横浜市周辺の公共建築物と一般住宅における 室内環境中化学物質濃度

田中 礼子^{1,2)}, 内山 茂久²⁾, 稲葉 洋平²⁾, 樺田 尚樹²⁾

¹⁾横浜市衛生研究所 (〒236-0051 神奈川県横浜市金沢区富岡東2-7-1)

²⁾国立保健医療科学院 (〒351-0197 埼玉県和光市南2-3-6)

[平成27年11月2日受付, 平成28年1月12日受理]

Indoor Air Quality of Institutional Buildings and Residential Houses in Yokohama

Reiko TANAKA^{1,2)}, Shigehisa UCHIYAMA²⁾, Yohei INABA²⁾ and Naoki KUNUGITA²⁾

¹⁾Yokohama City Institute of Public Health

(2-7-1 Tomiokahigashi, Kanazawa, Yokohama, Kanagawa 236-0051)

²⁾National Institute of Public Health

(2-3-6 Minami, Wako, Saitama 351-0197)

[Received November 2, 2015; Accepted January 12, 2016]

Summary

Indoor air quality is a significant concern, because when the hours spent sleeping, working in offices or at school are added up, people on average spend the vast majority of their time indoors where they are repeatedly exposed to indoor air pollutants. In this study, gaseous chemical compounds in institutional and residential buildings were measured in order to evaluate chemical exposure to office worker. Gaseous chemical compounds were measured in indoor and outdoor air of 18 institutional buildings and 77 residential houses throughout Yokohama in winter and summer. Four kinds of diffusive samplers were used in this study: DSD-BPE/DNPH packed with 2,4-dinitrophenylhydrazine and *trans*-1,2-bis (2-pyridyl) ethylene coated silica for ozone and carbonyls; VOC-SD packed with Carboxen 564 particles for volatile organic compounds; DSD-TEA packed with triethanolamine impregnated silica for acid gases; and DSD-NH₃ packed with phosphoric acid impregnated silica for basic gases. As results of this study, there were no institutional buildings exceeding Ministry of Health, Labour and Welfare, Japan (MHLW) guidelines in winter and summer. However, in residential houses, 19% houses in summer and 15% houses in winter exceeded guidelines by MHLW. Total gaseous chemical compounds of institutional buildings is about half of residential houses in both summer and winter. Almost all compounds in residential indoor air were present at higher levels in summer than in winter. However, the nitrogen dioxide concentrations in residential indoor air particularly increased only during winter and was well correlated with the formic acid concentration (correlation coefficient=0.958).

Key words: indoor air quality, institutional buildings, diffusive sampler

1. はじめに

室内環境中の化学物質の中には、厚生労働省による室内濃度指針値等が定められているものを含め多様な物質が存在する。室内空気質は建築物の種類や用途、室内の建材や什器等の使用状況などにより異なる。したがって、居住空間の安全性確保のためには、様々な室内環境に存在する化学物質を総合的に把握する必要がある。都会に居住する人は一日の中で90%の時間を住宅や公共建築物などの室内環境で過ごし¹⁾、60%の時間を自宅で過ごしている²⁾という報告もあり、人の生活サイクルの中で自宅は長時間を過ごす代表的な居住空間である。また、勤労者にとっては、職種などにもよるが職場

も自宅同様に代表的な居住空間となっていることが多い。その他、不特定多数の人が日中に利用する居住空間のひとつに公共建築物があげられる。公共建築物で日中を過ごすのは施設の利用者だけでなく、そこで働いている人もいるため、公共建築物には職場としての側面もある。しかし、自宅と公共建築物とでは室内の建材や什器等以外に広さや空調設備等も異なっており、室内空気質にも相違があることが予想される。異なる空気環境が人に及ぼす影響を総合的に把握するためには、自宅、職場、屋外などのそれぞれの場所の空気環境の調査を併せて行う必要がある。

日本国内における一般住宅の室内環境については、2000～2004年に冬季を中心とした全国調査³⁾が、また2011～2014年には夏季

と冬季における全国調査^{4,5)}が実施され、詳細な室内空気質の把握がなされている。しかし、人が自宅と同様に長時間を過ごす公共建築物に焦点を当てた報告は少なく、1～2施設を対象としたスポット的な調査報告⁶⁾が行われているのみである。さらに、公共建築物と一般住宅の室内空気質を同時期に調査し、比較した報告はない。

空気中の化学物質濃度の測定方法としては、拡散サンプラー法⁷⁻¹⁰⁾とアクティブサンプリング法¹¹⁾の2種類の方法がある。拡散サンプラーは、小型軽量でサンプリング用のポンプを必要としないため、場所を選ばず、操作が簡便で、騒音がないという特徴がある。また、郵送で送付・回収ができるため、同時期に多地点で調査することが可能である。

本研究では、オゾン、アルデヒド類、ケトン類、ギ酸、酢酸、二酸化窒素、二酸化硫黄、アンモニア、揮発性有機化合物（VOCs）を捕集することができる4種の拡散サンプラーを用いることで、広範囲に及ぶ化学物質に関し、横浜市内の18公共建築物の屋内・屋外にて、夏季・冬季の2回にわたる一斉調査を単年で行った。また、これと併せて横浜市およびその周辺地域にある一般住宅77戸の屋内・屋外においても同時期に同様の測定を行った。そして、これらにより同一地域における公共建築物と一般住宅という異なる空気環境中の化学物質の夏季および冬季における実態を調査し、これらの比較を行うとともに、都市部に居住する人を取りまく空気環境について検討を行った。

2. 方法

2. 1 調査期間および調査対象施設

夏季（2012年7～9月初旬）および冬季（2012年12月～2013年3月）に計95棟の公共建築物あるいは一般住宅において空気環境実態調査を行った。

公共建築物における調査は、横浜市内にある公共建築物18施設において行った。調査対象とした施設は全て特定建築物に該当する大規模施設、かつ、不特定多数の市民が利用する用途の施設を横浜市内18区のほぼ全域から1または2施設ずつ選定し、各施設の事務フロアおよび屋外において測定を実施した。調査した公共建築物の場所をFig. 1に示す。

一般住宅における調査は、横浜市およびその周辺地域にある個人が居住する住宅77戸を調査対象として、一般住宅の屋内、屋外において測定を実施した。

2. 2 調査方法

測定箇所に4種類の拡散サンプラーを設置して24時間の測定を行い、計55物質の空気環境中化学物質濃度の測定を行った。また、住宅の種類や築年数、冷暖房器具の使用状況などの調査対象施設および測定箇所の状況に関してはアンケートにより調査を行った。

