菊地 沙知

Abstract

According to the recent studies of epidemiology, it is suspected that quite small particles affect our health. Especially the particles, which have less than 0.1 μ m in diameter, are said to be made by artificial materials, and generally have toxicity. But there are few research on indoor ultra-fine particles. In this study, we investigated SPM(suspended particle Matter)to the region of ultra-fine particles. In addition, we assumed to research the fundamentals of indoor secondarily generated aerosol as second purpose. The results are as follows; i) Ultra-fine particles are the majority particles in number at indoor space. ii) It is suggested that there exist the source of the ultra-fine particles inside the rooms. iii) Relationship between the difference of ventilation system and the difference of temperature and humidity are observed. iv) There seemed the difference of characteristics of existence of ultra-fine particles between schools, offices and residents.

Keywords 浮遊粒子状物質 (Suspended Particle Matter) 超微粒子 (ultrafine particle)
 粒径別個数濃度 (the number concentration) 動作 (activity)

1. 背景・目的

ビル環境を含め、一般生活環境では高気密化による換気不足や屋外からの大気汚染物質の侵入などによる室内空気汚染の問題が依然として注目されている。また、近年の疫学調査によって非常に微小な粒子による人体への健康被害も懸念されている。特に、粒径0.1 μ m以下の超微粒子については、燃焼などで化学的に二次生成された人工物が多く一般的に毒性が強いとされている。これら超微粒子については高濃度に存在する一般大気環境の分野では比較的研究が行われているが、室内での系統的な研究は少なく十分になされていない。しかし、人間生活と健康影響の観点から考えれば早急に評価が必要である。

本研究は、学校や事務所ビル、住宅を対象に超微粒子域にまで焦点をあて、これらの個数濃度を測定することで粒径0.015 μ mまでの超微粒子を含む室内空間の浮遊粉じんの実態を把握することを目的とする。また、建物の使用用途ごとの比較や屋外からの侵入、室内で発生、生成する粒子の評価を行うため外気影響を考慮し、温湿度についても測定を行う。また、室内の超微粒子の発生、挙動については多くの課題もあり十分な研究がなされていない。よって、本研究が室内における超微粒子の二次生成についての基礎研究となることを第二の目的とする。

2. 調査概要

2.1 測定概要

実測調査は首都圏の学校、事務所ビル、住宅の23か所を調査対象とし、全ての測定器を同時に作動させ、1分間隔の連続測定を室内外ともに30分間行った。測定概要を表1に示す。室内の換気は空調機の稼働や24時間換気などとし、測定5時間前および測定中は窓開け換気は行わない。ただし、事務室Bのみ測定直前まで換気を行っている。また、住宅A、住宅Fのみ喫煙である。測定項目および測定に関する聞き取り調査を表2に示す。

