

# 博士論文概要

## 論文題目

数理モデルを用いた作業環境における揮発性有機化合物のばく露評価に関する研究

**Exposure Assessment for Volatile Organic  
Compounds in a Workplace using  
Mathematical Models**

申請者

山 田	憲 一
Kenichi	Yamada

創造理工学研究科 地球・環境資源理工学専攻

2010 年 5 月

作業環境において化学物質による職業性疾病を防止するためには作業者の化学物質のばく露量を管理する必要がある。ばく露量を管理するためのばく露評価の手法としては作業環境中の化学物質の空气中濃度を推定する方法とばく露濃度測定器を用いてばく露濃度を直接測定する方法がある。本研究の目的は、ばく露評価を行うこれら2つの手法について、揮発性化学物質を対象として数理モデルの構築とそのモデルの有効性を実験により検証を行うことにある。

本論文は、第1章が緒言、第2章がばく露濃度推定のための数理モデルの開発とその有効性の検証、第3章がばく露濃度測定のためのパッシブサンプラーの開発とその有効性の検証、第4章が総括で構成されている。

第1章の緒言では、研究の目的、本研究の位置づけを明確にするために作業環境におけるばく露の定義やばく露評価手法についての概要を述べた。

第2章では、ばく露評価を行う際に必要な空气中濃度を推定のための数理モデルを開発と文献等で提案されている数理モデルの有効性の検証を行うために、発生過程をモデル化した発生モデルとして液溜りモデル、分散過程をモデル化した分散モデルとしてボックスモデルや2ゾーンモデルなどについて理論的および実験的な検討を行い、その有効性の確認を行った。また、変数に分布を考慮した解析手法であるモンテカルロ法により空气中濃度の推定を行い、変数に一定値を用いる従来法との違いを評価した。

#### (1) 発生モデルによる発生(蒸発)速度の評価

蒸発面積が一定の液溜り、蒸発面積が時間的に減少する液溜り、容器に入った液溜りの3つの形態を対象として空气中濃度を推定する推算式の有効性の確認を行った。液面の面積が時間とともに一定の液溜りモデルの蒸発量の測定の結果、蒸発速度は時間と共に一定値を示し、蒸発速度を推定するための実験式を求めた。この蒸発速度の実験式による推算値と文献で公表されている推算式による推算値と比較した結果、ほぼ近似した値であった。蒸発面積が時間的に減少する液溜りモデルの蒸発量の測定の結果、蒸発速度は時間とともに減少傾向を示すが、その減少割合を規定する蒸発速度定数は物質により一定値を示したためその実験式を求めた。この蒸発速度定数の実験式による推算値と実測値と比較した結果、近似した値であった。蒸発面積が小さくて深さが開口部に対して深い容器からの蒸発を想定した液溜りモデルの蒸発速度についてその理論的な解析から推算式の導出を行うとともに、実験結果からその有効性の確認を行った。この経時変化について気流の影響を考慮しない条件で独自に理論的に導出した蒸発速度の推算式を用いて推算した理論値と実測値を比較した結果、気流の影響がない場合については、理論値と実測値は一致し、理論的な解析により導出した推算式の妥当性が確認された。

#### (2) 数理モデルと測定結果を用いた発生速度の推定

空气中濃度をばく露濃度として推定するためには作業場の容積、換気量、発生量(発生速度)の推定が必要となる。本研究は、空气中濃度を測定結果から発生量を推定する推算式を導出するとともに、この推算式の有効性を確認するために

チャンバーをモデル作業場として実験的な検討を行った。その結果、導出した推算式の有効性が確認された。さらに、全体換気に加えて局所排気のある場合について発生源からの局所排気による吸引効果を考慮した発生率の推算式を導出し、実測値との比較からその有効性が確認された。この発生率の値は局所排気の性能の評価に有効となる。