2. 2. 1 調査に用いた拡散サンプラーと測定対象物質

DSD-BPE/DNPH

原理：空気中のアルデヒド類は、2,4-ジニトロフェニルヒドラジン（DNPH）と反応してヒドラゾン誘導体を生成する。また、オゾンは *trans*-1,2-ビス（2-ピリジル）エチレン（BPE）と反応してピリジン-2-アルデヒド（2PA）を生成し^{12,13)}、この2PAがDNPHと反応しヒドラゾン誘導体を生成する。これらの誘導体をHPLCで分析することで、オゾンとカルボニル化合物の同時測定が可能になる⁹⁾。また、DNPH及びアルデヒドのヒドラゾン誘導体はオゾンで破壊されることが報告¹⁴⁻¹⁶⁾されているが、DNPHと共に含まれるBPEはオゾンスクラバーとしても働き、オゾンによるヒドラゾン誘導体の破壊を防ぐことができる。

作製方法：シリカゲル100 gを水、メタノール、アセトニトリルでよく洗浄した後、BPE（7 g）、DNPH 塩酸塩（1 g）、リン酸（1.2 mL）を添加した。その後、ロータリーエバポレーター（40℃）を用いて減圧乾固させ、密封容器に保存した。このBPE/DNPH 含浸シリカゲル270 mgを、空の拡散サンプラー Diffusive Sampling Device（DSD）に充填しDSD-BPE/DNPHとした。

分析方法：ジメチルスルホキシド/アセトニトリル（25/75）混合溶液5 mLでDSD-BPE/DNPHを溶出し、HPLCで分析した。この際、DNPH誘導体の異性化¹⁷⁻¹⁹⁾を考慮し、これらの標準溶液にリン酸を0.1%添加して異性体比を一定にした後、分析を行った。オゾンの他、21成分のカルボニル化合物が定量可能である。

DSD-TEA

原理：大気中の二酸化窒素、二酸化硫黄、塩化水素、カルボン酸などの酸性ガスは、トリエタノールアミン（TEA）と反応して対応する陰イオンを生成する。この各種陰イオンをICで分析することにより、酸性ガスを定性、定量することができる。

作製方法：シリカゲル100 gを純水、アセトニトリルでよく洗浄した後、TEAを10 mL添加した。その後、ロータリーエバポレーター（40℃）を用いて減圧乾固させ、密封容器に保存した。このTEA 含浸シリカゲル250 mgを空のDSDに充填しDSD-TEAとした。

分析方法：純水5 mLでDSD-TEAを溶出し、ICで分析した。

DSD-NH₃

原理：大気中のアンモニアやトリメチルアミンなどの塩基性ガスは、リン酸と反応して対応する陽イオンを生成する。この陽イオンをICで分析することにより、アンモニアを定性、定量することができる。

作製方法：シリカゲル100 gを純水、アセトニトリルでよく洗浄した後、リン酸を5 mL添加した。その後、窒素ガス雰囲気中でロータリーエバポレーター（40℃）を用いて減圧乾固させ、密封容器に

Fig. 1 Location of institutional buildings in Yokohama City

保存した。このリン酸含浸シリカゲル250 mg を空の DSD に充填し DSD-NH₃とした¹⁰⁾。DSD-NH₃はアルミ製保存袋に入れ密閉した。

分析方法：純水 5 mL で DSD-NH₃を溶出し、IC で分析した。

VOC-SD

原理：大気中の VOCs は、炭素系吸着剤（カーボンモレキュラーシーブス）に物理的に吸着する。吸着した VOCs を GC/MS で分析することにより、VOCs を定性、定量することができる。

分析方法：サンプラー内の吸着剤をバイアルに移し、二硫化炭素 1 mL、内部標準液（10 µg/mL ベンゼン-d₆メタノール溶液）10 µL を加え振とうし、GC/MS で分析した。検量線には市販の VOCs 混合標準液（関東化学製、45成分、1 mg/mL）を用い、0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5 mg/L に調製した標準溶液を使用した。なお、TVOC 濃度は定量したこれら VOCs 濃度を合計して求めた。

2. 2. 2 温湿度測定

測定期間中の屋内の温湿度は、おんどとり（TR-72Ui, T&D 社製）を用いて10分間隔で記録した。屋外の温湿度については、測定期間中のアメダス（気象庁）横浜のデータを用いた。

3. 結果と考察

3. 1 ガス状化学物質濃度

公共建築物および一般住宅における屋内と屋外の代表的な化学物質の濃度（算術平均値、中央値、最大値）について、夏季の値を Table 1 に、冬季の値を Table 2 に示す。

厚生労働省は室内濃度指針値（以下、指針値）を、ホルムアルデヒド（100 µg/m³）、アセトアルデヒド（48 µg/m³）、トルエン（260 µg/m³）、キシレン（870 µg/m³）、エチルベンゼン（3800 µg/m³）、パラジクロロベンゼン（240 µg/m³）、暫定目標値として TVOC（400 µg/m³）、暫定指針値案としてノナール（41 µg/m³）を策定している。これらの室内濃度指針値および暫定目標値、並びに暫定指針値案（以下、指針値等）と本調査における測定結果との比較を行った。

公共建築物18施設においては、夏季および冬季の屋内・屋外とも調査対象とした化学物質の中では指針値等を超過した物質はなく、室内空気質は良好であると考えられた。

本調査対象の公共建築物は全て、建築物における衛生的環境の確保に関する法律（ビル管法）による規制に加え、横浜市が独自に定めている横浜市公共建築物シックハウス対策ガイドラインを順守している施設である。本ガイドラインでは多数の市民が利用する公共建築物に関して、建築設計・工事施工の際だけでなく仕器類の選定や日常管理の際にもシックハウス症候群の防止に留意し、換気の励行や化学製品の使用への配慮を行うとともに、安全確認として新築・改築時や竣工後初めての夏季などにはホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、スチレンの6物質のみではあるが室内濃度測定を実施し、室内空気質の安全確認を行うこととされている。これらの規制による室内空気中化学物質の低減化には一定の効果があることが示唆された。

一般住宅屋内において何らかの物質の濃度が指針値等を超過した住宅は、77戸中で夏季が15戸（19%）、冬季が4戸（5.2%）であった。一方、屋内の延べ超過物質数については夏季が25物質、冬季が5物質であり、夏季・冬季とも複数の物質が指針値等を超過した住宅が存在した。指針値等の超過が認められた物質は夏季がホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、トルエン、パラジクロロベンゼンおよび TVOC、冬季がアセトアルデヒド、パラジクロロベンゼンおよび TVOC であった。なお、一般住宅屋外においては夏季および冬季とも調査対象とした化学物質の中では指針値等を超過した物質はなかった。