表1 測定概要

測定場所	測定日	階数	測定時刻	天候	平均温度	平均湿度
学校A	2009/8/17	7階	室内 15:00-15:30	晴れ	—	—
			屋外 16:00-16:30			
学校B	2009/8/18	7階	室内 10:20-10:50	曇り	25.8℃	63.1%/RH
			屋外 11:20-11:50			
学校C	2009/8/20	8階	室内 16:00-16:30	晴れ	24.9℃	58.3%/RH
			屋外 16:45-17:15			
学校D	2009/8/24	3階	室内 13:05-13:35	曇り	24.3℃	60.7%/RH
			屋外 13:50-14:20			
学校E	2009/8/24	4階	室内 14:55-15:25	曇りのち雨	26.2℃	54.0%/RH
			屋外 15:35-16:05			
学校F	2009/8/25	5階	室内 13:00-13:30	晴れ	23.8℃	60.3%/RH
			屋外 14:05-14:35			
学校G	2009/11/12	2階	室内 11:00-11:30	曇り	24.3℃	44.0%/RH
			屋外 12:20-12:50			
学校H	2009/11/12	2階	室内 11:40-12:10	曇り	25.2℃	42.3%/RH
			屋外 12:20-12:50			
学校F	2009/11/26	16階	室内 13:15-13:45	晴れ	26.2℃	35.6%/RH
			屋外 14:00-14:30			
事務室A	2009/8/19	7階	室内 11:05-11:35	曇り	26.5℃	48.9%/RH
			屋外 11:45-12:15			
事務室B	2009/11/4	2階	室内 13:30-14:00	晴れ	24.8℃	33.7%/RH
			屋外 14:15-14:45			
事務室C	2009/11/4	3階	室内 15:35-16:05	晴れ	21.2℃	47.5%/RH
			屋外 14:15-14:45			
事務室D	2009/12/1	2階	室内 11:30-12:00	晴れ	21.6℃	48.2%/RH
			屋外 13:43-14:13			
事務室E	2009/12/1	2階	室内 12:05-12:35	晴れ	20.9℃	47.5%/RH
			屋外 13:43-14:13			
事務室F	2009/12/1	4階	室内 14:23-14:53	晴れ	21.2℃	46.8%/RH
			屋外 15:02-15:32			
住宅A	2009/9/16	2階	室内 10:10-10:40	晴れ	24.2℃	53.5%/RH
			屋外 10:52-11:22			
住宅B	2009/9/16	1階	室内 12:35-13:05	晴れ	25.9℃	48.0%/RH
			屋外 13:25-13:55			
住宅C	2009/9/20	2階	室内 08:55-09:25	晴れ	26.8℃	54.5%/RH
			屋外 10:10-10:40			
住宅D	2009/9/20	2階	室内 11:35-12:05	晴れ	24.9℃	59.4%/RH
			屋外 12:15-12:45			
住宅E	2009/9/21	1階	室内 08:15-08:45	曇り	20.5℃	61.3%/RH
			屋外 08:55-09:25			
住宅F	2009/10/4	1階	室内 15:00-15:30	晴れ	25.1℃	62.6%/RH
			屋外 15:45-16:15			
住宅G	2009/10/5	1階	室内 09:35-10:05	曇り	25.2℃	68.6%/RH
			屋外 10:15-10:45			
住宅H	2009/10/9	3階	室内 10:45-11:15	晴れ	26.2℃	64.7%/RH
			屋外 11:45-12:15			

表2 測定・調査概要

測定項目	測定機器	概要
粒径別個数濃度(0.3~5.0 μ m)	LPC KR-12A	1分間隔で連続測定
粒子個数濃度(0.015~1.0 μ m)	HANDHELD CPC MODEL 3800	1分間隔で連続測定
温度	温湿度計	1分間隔で連続測定
湿度	SK-L200TH II α	
調査項目	内容	
建物概要	竣工年月日、延床面積他	
測定室概要	床面積、階高、喫煙状況、在室者数、直達日射の有無、芳香剤等の設置他	
空調設備概要	空調方式、換気方式、設備運転状況他	

2.2 評価方法

a) 個数濃度の基準化

大部分のエアロゾルは多分散であるが、実際の測定においてはある粒径区分に分割し、その区間での個数濃度の測定を行う。しかし、粒径範囲はそれぞれ異なるため、粒子数をそのまま比較するのは適当ではない。そのため各区分の粒子数をその区分で除し、“規準化”を行った。その際の個数表記では“dN/dLogDp”と示した。

b) 質量濃度から個数濃度への変換

LPCの測定結果については質量濃度から個数濃度への変換を行っている。質量濃度と個数濃度の関係は次式で表すことができる。

$$M = \sum_i^n dM_i = \sum_i^n \frac{4}{3} \pi \left(\frac{Dp_i}{2} \right)^3 \times \rho \times dN_i \quad \text{eq.1}$$