### (3) 分散モデルの有効性の評価

分散過程をモデル化した分散モデルとしてボックスモデルがあるが、このモデルは発生源から発生した物質の分散過程において空気の流れを無視して、瞬間的にボックス内に分散し、均一になるという仮定のもとに空気中濃度の推算式が導出されている。数値流体力学を用いた手法は発生した物質や空気の流れを解析するために空間を多数の要素に分割して要素間でのマテリアルバランスによる方程式を数値解析法により解く手法であるが、この手法を用いた解析を行うことのできる流体解析用ソフトを用いてボックスモデルの推算式による推算値の妥当性ととも、実測値と解析値との比較により解析結果の有効性の検証も行った。流体解析用ソフトによる解析値と数理モデルによる推定値、実測値との比較を行った結果、それらの値は比較的よく一致した。また、発生源近くでの空気中濃度の推定を行う場合には、ボックスモデルではなく2ボックスモデルを使用したほうが現実とよく合った推定を行うことができることが明らかとなった。

これらの結果から、数理モデルのボックスモデルについては発散した物質が短時間によく混合されるという仮定が設定されているが、定常状態の空気中濃度については流体解析用ソフトによる解析結果と数理モデルによる推定結果にかなり良い一致が見られたため、空気中濃度の推定に用いる分散過程をモデル化した分散モデルを用いた手法が有効であることが確認された。

### (4) モンテカルロ法を用いた空気中濃度の推定

空気中濃度の推算には、通常、発生量や換気量などの変数を一定値として推算を行う。モンテカルロ法は、これらの変数に一定値ではなくゆらぎ等を考慮してある分布を仮定して解析を行うことができる。このモンテカルロ法を用いて空気中濃度などについて解析を行い、その解析結果と変数に一定値とした通常の計算結果との比較からモンテカルロ法の有効性の確認を行った。

空気中濃度のモンテカルロ法による解析には、発生量には正規分布を、換気量には一様分布等を用いた解析の結果、空気中濃度は換気量のばらつきが大きいほど対数正規型の分布となる傾向が見られた。また、通常の計算結果の最大値はモンテカルロ法による解析結果から評価するとその出現確率が非常に小さいことが明らかとなり、出現確率を考慮した現実的な値としては **95** パーセンタイル値が適当であることが確認された。

第3章では、開発した液体を捕集材としたパッシブサンプラー（LiPS(Liquid Passive Sampler)と呼ぶ）は捕集材に精製水を用いるため、アルコール系有機溶剤など活性

炭に捕集されにくい物質の捕集が可能となる。この LiPS の定常状態における捕集量とばく露量（ばく露濃度とばく露時間の積）の関係式が一般に用いられている固体を捕集材に用いたパッシブサンプラーと同様な関係式が成立するかについて実験的、理論的解析を行った。また、LiPS の空气中濃度変動への応答性能を確認するために非定常状態についても実験的、理論的解析を行った。

#### (1) LiPS の定常状態における捕集量とばく露量の関係について

固体（活性炭）捕集材を用いたパッシブサンプラーで成立する捕集量とばく露量との関係式が開発した LiPS でも成立するかについて確認を行った結果、固体捕集材を用いたパッシブサンプラーで成立した捕集量とばく露量との関係式に一定の補正項を加えることにより成立することが確認された。この補正項が必要な理由については実験結果から、固体捕集材（活性炭）への吸着速度に比較して液体捕集材（精製水）への吸収速度の方が小さいために捕集材表面濃度がゼロとならないことが原因ではないかと推定された。これらの推定をもとに、理論的な解析から LiPS の捕集量とばく露量との関係式の導出を行い、この式による推算値と実験値を比較した結果、ほぼ一致していることが確認できた。

#### (2) LiPS の非定常状態における応答性能について

パッシブサンプラーは、ポンプを用いずに拡散現象を利用してサンプリングを行うためサンプリング速度が小さく、ポンプを用いたサンプリングに比べて応答時間が長くなる傾向にある。この応答時間は、パッシブサンプラーの非定常状態に起因するものであるため、LiPS の非定常状態について実験的および理論的な検討を行った。拡散管長の異なる LiPS（拡散管長が長いほど応答時間が長い）をチャンバー内でパルス状パターンの濃度変動のばく露を受けるようにして非定常状態（応答時間）の影響について検討を行った。その結果、拡散管長が 3.15 cm 以下の LiPS は、パルス幅が 5 秒以上の濃度変動については応答時間による影響は問題とはならないと結論された。