夏季において、一般住宅77戸のうち屋内でホルムアルデヒドが指針値（100 µg/m³）を超過したのは3戸（3.9%）であり、それぞれの屋内濃度は220 µg/m³、210 µg/m³、110 µg/m³であった。アセトアルデヒドについては指針値（48 µg/m³）を超過した住宅は77戸中の5戸（6.5%）であり、屋内濃度は210 µg/m³、85 µg/m³、61 µg/m³、54 µg/m³、49 µg/m³であった。アセトアルデヒド濃度が最も高かった住宅は指針値の4倍以上の数値を示していた。トルエンについては指針値（260 µg/m³）を超過した住宅が77戸中1戸（1.3%）で、屋内濃度は330 µg/m³であった。パラジクロロベンゼンについては指針値（240 µg/m³）を超過した住宅が77戸中4戸（5.2%）だった。パラジクロロベンゼンの屋内濃度が最も高かった住宅は2200 µg/m³と指針値の9倍以上の数値を示し、以下、1400 µg/m³、890 µg/m³、410 µg/m³と、それぞれ指針値の5.8倍、3.7倍、1.7倍の数値であった。なお、夏季の一般住宅において全測定対象物質中で最も濃度が高かった物質はパラジクロロベンゼンであり、上位2つのものがそれぞれ1、2番目に高い数値を示していた。TVOC については暫定目標値（400 µg/m³）を超過した住宅が12戸（超過率16%）だった。TVOC が最も高い数値を示した住宅は5000 µg/m³と、暫定目標値の12倍以上の屋内濃度を示しており、この住宅はパラジクロロベンゼンおよびアセトアルデヒドが指針値を超過していた。TVOC が暫定目標値の2倍以上の屋内濃度を示した住宅はこの他に3戸あり、1500 µg/m³、970 µg/m³、890 µg/m³であった。

冬季においては、アセトアルデヒドについて屋内で指針値（48 µg/m³）を超過した住宅が77戸中3戸（3.9%）であり、屋内濃度はそれぞれ140 µg/m³、54 µg/m³、52 µg/m³であった。パラジクロロベンゼンについては、屋内にて指針値（240 µg/m³）を超過した住宅が77戸中1戸（1.3%）あり、屋内濃度は1600 µg/m³と指針値の約6.7倍を示した。この濃度は冬季の一般住宅において、全測定対象物質中で最も高い値であった。TVOC については暫定目標値（400 µg/m³）を超過したのは77戸中1戸（1.3%）で、屋内濃度は1600 µg/m³を示した。この住宅は前述のパラジクロロベンゼンが指針値を超過した住宅と同じ住宅であり、TVOC 超過の主因はパラジクロロベンゼンであった。

3. 2 公共建築物と一般住宅の比較

公共建築物と一般住宅の空気環境について比較を行った。各建築物ごとに、本調査で測定対象とした55物質全ての濃度の合計値（総和）を夏季・冬季の屋内・屋外について求め、この平均値を公共建築物と一般住宅で比較した（Fig. 2）。なお、平均値の差の検定には Welch's test（片側）を用いた。

屋外濃度の平均値については夏季が公共建築物と一般住宅がいずれも180 µg/m³、冬季は公共建築物と一般住宅がそれぞれ170 µg/m³と160 µg/m³であり、夏季・冬季とも公共建築物と一般住宅で有意差はなかった。一方、屋内濃度の平均値は、夏季に公共建築物が330 µg/m³、一般住宅が620 µg/m³と、公共建築物は一般住宅の53%の値を、冬季に公共建築物が210 µg/m³、一般住宅が490 µg/m³と、公共建築物は一般住宅の43%の値を示した。公共建築物における化学物質の屋内濃度の総和は夏季、冬季とも一般住宅より有意に低い値だった（いずれも $p < 0.01$ ）。建築物における衛生的環境の確保に関する法律や横浜市公共建築物シックハウス対策ガイドラインの規制を受けている公共建築物の方が室内空気中化学物質の総量が小さい傾向にあった。

公共建築物と一般住宅について、各建築物の築年数（改築した建築物については直近の改築からの年数）および夏季と冬季の代表的な化学物質の屋内濃度を Fig. 3 と Fig. 4 に示す。なお、オゾンに関しては夏季と冬季の屋内及び屋外濃度を Fig. 5 に示す。

Table 1 Summer concentrations of gaseous chemical compounds in indoor and outdoor air at 18 institutional buildings and 77 residential houses in Yokohama ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