なお、全ての粒子が粒径に関係なく一様に球形であり、かつ密度 ρ が $1.0 \times 10^9 [\text{mg}/\text{m}^3]$ であるという仮定条件のもとで算出する。また、 dM_i 、 dN_i が規準化濃度ではないことに注意が必要である。ここで、粒径 Dp_i について LPC は粒径範囲で与えられているため、それぞれ算出する必要がある。粒径範囲が $dp_i \sim dp_{i+1}$ と与えられた場合、幾何平均

$$Dp_i = \sqrt{dp_i \times dp_{i+1}} \quad \text{eq.2}$$

をその範囲の代表粒径として算出する。

3. 測定結果の比較・検討

3.1 粒径別個数濃度

粒径別個数濃度は光散乱式パーティクルカウンタ（以下 LPC）を使用した。なお、LPC は浮遊粒子状物質の粒径別個数濃度 [#L] を測定するための測定機器である。その粒径区分は 6 段階（0.3-0.5、0.5-0.7、0.7-1.0、1.0-2.0、2.0-5.0、>5.0 μm ）である。

表 3 に建物使用用途毎の室内時系列変化の統計値を示す。また、0.3-0.5 μm と 1.0-2.0 μm の室内平均個数濃度を図 1 に、I/O 比を図 2 に示す。

室内平均個数濃度から住宅 A の個数濃度は 0.3-0.5、1.0-2.0 μm とともに最も高い値を示した。住宅 A では測定直前に喫煙を行っており、たばこ煙の影響であると思われる。住宅 H の 1.0-2.0 μm における個数濃度は住宅 A に次いで高く、I/O 比も同様に高い結果となった。一方で、0.3-0.5 μm の個数濃度が他の測定に比べ低いことから、住宅 H の室内では人間のアクティビティなどによる大粒径粒子が相対的に多いことがわかる。

建物用途別にみると全粒径範囲において住宅の個数濃度が学校、事務室よりも高い値を示しており、室内の仕様形態、空調機の有無の違いが大きく影響していると考えられる。また、同様に住宅の I/O 比も学校、事務室に比べ 1.0 に近いことから空調設備の違いによる外気からの粒子侵入も考えられる。

表 3 時系列変化に関する統計値

		測定粒径範囲 [μm]					
		0.3-0.5	0.5-0.7	0.7-1.0	1.0-2.0	2.0-5.0	>5.0
学校	平均値	1.43E+08	1.73E+07	2.12E+06	6.80E+05	2.59E+05	4.07E+04
	標準偏差	3.32E+06	5.21E+05	9.96E+04	4.08E+04	3.29E+04	1.27E+04
	I/O 比	0.50	0.43	0.31	0.31	0.21	0.32
事務室	平均値	1.46E+08	1.54E+07	2.13E+06	5.83E+05	1.72E+05	1.85E+04
	標準偏差	1.05E+07	1.98E+06	2.41E+05	6.70E+04	3.66E+04	9.29E+03
	I/O 比	0.49	0.41	0.38	0.36	0.29	0.36
住宅	平均値	3.40E+08	1.05E+08	1.37E+07	3.33E+06	1.15E+06	1.33E+05
	標準偏差	5.85E+06	1.13E+07	1.93E+06	3.75E+05	1.28E+05	5.21E+04
	I/O 比	0.74	0.99	1.18	1.19	0.95	0.83