第四章の総括では、本研究で対象としたばく露評価のための2つの手法について実験的な検討と理論的な解析からその有効性が確認された。これらの研究成果から得られた数理モデルを用いた空气中濃度の推算式やばく露濃度測定器 (LiPS) によるばく露濃度の計算式は、化学物質のリスクアセスメントにおけるばく露評価を行う際の有効な手段となる。しかしながら、本研究は、化学物質のうち、特にガス状物質を対象としたものであるが、さらに対象を粒子状物質に拡大するには粒度分布などあらたなファクターについても考慮しなければならないが、この研究手法が大いに役立つものとする。

# 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

氏 名 山田憲一 印

(2010年 4月1日 現在)

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
論 文	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. <u>山田憲一</u>、荒井久美子、名古屋俊士、清水英佑：有機溶剤の液溜りからの蒸発速度に関する検討（第2報）、作業環境、31、(3)、55-60、2010(掲載決定)</li> <li>2. <u>山田憲一</u>、名古屋俊士、櫻井治彦：モンテカルロ法を用いたばく露評価、作業環境、29(5)、55-63、2008</li> <li>3. <u>山田憲一</u>、荒井久美子、櫻井治彦：液溜りからの有機溶剤の蒸発速度の推定、作業環境、28(1)、56-64、2007</li> <li>4. <u>山田憲一</u>、山内恒幸、櫻井治彦：揮発性物質の気中濃度測定値を用いた最大発生量推定のための数式モデルの有効性に関する研究、作業環境、24(5)、58-65、2003</li> <li>5. Shigeru Tanaka, Tetsuo Nomiyama, Hiroyuki Miyauchi, Miho Nakazawa, Tuneyuki Yamauchi, <u>Kenichi Yamada</u>, Yukio Seki: Monitoring for N,N-Dimethylformamide and N,N-Dimethylacetamide with a Diffusive Sampler Using Distilled Water as an Absorbent, AIHA journal, 63, 726-731, 2002</li> <li>6. <u>山田憲一</u>、山内恒幸、青柳幹治、高田 昴、櫻井治彦：測定結果を活用した作業環境改善のための診断手法、作業環境、22(2)、42-51、2001</li> <li>7. 滝澤顕彦、<u>山田憲一</u>、宮野由利子、田中信介、木村二郎、田中茂、戸田進：passive gas samplerに関する検討、作業環境、1(3)、46-50、1980</li> </ol>
講 演	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. <u>山田憲一</u>、名古屋俊士、清水英佑：ばく露評価のための数理モデルの流体解析用ソフトによる評価、日本労働衛生工学会、2009</li> <li>2. <u>山田憲一</u>、荒井久美子、山内恒幸、名古屋俊士、櫻井治彦：有機溶剤の液溜りからの蒸発速度に関する検討（第2報）、日本労働衛生工学会、2007</li> <li>3. <u>山田憲一</u>、名古屋俊士、櫻井治彦：モンテカルロ法を用いたばく露評価、日本労働衛生工学会、2007</li> <li>4. 海福雄一郎、梅崎久美香、若山雅彦、松延邦明、<u>山田憲一</u>：パッシブサンプラーと検知管を用いた有機溶剤個人暴露量の簡易測定法、日本労働衛生工学会、2007</li> <li>5. <u>山田憲一</u>、荒井久美子、櫻井治彦：有機溶剤の液溜りからの蒸発速度に関する検討、日本労働衛生工学会、2005</li> <li>6. <u>山田憲一</u>、山内恒幸、櫻井治彦年：リスクアセスメントのばく露量評価におけるモデル実験結果を用いた気中濃度推定手法について、日本労働衛生工学会、2002</li> <li>7. <u>山田憲一</u>、山内恒幸、青柳幹治、高田 昴：測定結果を活用した作業環境改善のための診断手法に関する検討、日本労働衛生工学会、1999</li> <li>8. <u>山田憲一</u>、荒井久美子、高田 昴：開発した液体を捕集剤としたパッシブサンプラーに関する基礎的な検討（第二報）、日本労働衛生工学会、1999</li> <li>9. <u>山田憲一</u>、荒井久美子、岡田孝之、高田 昴：開発したパッシブサンプラーに関する基礎的な検討、日本労働衛生工学会、1998</li> <li>10. 荒井久美子、岡田孝之、<u>山田憲一</u>、高田 昴：有機ガスモニターによる 1,3-ブタジエンのばく露濃度測定に関する検討、日本労働衛生工学会、1998</li> <li>11. 岡村信吾、小堀衛、<u>山田憲一</u>、高田 昴、大江修造：労働衛生における気液平衡の活用（第六報）、労働衛生工学会、1998</li> <li>12. 岡村信吾、小堀衛、斉藤秀弥、荒井久美子、<u>山田憲一</u>、工藤光弘、大江修造：労働衛生にお</li> </ol>