compounds	Institutional building (n=18)						Residential house (n=77)					
	Indoor air			Outdoor air			Indoor air			Outdoor air		
	mean	median	max.	mean	median	max.	mean	median	max.	mean	median	max.
formaldehyde	22	21	44	3.8	3.6	6.1	40	32	220	4.5	4.2	12
acetaldehyde	13	12	26	3.1	2.7	5.8	21	14	210	3.0	2.8	6.0
propanal	6.0	6.1	11	1.2	1.3	2.3	7.0	4.3	29	1.2	1.3	2.4
<i>i</i> -valeraldehyde	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.1	n.d.	4.6	n.d.	n.d.	n.d.
valeraldehyde	1.2	1.1	2.6	0.1	n.d.	0.7	2.6	1.3	34	0.2	n.d.	1.2
hexanal	4.5	4.0	7.8	n.d.	n.d.	0.7	9.9	4.8	110	0.1	n.d.	1.2
heptanal	0.1	n.d.	1.0	n.d.	n.d.	n.d.	0.7	n.d.	4.5	n.d.	n.d.	n.d.
octanal	0.9	1.1	2.2	0.1	n.d.	2.0	1.7	1.8	4.8	0.1	n.d.	3.2
nonanal	8.8	8.7	16	4.4	5.4	8.1	11	11	24	5.6	6.0	9.5
decanal	2.2	2.6	5.3	0.2	n.d.	2.0	3.8	3.7	9.5	0.5	n.d.	3.6
benzaldehyde	2.4	1.3	12	0.1	n.d.	1.1	1.6	1.3	8.0	0.1	n.d.	1.3
<i>o</i> -tolualdehyde	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	1.0	n.d.	n.d.	1.0
<i>m,p</i> -tolualdehyde	1.5	1.6	3.1	0.5	n.d.	1.4	1.6	1.2	11	0.8	0.9	2.2
2,5-DMBA	1.8	2.2	3.5	2.0	1.9	6.5	1.6	1.4	11	1.5	1.5	7.4
acrolein	0.9	0.8	1.7	0.2	n.d.	1.3	1.0	0.9	2.5	0.3	n.d.	1.4
crotonaldehyde	n.d.	n.d.	0.7	0.1	n.d.	1.1	0.2	n.d.	1.8	n.d.	n.d.	0.7
2-nonenal	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.3	n.d.	2.7	n.d.	n.d.	1.1
acetone	13	14	20	3.2	2.5	8.0	23	16	200	3.8	3.4	16
2-butanone	1.5	1.3	4.3	0.4	n.d.	1.8	1.7	1.3	7.7	0.5	0.5	2.2
hexane	2.9	2.1	7.1	2.3	1.2	17	7.0	2.0	240	1.3	1.0	4.3
heptane	0.7	n.d.	3.3	0.1	n.d.	1.2	2.1	n.d.	49	0.1	n.d.	5.6
octane	0.7	n.d.	3.5	n.d.	n.d.	n.d.	1.7	n.d.	30	n.d.	n.d.	0.6
nonane	1.3	n.d.	21	n.d.	n.d.	n.d.	2.8	n.d.	36	0.1	n.d.	3.9
decane	1.9	n.d.	25	0.4	n.d.	2.7	3.8	0.1	32	1.3	n.d.	8.9
undecane	18	11	77	0.9	n.d.	8.7	19	9.9	310	2.5	n.d.	19
benzene	1.4	1.4	2.7	1.2	1.5	2.2	1.2	1.0	6.5	1.1	0.9	9.3
toluene	19	8.1	190	5.0	4.6	13	20	9.0	330	11	5.7	83
ethylbenzene	4.4	3.9	9.8	2.2	2.1	5.8	6.7	2.5	110	2.2	2.0	11
<i>o</i> -xylene	1.5	1.8	4.0	0.5	n.d.	2.5	2.7	1.8	19	0.9	1.0	4.0
<i>m,p</i> -xylene	5.0	4.3	11	2.2	2.0	6.1	6.3	3.6	63	2.5	2.4	7.8
1,3,5-TMB	0.8	n.d.	9.1	0.1	n.d.	1.1	0.8	n.d.	8.4	0.1	n.d.	1.9
1,2,4-TMB	3.5	1.9	31	0.4	n.d.	3.7	2.6	1.5	26	0.6	n.d.	4.9
1,2,3-TMB	0.4	n.d.	6.2	n.d.	n.d.	n.d.	0.5	n.d.	4.9	n.d.	n.d.	n.d.
α -pinene	1.7	1.2	7.8	n.d.	n.d.	0.4	51	3.3	1400	0.5	n.d.	5.9
<i>d</i> -limonene	1.4	n.d.	7.1	n.d.	n.d.	n.d.	22	10	220	0.6	n.d.	9.3
<i>p</i> -dichlorobenzene	4.5	4.3	9.9	1.2	0.6	4.8	85	5.6	2200	4.3	2.8	49
ethyl acetate	3.0	n.d.	36	0.1	n.d.	1.4	12	n.d.	550	0.3	n.d.	19
butyl acetate	0.9	n.d.	14	0.2	n.d.	3.0	8.3	n.d.	100	0.2	n.d.	5.6
ozone	3.9	3.1	7.7	27	24	65	7.7	5.2	43	32	26	85
hydrogen chloride	0.9	0.7	2.3	2.1	1.1	18	1.6	1.5	13	1.6	1.6	3.2
nitrogen dioxide	9.9	8.3	19	16	12	49	16	13	85	16	13	49
sulfur dioxide	0.4	0.6	1.0	2.1	1.1	6.0	0.6	0.6	3.8	1.4	0.9	6.2
formic acid	22	22	31	14	13	25	25	22	80	12	12	25
acetic acid	100	85	230	70	54	170	150	120	550	51	34	190
ammonia	44	45	61	13	15	19	37	29	160	8.4	7.2	23
temperature ($^{\circ}\text{C}$)	28	28	31	28	29	29	28	28	33	26	27	29
humidity (%)	58	58	66	73	75	81	66	67	82	79	78	94

n.d., not detected

3. 2. 1 カルボニル化合物

カルボニル化合物の屋内平均値について、公共建築物の数値が一般住宅よりも低いものは19物質中で夏季は16物質、冬季は14物質と過半数にのぼった。一方、屋外平均値については夏季が9物質、冬季は4物質であった。屋内にて特に夏季、公共建築物の方が一般住宅よりも平均値が低くなっている物質が多かった。

ホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒドの平均値に関し、屋内においては、どちらの物質とも夏季と冬季を比較すると夏季の平均値が大きく、公共建築物と一般住宅を比較すると一般住宅の平均値が大きかった。公共建築物と一般住宅とで平均値の差の検定を行ったところ、屋内におけるホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒド

はいずれも夏季・冬季ともに一般住宅の平均値が公共建築物よりも有意に高い値を示していた（夏季・冬季ホルムアルデヒドおよび冬季アセトアルデヒド： $p < 0.01$ ，夏季アセトアルデヒド： $p < 0.05$ ）。また、ノナナールについては夏季・冬季とも公共建築物屋内の平均値が一般住宅屋内よりも有意に低い値であった（夏季： $p < 0.05$ ，冬季： $p < 0.01$ ）。なお、屋外における平均値についてはホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ノナナールともそれぞれの屋内よりも低い値であった。ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドがシックハウス症候群の代表的な原因物質であることは従来から知られている。しかし、未だに厚労省が示した室内濃度指針値を超過する一般住宅もある中で、公共建築物の室内濃度が低めの値を示した点にお

Table 2 Winter concentrations of gaseous chemical compounds in indoor and outdoor air at 18 institutional buildings and 77 residential houses in Yokohama ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