単位：# m^3

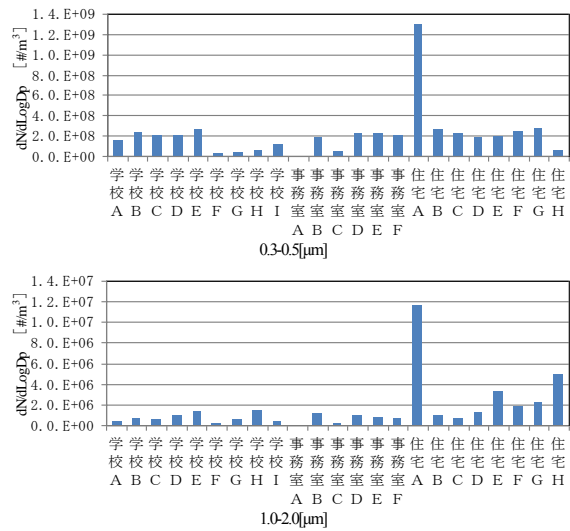


図 1 室内平均個数濃度（粒径別）

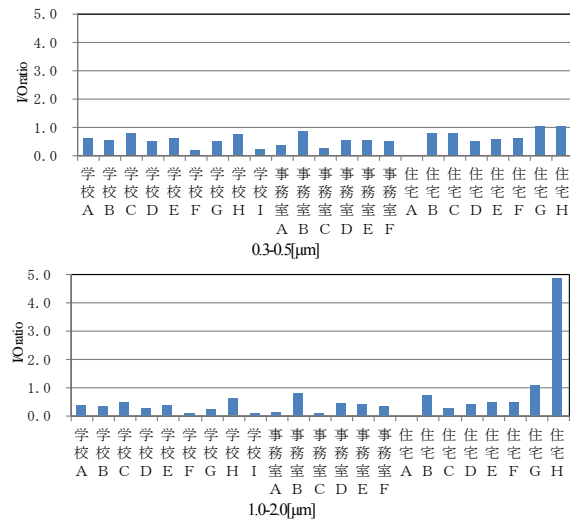


図 2 I/O 比

3.2 微小粒子個数濃度

微小粒子個数濃度について凝縮式粒子計数器（以下 CPC）を使用した。なお、CPC は超微粒子個数濃度 [# cm^3] を測定するための測定器である。測定粒子径は 0.015-1.0 μm であり、粒子測定範囲は $0 \sim 1.0 \times 10^5$ [# cm^3] である。

表 4 に建物使用用途毎の時系列変化の統計値を示す。また、室内平均個数濃度および I/O 比を図 3、図 4 に示す。

一般的に通常の室内環境中には 0.01 μm 以上の粒子では $1.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^4$ [# cm^3] 程度存在しているとされている。今

回の実測についても多くの測定で $1.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^4$ の範囲内にあることがわかる。一方、 1.0×10^4 以上の値を示したのは事務室B、住宅A、住宅F、住宅Hであり、特に個数濃度の高い住宅A、住宅FについてはI/O比もおよそ3.0と高く、喫煙影響のあったことからたばこ煙が要因と考えられる。また、事務室Bについては測定直前まで窓開け換気を行っていたため、外気が室内濃度に影響し高い値を示したと思われる。これは事務室BのI/O比が1.0に近いことから室内濃度に外気からの粒子侵入の影響が大きいことが考えられる。

建物用途別にみると学校が平均で 3.17×10^3 と最も低く、次いで事務室が 7.04×10^3 であり、住宅が 1.61×10^4 と最も高かった。また、I/O比をみると学校および事務室は0.3と低く屋外からの粒子侵入の影響は比較的小さい。しかし、住宅については1.0に非常に近く外気からの粒子侵入の影響が大きいことがわかった。

4. 超微粒子の個数濃度の比較・検討

超微粒子の個数濃度についてはCPCの粒子個数濃度の測定結果からLPCでの質量濃度値を個数濃度に変換した $0.3-1.0 \mu\text{m}$ の粒子個数濃度値を差し引き $0.015-0.3 \mu\text{m}$ の個数濃度を求めた。また、超微粒子の粒径は一般に $0.1 \mu\text{m}$ 以下とされているが本論文では測定器の性能上 $0.015-0.3 \mu\text{m}$ の粒子を超微粒子と称する。