	<p>ける気液平衡の活用（第二報）、労働衛生工学会、1996</p> <p>13. 荒井久美子、山内恒幸、<u>山田憲一</u>、松村博、青柳幹治、中澤美穂、田中茂：水を捕集剤としたパッシブサンプラー(LiPS)による各種有機溶剤蒸気のサンプリング速度、日本産業衛生学会、1994</p> <p>14. 水口晴夫、松村博、斉藤信吾、河合俊夫、樋上幸一、<u>山田憲一</u>：捕集剤を液体としたパッシブガスモニターの試作」(第4報)―作業場の測定例から―、日本労働衛生工学会、1990</p> <p>15. 杉山弘美、<u>山田憲一</u>、他：水を用いたパッシブサンプラーによるホルムアルデヒドの測定、日本労働衛生工学会、1988</p> <p>16. <u>山田憲一</u>、山岡和寿、滝澤顕彦、浦島幸昌、捕集剤を液体としたパッシブガスモニターの試作」(第3報)―応答時間の影響について―、日本労働衛生工学会、1987</p> <p>17. <u>山田憲一</u>、浦島幸昌、滝澤顕彦、山岡和寿：QCM カスケードインパクトによるヒューム発生作業場の経時的粒度分布等測定結果について、日本労働衛生工学会、1985</p> <p>18. <u>山田憲一</u>、山岡和寿、滝澤顕彦、浦島幸昌：捕集剤を液体としたパッシブガスモニターの試作(第2報)、日本労働衛生工学会、1983</p> <p>19. <u>山田憲一</u>、山岡和寿、滝澤顕彦、浦島幸昌：捕集剤を液体としたパッシブガスモニターの試作、日本労働衛生工学会、1982</p> <p>20. <u>山田憲一</u>、滝澤顕彦、田中茂、宮野由利子、木村二郎、戸田進：拡散を利用した活性炭フィルター法に関する検討、日本労働衛生工学会、1979</p>
著書	<p>1. <u>山田憲一</u>、化学物質等のリスクアセスメント・リスクマネジメントハンドブック - リスクアセスメントにおけるばく露量の把握、(社)日本作業環境測定協会編、第2巻、62-108、2007</p> <p>2. <u>山田憲一</u>他、作業環境測定士試験 問題と解説、日本作業環境測定協会、平成15年</p> <p>3. <u>山田憲一</u>他：通信制安全衛生教育講座テキストⅢ 労働衛生管理編、中央労働災害防止協会、2001</p>
その他	<p>(学位論文に直接関係するもの)</p> <p>1. <u>山田憲一</u>：実践！ 化学物質のリスクアセスメント、医報 とやま、富山県医師会、No.1491、14-17、2009</p> <p>2. <u>山田憲一</u>：労働環境における化学物質のばく露評価について、空気清浄、社団法人 日本空気清浄協会、44巻6号、33-45、2007</p> <p>3. <u>山田憲一</u>：化学物質の定量的リスクアセスメント入門(1)化学物質のリスクアセスメントについて、安全と健康、Vol.7、No.1、50-51、2006</p> <p>4. <u>山田憲一</u>：化学物質の定量的リスクアセスメント入門(2)気中濃度推定のための数理モデルの種類、安全と健康、Vol.7、No.2、50-51、2006</p> <p>5. <u>山田憲一</u>：化学物質の定量的リスクアセスメント入門(3) 気中濃度推定のための数理モデルの種類、安全と健康、Vol.7、No.3、49-51、2006</p> <p>6. <u>山田憲一</u>：化学物質の定量的リスクアセスメント入門(4) 微積分と微分方程式、安全と健康、Vol.7、No.4、70-72、2006</p> <p>7. <u>山田憲一</u>：化学物質の定量的リスクアセスメント入門(5) マテリアルバランスを用いたボックスモデル、安全と健康、Vol.7、No.5、58-60、2006</p> <p>8. <u>山田憲一</u>：化学物質の定量的リスクアセスメント入門(6) ボックスモデルの基本事項、安全と健康、Vol.7、No.6、49-51、2006</p> <p>9. <u>山田憲一</u>：化学物質の定量的リスクアセスメント入門(7) 発生量が周期的に変化するボックスモデル、安全と健康、Vol.7、No.7、49-51、2006</p> <p>10. <u>山田憲一</u>：化学物質の定量的リスクアセスメント入門(8) 充填モデルとバックプレッシャーモデル、安全と健康、Vol.7、No.8、50-52、2006</p> <p>11. <u>山田憲一</u>：化学物質の定量的リスクアセスメント入門(9) 液溜りモデル、安全と健康、Vol.7、No.9、</p>