compounds	Institutional building (n=18)						Residential house (n=77)					
	Indoor air			Outdoor air			Indoor air			Outdoor air		
	mean	median	max.	mean	median	max.	mean	median	max.	mean	median	max.
formaldehyde	6.3	5.8	10	1.9	1.8	2.9	13	11	36	1.8	1.6	5.5
acetaldehyde	6.7	6.7	8.7	2.9	2.8	4.7	20	16	140	2.6	2.6	5.9
propanal	1.8	1.1	6.1	0.5	0.6	1.0	3.9	2.6	18	0.6	0.5	2.0
<i>i</i> -valeraldehyde	0.5	0.6	1.0	0.4	0.5	1.3	0.5	0.6	1.6	0.4	0.5	1.6
valeraldehyde	0.6	0.7	1.4	0.7	0.7	1.6	0.9	0.7	6.0	0.6	0.6	1.7
hexanal	1.9	1.7	5.9	0.5	0.7	1.2	3.5	2.3	23	0.7	0.8	2.0
heptanal	1.0	1.1	2.1	1.0	0.9	2.0	1.1	1.0	4.3	0.9	0.9	2.6
octanal	1.1	1.1	1.5	1.1	1.1	1.8	1.4	1.2	3.5	1.0	1.1	2.9
nonanal	2.0	2.1	3.6	1.3	1.4	2.1	3.3	2.6	18	1.4	1.3	6.7
decanal	1.4	1.5	2.3	1.7	1.6	3.5	1.6	1.5	3.4	1.5	1.5	4.4
benzaldehyde	1.0	0.9	2.5	0.7	0.6	1.3	0.9	0.7	4.5	0.5	0.6	1.4
<i>o</i> -tolualdehyde	0.5	0.4	1.4	0.6	0.8	1.3	1.6	0.8	61	0.6	0.8	2.1
<i>m,p</i> -tolualdehyde	1.0	1.0	2.3	0.7	0.8	1.3	2.5	0.9	120	0.7	0.8	2.3
2,5-DMBA	1.1	1.1	2.7	1.0	1.1	1.6	1.2	1.1	5.2	1.0	1.1	2.3
acrolein	0.5	0.4	1.0	0.4	0.3	0.8	0.5	0.4	3.7	0.3	0.3	0.9
crotonaldehyde	0.5	0.4	1.4	0.5	0.5	0.9	0.5	0.4	5.1	0.4	0.4	1.5
2-nonenal	0.6	0.4	1.7	0.7	0.9	1.9	0.7	0.9	2.2	0.8	0.9	4.5
acetone	11	11	19	4.2	4.0	8.0	30	15	1000	3.7	3.3	9.7
2-butanone	2.1	1.6	6.4	1.2	1.1	2.5	1.7	1.2	23	0.9	0.7	4.2
hexane	8.8	2.9	100	1.6	1.2	6.0	2.3	1.3	17	2.6	0.8	96
heptane	1.2	0.9	4.1	0.2	n.d.	0.8	1.9	0.6	32	0.1	n.d.	1.0
octane	0.4	0.3	2.0	0.1	n.d.	0.3	2.4	n.d.	110	0.1	n.d.	0.9
nonane	0.6	0.6	2.1	0.4	0.4	1.3	3.8	0.6	38	0.4	0.3	2.7
decane	1.3	0.9	6.3	1.2	0.9	4.8	5.5	1.9	54	1.6	1.3	6.5
undecane	3.9	4.0	8.3	1.9	1.8	7.3	9.6	3.0	140	2.1	1.8	8.7
benzene	2.0	1.7	4.3	1.6	1.2	3.3	1.6	1.5	10	1.4	1.3	4.1
toluene	13	9.1	52	9.4	6.7	56	8.3	6.0	53	5.4	3.6	55
ethylbenzene	3.3	3.0	6.3	2.2	2.0	4.5	2.2	1.9	6.5	1.4	1.2	4.3
<i>o</i> -xylene	1.7	1.6	3.3	1.2	1.2	2.6	1.8	1.2	7.4	1.0	0.9	4.4
<i>m,p</i> -xylene	4.7	4.3	7.2	3.5	3.5	6.3	4.5	3.3	16	2.8	2.7	6.3
1,3,5-TMB	0.9	0.7	2.4	0.4	0.4	1.3	1.0	0.6	6.2	0.5	0.4	1.8
1,2,4-TMB	2.3	1.9	8.2	1.5	1.3	2.9	3.2	1.5	21	1.5	1.2	4.2
1,2,3-TMB	0.4	0.3	1.5	0.2	0.3	0.7	0.8	0.3	7.0	0.3	0.2	1.0
α -pinene	0.1	n.d.	0.8	n.d.	n.d.	0.3	7.8	2.0	120	0.1	n.d.	1.6
<i>d</i> -limonene	2.1	2.3	5.4	n.d.	n.d.	n.d.	22	14	200	0.2	n.d.	3.3
<i>p</i> -dichlorobenzene	2.5	2.0	7.1	0.2	n.d.	1.3	29	1.7	1600	0.9	n.d.	34
ethyl acetate	3.1	1.9	22	0.4	n.d.	1.9	2.0	n.d.	56	0.5	n.d.	18
butyl acetate	0.4	n.d.	1.5	0.3	n.d.	2.0	1.7	n.d.	14	0.2	n.d.	1.8
ozone	0.8	0.7	2.6	23	24	35	1.0	0.7	6.4	29	30	55
hydrogen chloride	1.6	0.8	10	1.4	1.0	5.4	2.0	0.8	20	1.7	0.6	25
nitrogen dioxide	37	32	81	43	36	84	150	40	1300	28	23	110
sulfur dioxide	0.8	0.8	3.0	2.1	1.8	5.5	0.8	0.6	12	1.5	1.4	5.4
formic acid	9.2	9.0	16	9.4	8.8	16	32	13	310	8.6	9.1	20
acetic acid	45	40	96	32	28	81	87	76	330	41	31	150
ammonia	18	16	32	6.0	4.6	17	16	13	80	5.0	3.3	42
temperature ($^{\circ}\text{C}$)	20	20	23	6.4	6.3	9.5	16	16	24	5.3	5.4	15
humidity (%)	41	41	52	59	61	76	46	45	77	45	42	84

n.d., not detected

いて、公共建築物の室内空気質は一般住宅よりも良好であると言える。

3. 2. 2 VOCs

VOCsの屋内平均値について、公共建築物の数値が一般住宅よりも低いものは28物質中で夏季は21物質、冬季は18物質と過半数にのぼった。一方、屋外については28物質中で夏季が13物質、冬季は11物質であった。屋内にて特に夏季、公共建築物の方が一般住宅よりも平均値が低くなっている物質が多かった。

パラジクロロベンゼンに関し、夏季屋内の平均値は公共建築物が一般住宅の5.3%の値を示したのに対し、中央値は77%の値であった。また、冬季屋内の平均値は公共建築物が一般住宅の8.6%の値

だったのに対し、公共建築物と一般住宅の中央値はほぼ同じ値であるなど、特に一般住宅屋内での平均値が高く、かつ、平均値と中央値とが乖離した数値となっていた。各建築物におけるパラジクロロベンゼンの室内濃度は指針値の240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に比べ、夏季において最大で2200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ など、突出した屋内濃度を示した一部の一般住宅がある一方で、残り9割の一般住宅（77戸中69戸）および全公共建築物の屋内濃度は指針値の半分の値である120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であった。また、冬季においても一般住宅屋内にて1600 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と指針値（240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）を超えて突出した数値を示した住宅（1戸）があったが、他の一般住宅（77戸中76戸）および全公共建築物の屋内濃度は指針値の半分の値以下だった。パラジクロロベンゼンの濃度分布にこの

Fig. 2 Mean concentrations of total gaseous compounds in indoor and outdoor air at 18 institutional buildings and 77 residential houses in summer and in winter

ような特徴があったため、平均値と中央値とが乖離したものと思われる。これは、パラジクロロベンゼンの発生源となる防虫・防臭剤などの化学製品（パラジクロロベンゼン製剤）を使用している住宅と使用していない住宅とで室内濃度が大きく分かれたことが原因と考えられる。

公共建築物と一般住宅とでパラジクロロベンゼンの平均値について有意差検定を行ったところ、夏季屋内において、一般住宅の平均値は公共建築物よりも有意に高い値を示した（ $p < 0.05$ ）。冬季屋内については公共建築物と一般住宅とで有意差はなく、また、公共建築物および一般住宅とも90%タイル値が指針値の1/10以下の数値であり、いずれも室内濃度は低い値を示していた。一般住宅においてパラジクロロベンゼンの使用に関しては特に規制がないが、横浜市公共建築物シックハウス対策ガイドラインでは公共建築物の運営にあたり、日常管理としてシックハウス症候群を引き起こす可能性のある化学物質の使用を避けるなどの配慮を行うこととしている。このような規制も公共建築物のパラジクロロベンゼンの屋内濃度を下げる一因となっていると思われる。