4. 1 超微粒子個数濃度

表5に超微粒子の時系列変化に関する統計値を示す。また、建物用途毎の室内個数濃度およびI/O比を図5に示す。

a) 室内平均個数濃度の検討

室内の超微粒子について建物用途別にみると住宅が 1.6×10^{10} と最も高く、次いで事務室 7.0×10^9 、学校 3.1×10^9 の順に個数濃度が高い傾向にある。住宅の個数濃度が高いのは超微粒子の主要発生源と考えられる料理や掃除、日常生活で使用するスプレーや人の活動による超微粒子の発生が考えられる。また、I/O比をみても同様の傾向が見られるが、室内の個数濃度に比べ学校、事務室での差はあまりない。これは一般の住宅が個別空調方式に対し学校、事務所ビルではエアフィルタを有する中央制御の空調方式であることが多く、この違いがI/O比に影響したと思われる。測定毎にみると住宅Aが室内の個数濃度について最も高くたばこ煙が要因であると考えられる。同様に、喫煙のあった住宅Fも高い値を示しておりI/O比も高い。一方室内の個数濃度が最も低いのは学校FでありI/O比も同様の結果となった。相関係数から室内外の濃度の関連をみると学校F、住宅Fともに多少の相関がみられる結果となった。このことから超微粒子に関しては相関係数とI/O比の関連性はあまり見られない。これは超微粒子に関しては室内空間での粒子の生成、成長の影響が大きく、個数濃度での相関の場合そのプロセスを全て含んでしまうために相関が悪くなっていると予想される。今後、室外にのみ主要な発生源をもつ粒径に関する相関を検討する必要があると思われる。

表4 時系列変化に関する統計値 (0.015-1.0 μm)

	学校 (平均)	事務室 (平均)	住宅 (平均)
平均値	3.17.E+03	7.04.E+03	1.61.E+04
標準偏差	2.08.E+02	5.03.E+02	2.32.E+03
I/O比	0.31	0.34	1.04

単位: #/cm³

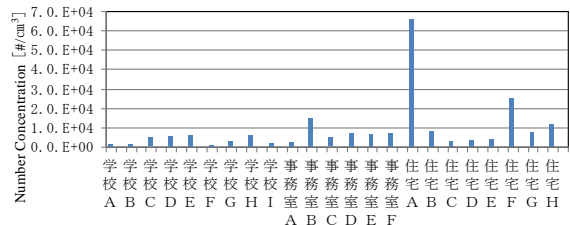


図3 室内平均個数濃度 (0.015-1.0 μm)

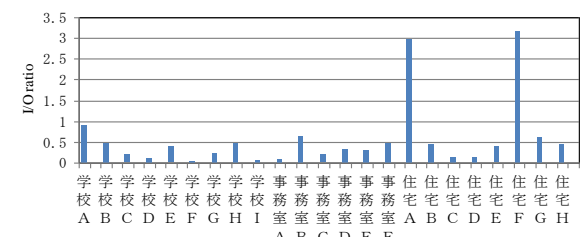


図4 I/O比 (0.015-1.0 μm)

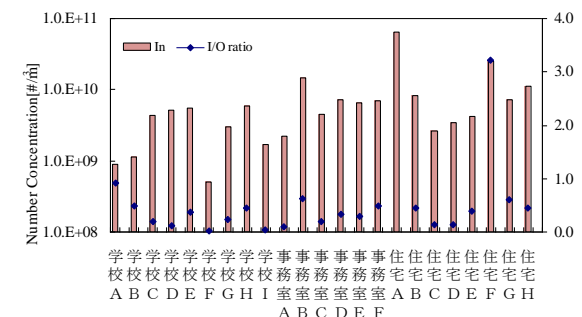


図5 室内平均個数濃度・I/O比

表5 時系列変化に関する統計値 (0.015-0.3 μm)