トルエンの屋内における平均値は、夏季、公共建築物は一般住宅の95%の値、冬季は160%の値であった。公共建築物と一般住宅とで夏季の平均値に有意差はなかったが、冬季については公共建築物の方が一般住宅よりも有意に高い数値を示した（ $p < 0.05$ ）。しかし、

Fig. 3 Ages of 77 residential houses and 18 institutional buildings

公共建築物および一般住宅とも90%タイル値が指針値の1/10以下の数値であり、いずれも室内濃度は低い値を示していた。屋外平均値は公共建築物、一般住宅とも屋内の数値よりも低い値であった。

キシレンの屋内における平均値は夏季、公共建築物が一般住宅の73%の値を示したが、冬季はほぼ同じ値を示した。夏季、冬季とも公共建築物と一般住宅の屋内濃度に有意差はなく、公共建築物および一般住宅とも90%タイル値が指針値の1/10以下の数値と、室内濃度は低い値を示していた。また、屋外では公共建築物と一般住宅の夏季の値がいずれも屋内の数値より低い値であった。

エチルベンゼンの測定値は厚労省の示した室内濃度指針値よりも極めて低く、夏季に110 µg/m³を示した一般住宅が2戸あった他は、公共建築物も含めた全ての調査対象施設の屋内濃度は夏季・冬季とも20 µg/m³未満の数値であった。

α -ピネンおよび d -リモネンはいずれもテルペン類であるが、これら2物質については公共建築物と一般住宅の屋内濃度に大きく相違が見られた。屋内において、夏季に α -ピネンの平均値は公共建築物が一般住宅の3.3%、 d -リモネンは6.4%の値を示した。冬季においては α -ピネンの平均値は公共建築物が一般住宅の1.3%、 d -リモネンは9.5%の値を示した。一方、屋外における α -ピネンおよび d -リモネンの平均値は公共建築物および一般住宅の夏季・冬季とも屋内より数値が低かった。公共建築物と一般住宅とで平均値の差の検定を行ったところ、 α -ピネンおよび d -リモネンの屋内平均値は夏季・冬季ともに一般住宅の値が公共建築物よりも有意に高い数値を示していた（いずれも $p < 0.01$ ）。一般的に α -ピネンの主な発生源としては木材が知られている。リモネンは木材からも放散するが、柑橘類や香料からの放散も多い。今回調査対象とした一般住宅は木造の住宅の割合が77軒中41軒（53%）と過半数にのぼったのに対し、公共建築物は全施設が鉄筋コンクリート製であった。また、本調査において公共建築物の屋内での測定箇所は事務室としたが、事務室は一般家庭の屋内とは異なり木製の什器類や柑橘類、香料などはほとんど存在しない。これらが公共建築物および一般住宅における α -ピネンおよび d -リモネンの屋内濃度の相違の原因となっていると考えられる。

3. 2. 3 無機ガス状物質

オゾンについて、夏季、公共建築物における屋内濃度は一般住宅の51%の値であり、有意に低かった（ $p < 0.01$ ）。一方、夏季の公共建築物と一般住宅の屋外平均値には有意差はなかった。また、公共建築物、一般住宅とも屋内のオゾンは屋外よりも有意に低い値を示していた（それぞれ $p < 0.01$ ）。オゾンは、環境大気中で紫外線に

Fig. 4 Concentrations of gaseous chemical compounds in indoor air at 77 residential houses and 18 institutional buildings in summer and winter

より酸素が酸化され生成する。外気から屋内に流入したオゾンは比較的速い速度で分解するとされている⁵⁾。夏季の場合、一般住宅においては窓開けや換気扇をまわすなどの方法で直接外気を屋内に導入ことが多い。本調査においては、アンケート調査で回答が得られた一般住宅のうちの94%が夏季に窓を開けたり、換気扇を回したりして外気を導入していた。したがって、換気により濃度が低くなったことが考えられる。本調査における公共建築物と一般住宅とのオゾン濃度の相違は、換気システムの相違と関連する可能性がある。

一方、冬季においては屋内におけるオゾンの平均値は公共建築物と一般住宅とで有意差はなかった。さらに、公共建築物および一般住宅とも、屋内の平均値は屋外よりも有意に低い値を示していた(そ

れぞれ $p < 0.01$)。冬季においては夏季と異なり一般住宅において窓開けによる換気が少なくなるため、夏季と比較して冬季は公共建築物と一般住宅の屋内平均値の差が減少したと推測される。

二酸化窒素について、冬季の屋内における平均値は公共建築物が一般住宅の25%の値であり、有意に低かった ($p < 0.01$)。また、公共建築物において屋内と屋外の平均値に有意差はなかったが、一般住宅の屋内平均値は屋外よりも有意に高い値を示した ($p < 0.01$)。冬季の二酸化窒素について、公共建築物と一般住宅における屋内濃度と屋外濃度の相関および各建築物ごとの屋内/屋外濃度比(以下、I/O比)を求めた。その結果、公共建築物における屋内濃度と屋外濃度の相関は $r = 0.604$ 、一般住宅における相関は $r = 0.089$ だったが、

Fig. 5 Concentrations of ozone in indoor and outdoor air at 77 residential houses and 18 institutional buildings in summer and winter

I/O 比が2.5を超えた建築物を除外して相関を調べたところ、公共建築物における相関は $r = 0.877$ 、一般住宅における相関は $r = 0.731$ となった。公共建築物、一般住宅とも I/O 比が2.5以下の建築物に関しては、屋内濃度と屋外濃度の相関が高いことから屋内の二酸化窒素の由来が外気である可能性が考えられる。また、逆に I/O 比が2.5を超える建築物に関しては、屋内に二酸化窒素の発生源が別に存在する可能性がある。冬季の二酸化窒素に関して、公共建築物における I/O 比の中央値は0.78であり、I/O 比が2.5を超えた施設は18施設中1施設であった。一方、一般住宅における I/O 比の中央値は2.1であり、77戸中30戸の一般住宅で I/O 比が2.5を超えていた。公共建築物と異なり、一般住宅屋内には二酸化窒素の発生源が存在することが示唆される。二酸化窒素は燃焼によって発生するが、アンケート調査の結果、公共建築物においては測定箇所が事務フロアでありガスコンロや燃焼系暖房器具を使用している施設はなかったが、一般住宅においては77戸中51戸でガスコンロを、18戸で燃焼系暖房器具を使用していた。これらのことから、冬季屋内における公共建築物と一般住宅の二酸化窒素濃度の相違は、屋内でのガスコンロや燃焼系暖房器具の使用状況の相違に由来すると考えられる。さらに、一般住宅において燃焼系暖房器具を使用していた住宅18戸のうち16戸では二酸化窒素の I/O 比が2.5を超えていた。燃焼系暖房器具の使用が室内の二酸化窒素濃度の上昇に大きく寄与しているものと思われる。