	学校A	学校B	学校C	学校D	学校E	学校F	学校G	学校H	学校I	学校
室内平均	9.1E+08	1.1E+09	4.4E+09	5.1E+09	5.5E+09	5.0E+08	3.0E+09	5.9E+09	1.7E+09	3.1E+09
屋外平均	9.82E+08	2.3E+09	2.3E+10	4.5E+10	1.5E+10	2.9E+10	1.3E+10	1.3E+10	3.8E+10	2.0E+10
I/O比	0.92	0.48	0.19	0.11	0.37	0.02	0.23	0.46	0.05	0.32
相関係数	0.16	0.29	0.05	0.01	0.72	0.38	0.67	0.93	0.37	0.40
	事務室A	事務室B	事務室C	事務室D	事務室E	事務室F	事務室			
室内平均	2.1E+09	1.5E+10	4.5E+09	7.2E+09	6.5E+09	7.0E+09				7.0E+09
屋外平均	2.4E+10	2.3E+10	2.3E+10	2.2E+10	2.2E+10	1.4E+10				2.1E+10
I/O比	0.09	0.62	0.19	0.33	0.30	0.48				0.34
相関係数	0.11	0.73	0.77	0.18	0.00	0.48				0.38
	住宅A	住宅B	住宅C	住宅D	住宅E	住宅F	住宅G	住宅H	住宅	
室内平均	6.6E+10	8.2E+09	2.6E+09	3.4E+09	4.1E+09	2.5E+10	7.3E+09	1.1E+10	1.6E+10	
屋外平均	1.8E+10	1.9E+10	2.6E+10	1.1E+10	7.9E+09	1.2E+10	2.5E+10		1.7E+10	
I/O比		0.45	0.14	0.13	0.38	3.22	0.60	0.45	0.77	
相関係数		0.53	0.32	0.04	0.44	0.42	0.04	0.81	0.37	

単位: #/cm³

b) 温湿度との比較・検討

図6に温度、相対湿度とI/O比との相関図を示す。温度とI/O比の相関は学校・事務室および住宅ともにほんのわずかながら正の相関がみられる。よって、室内外の温度差による超微粒子侵入への影響は非常に小さいが、屋外の温度が高いときに温度差換気によって室内への侵入が比較的起こりやすいことも考えられる。また、湿度とI/O比の関係は学校・事務室および住宅ともに負の相関であることがわかる。このことから屋外の湿度が高いときに室内

への侵入が起き易く、屋外の湿度が低いときには侵入が起き難い現象が起きていると考えられる。これは湿度が高い場合、静電気が起きないため、粒子侵入の際に隙間や開口部およびダクト内への表面沈着や吸着が起きにくく捕捉されにくいため I/O 比が増加している可能性があり、今後は湿度と粒子侵入の関係を詳細にみていく必要がある。

4. 2 粒径別個数濃度との比較・検証

建物用途毎の各粒径範囲 (0.015-0.3、0.3-0.5、0.5-0.7、0.7-1.0 μm) についての室内平均個数濃度を図 7 に、室内平均個数濃度の粒度分布を図 8 に示す。また、各粒径範囲と I/O 比を図 9 に示す。なお、図 8,9 では横軸 (粒径[μm]) は対数目盛である。

図 7、8 より粒径が小さくなるにつれ粒子個数濃度が高くなっており、0.015-0.3 μm の粒子の数濃度をみるとおよそ $10^9 \sim 10^{11}$ 個/ m^3 の範囲内であることがわかる。他の粒径と比較すると 0.3-0.5 μm の粒子の数濃度でさえも、超微粒子の数濃度の約 100 分の 1 程度の寄与率であり、室内空間については超微粒子の個数濃度が大気中の粒子の大部分を占めていることがわかった。また、建物用途別にみると全粒径で住宅の個数濃度が学校、事務室を上回っている。これは 3.1 の測定結果から 1.0 μm 以上の粒子についても同様の結果であり、住宅の室内については人の活動など微粒子の発生源と考えられる要素が多いことが考えられる。

従来までの粒子侵入に関する研究⁵⁾では一般に 0.1-0.5 μm の粒径範囲で最も侵入しやすくそれ以下の粒子に関しては拡散が強く働くため侵入しにくい可能性が示唆されている。図 9 より学校、事務室については I/O 比が 0.4 μm あたりをピークにそれ以下の粒子に関しては減少傾向にあり、従来と同様の結果となった。

また、住宅については 0.4 μm から I/O 比が増加し 0.6 μm より大きい粒子については I/O 比が 1.0 を超え、室内の粒子個数濃度が屋外よりも高い結果となった。このことから、住宅については学校、事務室に比べて、より粒径の大きな粒子の室内空間に占める割合が高いことがわかった。

5. まとめ

本研究から超微粒子の個数濃度が室内空気中において大部分を占めていることが確認された。また、室内に超微粒子の発生源があることも示唆された。しかし、空調 (換気方式) の違いや温度、相対湿度との関連も見られた。また、建物用途別では超微粒子域も含め住宅の個数濃度が高い結果となった。これにより学校・事務室と住宅については室内空間において明らかに特性が異なることがわかった。今後の課題としては長時間の室内外同時測定、VOC との比較・検証、測定データの蓄積などが挙げられる。

なお、今回は二次生成粒子については実施するに至らなかったが、粒子生成の要因となる物質を特定し、室内でのその挙動について詳細に見ていく必要がある。

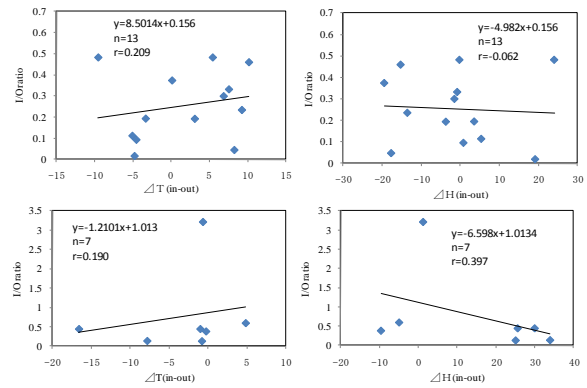


図 6 温湿度差と I/O 比の相関

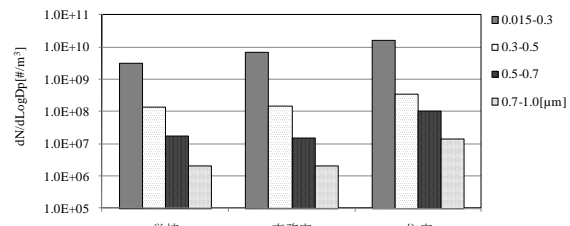


図 7 室内平均個数濃度

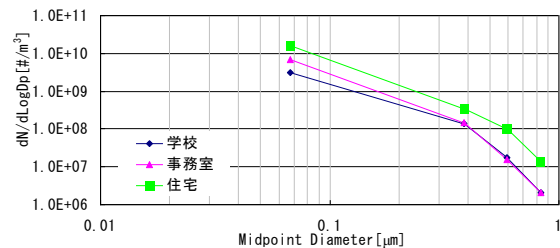


図 8 平均個数濃度 (粒度分布)

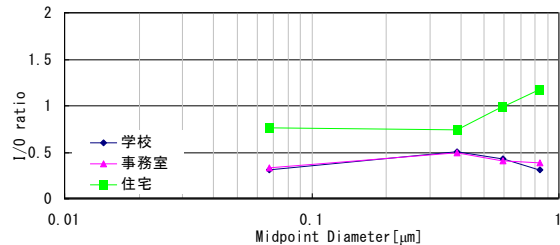


図 9 I/O 比

【参考文献】

- 1) 本間克典他：実用エアロゾルの計測と評価、1990.7
- 2) 日本エアロゾル学会：エアロゾル用語集、2004.8
- 3) 横山栄二他：大気中微小粒子の環境・健康影響、2000.12
- 4) 根本智之：事務所ビルにおける浮遊超微粒子の分布に関する研究；芝浦工業大学学士論文、2005.3
- 5) 関口和彦：粒子状汚染物質の粒径別内気外気相関からみた人間活動の影響；第 24 回エアロゾル額・技術討論会、2007
- 6) 関口和彦他：道路近傍大気中における超微粒子の挙動；埼玉大学紀要工学部第 39 号研究成果報告、2006

【謝辞】

本研究では平成 21 年度科学研究費補助金「室内ナノ粒子の新展開-二次生成ナノ有機エアロゾルの発生・挙動・制御 (代表者：藤井修二) により行った。ここに謝意を表す。