一方、夏季において、二酸化窒素の屋内平均値は公共建築物が一般住宅の62%の値であった。これは有意に低い値であったが ($p < 0.01$)、その差は冬季屋内ほどではなかった。公共建築物の屋内平均値は屋外よりも有意に低い値だったが ($p < 0.05$)、一般住宅では屋内と屋外の平均値に有意差はなかった。アンケート調査によると、夏季には一般住宅屋内での燃焼系暖房器具の使用はなく、ガスコンロの使用時間についても一般住宅の平均が約0.9時間という回答であった。夏季は一般住宅屋内における二酸化窒素の発生が少なかったため、一般住宅においても屋内の濃度があまり上昇せず、屋外とほぼ同じ値にとどまったと考えられる。また、公共建築物では冬季・夏季とも屋内濃度の平均値が屋外よりも若干低い値であっ

た。冬季と同様に夏季においても公共建築物では二酸化窒素の発生源となり得る燃焼系暖房器具やガスコンロの使用がなかったため数値が上昇しなかったと考えられる。

ギ酸について、夏季・冬季とも公共建築物屋内の平均値は一般住宅よりも有意に低かった (夏季: $p < 0.05$, 冬季: $p < 0.01$)。屋外の平均値については、公共建築物と一般住宅が夏季・冬季ともそれぞれ同様な値を示した。ギ酸の室内濃度は二酸化窒素との相関が高いことからギ酸の発生源の一つとして燃焼系器具が推測できる。Fig. 6に冬季における公共建築物および一般住宅屋内のギ酸濃度と二酸化窒素濃度との関係を示す。冬季の一般住宅屋内で $r = 0.958$ と非常に高い相関が認められた。前述のとおり冬季の一般住宅屋内においては燃焼系器具が使われていたが、公共建築物ではその使用がなかったため、冬季の一般住宅屋内ではギ酸と二酸化窒素との相関が高くなったと考えられる。

酢酸については、夏季・冬季とも公共建築物屋内の平均値は一般住宅よりも有意に低かった (いずれも $p < 0.01$)。なお、屋外については、夏季・冬季とも公共建築物と一般住宅の平均値に有意差はなかった。

二酸化硫黄については、夏季・冬季とも公共建築物と一般住宅の屋内の平均値に有意差はなかった。一方、夏季・冬季の公共建築物および一般住宅のそれぞれにおいて、屋内の平均値は屋外よりも有意に低い値を示した (いずれも $p < 0.01$)。

屋内におけるアンモニアの平均値は、夏季には公共建築物が一般住宅の120%の値であり、有意に高かった ($p < 0.05$)。また、冬季には公共建築物が一般住宅の110%の値を示したが、有意差はなかった。人間はアンモニアの発生源であるが、調査対象とした公共建築物は全て市民利用施設であり、屋内には多くの人が在室している。また、公共建築物の躯体にはコンクリートが多く用いられているが、コンクリートからはアンモニアが発生することが報告されている²⁰⁾。特に夏季、公共建築物のアンモニアがやや高い値を示したのはこれらが一因であると考えられる。一方、屋外の平均値については、公共建築物と一般住宅がそれぞれ屋内よりも低い値であった。なお、都市部屋外におけるアンモニアの発生源の一つとして自

Fig. 6 Relationship between formic acid and nitrogen dioxide concentrations measured in indoor and outdoor air at 77 residential houses and 18 institutional buildings

動車の排気ガスが報告されている²¹⁾。公共建築物は幹線道路周辺などの比較的交通の便の良い場所に建設されることが多いため、公共建築物の屋外濃度の平均値は一般住宅屋外よりも高い数値を示した可能性がある。

3. 3 個人の一日暴露濃度の推定

調査対象の公共建築物は市民利用施設であると同時に、そこで働いている人にとっては職場でもある。今回調査を行った一般住宅の中には、公共建築物での勤務者自宅が一部含まれる。一般住宅77戸の中から、公共建築物18施設の勤務者自宅24戸を抽出し、職場（公共建築物18施設）および自宅（抽出された一般住宅24戸）の室内空気質と各場所での在室時間を併せて検証することにより、個人（24名）の一日暴露量の評価を試みた。なお、一日の暴露濃度は、職場（公共建築物屋内）で過ごす時間を9時間、屋外で過ごす時間を1時間、自宅屋内で過ごす時間を14時間と仮定し、それぞれの24時間平均濃度に、9/24、1/24、14/24を乗じたものを合計して暴露濃度を算出した。なお、屋外濃度には公共建築物と一般住宅における各屋外濃度の平均値を採用した。24名の職場（公共建築物）屋内、屋外および自宅（一般住宅）屋内における夏季および冬季の暴露濃度をそれぞれ Fig. 7a および Fig. 7b に示す。人は室内で過ごすことが多いため、室内空気中化学物質が多いと暴露量も増える。特に、比較的長時間を過ごすことが多い自宅の室内空気質は、暴露に対する寄与が大きくなる。今回の調査においては公共建築物屋内よりも一般住宅

屋内で高い濃度を示した物質が多かったために、在室設定時間が加味された結果、自宅の室内空気質の影響がより大きくなっているケースが多かった。特にパラジクロロベンゼン、 α -ピネンおよびd-リモネンや、冬季には二酸化窒素およびギ酸などの物質でこのような傾向が目立った。その一方で、オゾンについては屋外で過ごす時間を一日のうち1時間と短時間に設定したにもかかわらず、屋外空気質の寄与が大きかった。特に冬季のオゾンについては、屋外の数値に比べて屋内の数値が大幅に小さかったため、24名中の16名、つまり3分の2のケースについては在室設定時間が加味されているにもかかわらず、オゾン暴露濃度のI/O比が1を下回り、屋外からの暴露の方が屋内からの暴露よりも大きいと算出された。

謝 辞

本研究は厚生労働科学研究「シックハウス症候群の発生予防・症状軽減のための室内環境の実態調査と改善対策に関する研究」の一環として行われた。測定に御協力頂いた方々に感謝申し上げます。

要 約

居住空間の安全性確保を目的として、横浜市内の公共建築物18施設と、横浜市およびその周辺地域にある一般住宅77戸の屋内・屋外において、空気環境中の広範囲にわたる化学物質を測定することが可能な各種拡散サンプラーを用いたガス状化学物質の測定を行い、夏季および冬季における汚染の実態把握を行った。

公共建築物18施設においては夏季および冬季の屋内・屋外とも本研究で調査対象とした化学物質のうち、厚労省が策定した室内濃度指針値および暫定目標値を超過した物質はなく、室内空気質は良好であると考えられた。一方、一般住宅屋内においては77戸中で夏季15戸（19%）、冬季4戸（5%）の住宅にて何らかの物質の濃度が指針値等を超過した。このなかには複数の物質が指針値等を超過した一般住宅もあった。

また、今回調査を行った公共建築物と一般住宅の室内環境について比較を行ったところ、公共建築物の室内空気中化学物質の総和の平均値は一般住宅の53%（夏季）および43%（冬季）であり、公共建築物における化学物質の屋内濃度の総和は夏季、冬季とも一般住宅より有意に低い値を示した（いずれも $p < 0.01$ ）。

さらに、一般住宅の中から公共建築物18施設の勤務者自宅24戸を抽出し、職場および自宅の各室内空気質に在室時間を併せて検証することで、個人の一日暴露量の評価を試みた。今回の調査においては公共建築物屋内よりも一般住宅屋内で高い濃度を示した物質が多かったために、在室設定時間が加味された結果、自宅の室内空気質の影響がより大きくなっているケースが多かった。その一方で、オゾンについては屋外で過ごす時間を一日のうち1時間と短時間に設定したにもかかわらず屋外空気質の寄与が大きく、特に冬季においては屋外からの暴露の方が屋内からの暴露よりも大きいと算出されたケースが3分の2の割合にのぼった。

文 献

- 1) Harrison, R.M., Thornton, C.A., Lawrence, R.G., Mark, D., Kinnersley, R.P. and Ayres, J.G.: Personal exposure monitoring of particulate matter, nitrogen dioxide, and carbon monoxide, including susceptible groups. *Occup. Environ. Med.*, **59**, 671-679 (2002)
- 2) Thatcher, T.L. and Layton, D.W.: Deposition, resuspension, and penetration of particles within a residence. *Atmos. Environ.*, **29**,

Fig. 7a Personal exposure throughout institutional building, residential house and outdoor air in summer

Fig. 7b Personal exposure throughout institutional building, residential house and outdoor air in winter

- 1487-1497 (1995)
- 3) 安藤正典：厚生科学研究「化学物質過敏症等室内空気中化学物質に係わる疾病と総化学物質の存在量の検討と要因解明に関する研究」平成14年度総括・分担研究報告書 (2003)
 - 4) Uchiyama, S., Tomizawa, T., Tokoro, A., Aoki, M., Hishiki, M., Yamada, T., Tanaka, R., Sakamoto, H., Yoshida, T., Bekki, K., Inaba, Y., Nakagome, H. and Kunugita, N.: Gaseous chemical compounds in indoor and outdoor air of 602 houses throughout Japan in winter and summer. *Environ. Res.*, **137**, 364-372 (2015)
 - 5) 樺田尚樹：厚生労働科学研究「シックハウス症候群の発生予防・症状軽減のための室内環境の実態調査と改善対策に関する研究」平成23年度－平成25年度総合報告書 (2014)
 - 6) 田中礼子, 山之内孝, 加藤元規, 内山茂久：新築公共建築物における室内空気質の濃度推移. 第24回環境化学討論会講演要旨集, p-099 (2015)
 - 7) Uchiyama, S., Asai, M. and Hasegawa, S.: A sensitive diffusion sampler for the determination of volatile organic compounds in ambient air. *Atmos. Environ.*, **33**, 1913-1920 (1999)
 - 8) Uchiyama, S. and Hasegawa, S.: A reactive and sensitive diffusion sampler for the determination of aldehydes and ketones in ambient air. *Atmos. Environ.*, **33**, 1999-2005 (1999)
 - 9) Uchiyama, S., Inaba, Y. and Kunugita, N.: A diffusive sampling device for simultaneous determination of ozone and carbonyls. *Anal. Chim. Acta*, **691**, 119-124 (2011)
 - 10) Yamada, T., Uchiyama, S., Inaba, Y., Kunugita, N., Nakagome, H. and Seto, H.: A diffusive sampling device for measurement of ammonia in air. *Atmos. Environ.*, **54**, 629-633 (2012)
 - 11) Woolfenden, E.A. and McClenny, W.A.: Compendium of methods for the determination of toxic organic compounds in ambient air: Method TO-17, U. S. Environmental Protection Agency, Cincinnati, OH. 45268, EPA 625/R-96/010b (1997)
 - 12) Uchiyama, S. and Otsubo, Y.: Simultaneous determination of ozone and carbonyls using *trans*-1,2-bis(4-pyridyl)ethylene as an ozone scrubber for 2,4-dinitrophenylhydrazine-impregnated silica cartridge. *Anal. Chem.*, **80**, 3285-3290 (2008)
 - 13) Uchiyama, S., Naito, S., Matsumoto, M., Inaba, Y. and Kunugita, N.: Improved Measurement of Ozone and Carbonyls Using a Dual-Bed Sampling Cartridge Containing *trans*-1,2-Bis(2-pyridyl)ethylene and 2,4-Dinitrophenylhydrazine-Impregnated Silica. *Anal. Chem.*, **81**, 6552-6557 (2009)
 - 14) Arnts, R.R. and Tejada, S.B.: 2,4-Dinitrophenylhydrazine-coated silica gel cartridge method for determination of formaldehyde in air: identification of an ozone interference. *Environ. Sci. Technol.*, **23**, 1428-1430 (1989)
 - 15) Smith, D.F., Kleindienst, T.E. and Hudgens, E.E.: Improved high-performance liquid chromatographic method for artifact-free measurements of aldehydes in the presence of ozone using 2,4-dinitrophenylhydrazine. *J. Chromatogr. A*, **483**, 431-436 (1989)
 - 16) Rodier, D.R., Nondek, L. and Birks, J.W.: Evaluation of ozone and water vapor interferences in the derivatization of atmospheric aldehydes with dansylhydrazine. *Environ. Sci. Technol.*, **27**, 2814-2820 (1993)
 - 17) Uchiyama, S., Ando, M. and Aoyagi, S.: Isomerization of aldehyde-2,4-dinitrophenylhydrazone derivatives and validation of high-performance liquid chromatographic analysis. *J. Chromatogr. A*, **996**, 95-102 (2003)
 - 18) Uchiyama, S., Matsushima, E., Aoyagi, S. and Ando, M.: Measurement of acid-catalyzed isomerization of unsaturated aldehyde-2,4-dinitrophenylhydrazone derivatives by high-performance liquid chromatography analysis. *Anal. Chim. Acta*, **523**, 157-163 (2004)
 - 19) Uchiyama, S., Kaneko, T., Tokunaga, H., Ando, M. and Otsubo, Y.: Acid-catalyzed isomerization and decomposition of ketone-2,4-dinitrophenylhydrazones. *Anal. Chim. Acta*, **605**, 198-204 (2007)
 - 20) 瀬古繁喜, 大野定俊, 米澤敏男, 石黒武：コンクリートから発生するアンモニアガスに関する研究. コンクリート工学会年次論文報告集, 973-978 (1999)
 - 21) 松本利恵, 米持真一, 梅沢夏美, 坂本和彦：道路周辺のアンモニア・窒素酸化物濃度への自動車排出ガスの影響. 地球環境, **15**, 103-110 (2010)