<p>その他論文</p>	<p>50-52、2006</p> <p>12. <u>山田憲一</u>:化学物質の定量的リスクアセスメント入門(10) 2ゾーンモデルと拡散モデル、安全と健康、Vol.7、No.10、50-52、2006</p> <p>13. <u>山田憲一</u>:化学物質の定量的リスクアセスメント入門(11) 測定結果と数理モデルを利用した気中濃度の推定、安全と健康、Vol.7、No.11、49-51、2006</p> <p>14. <u>山田憲一</u>:化学物質の定量的リスクアセスメント入門(12) 気中濃度推定からリスク評価までの流れ、安全と健康、Vol.7、No.12、56-58、2006</p> <p>15. <u>山田憲一</u>他:捕集剤として水を用いたパッシブガスモニターに関する研究、労働省 災害科学に関する委託研究の結果報告、1985</p> <p>16. <u>山田憲一</u>;捕集剤として水を用いたパッシブガスモニターに関する研究、労働衛生、Vol.26、9、1985</p> <p>(学位論文に直接関係しないもの)</p> <p>1. 山内恒幸、小野寺周、岡田孝之、<u>山田憲一</u>、高田 昴、門脇武博、村山留美子、内山巖雄、後藤純雄:ベンゼン取扱作業者のベンゼン曝露と尿中代謝物の簡易モニタリング、産業医科大学雑誌、27(1)、97-104、2005</p> <p>2. Yuriko Kikuchi, Takamoto Uemura, Tsuneyuki Yamauchi, Toru Takebayashi, Yuji Nishiwaki, <u>Kenichi Yamada</u>, Haruhiko Sakurai and Kazuyuki Omae: Urinary Excretion of TTCA after Intake of brassica Vegetables, J Occup Health, 44, 151-155, 2002</p> <p>3. T.Nomiyama, K.Omae, C.Ishizuka, T.Yamauchi, Y.Kawasumi, <u>K.Yamada</u>, H.Endoh, H.Sakurai: Dermal absorption of N,N-dimethylacetamide in human volunteers, Int Arch Environ Health, 73, 121-126, 2000</p> <p>4. 山内 恒幸、西田 昌孝、<u>山田 憲一</u>、牧野 茂徳、高田 昴: 蛍光検出 HPLC による尿中 <math>\delta</math>-アミノレブリン酸分析の問題点: ペニシリン製剤服用の影響、産業医学、Vol.41, No.臨時増刊(19990401) p. 343、1999</p> <p>5. 砂見 勝博、岡村 真吾、<u>山田 憲一</u>、光吉 宏司、河合 俊夫、大内 和幸: アノードック・ストリッピング・ボルタンメトリー法とフレイムレス原子吸光法の比較: 血中鉛量の分析、産業医学、Vol.40, No.臨時増刊号、p. 491、1998</p> <p>6. 光吉 宏司、河合 俊夫、堀口 俊一、砂見 勝博、<u>山田 憲一</u>、大内 和幸: アノードック・ストリッピング・ボルタンメトリー法と原子吸光法の比較: 気中尿中鉛量の分析、産業医学、Vol. 40, No. 臨時増刊号、p. 492、1998</p> <p>7. 山岡和寿、井本邦彦、滝澤頭彦、木村二郎、浦島幸昌、<u>山田憲一</u>: 気中粉じん濃度と粒度分布の関係から見た K 値について、作業環境、8(5)、46-52、1987</p> <p>8. 山岡和寿、<u>山田憲一</u>、大柴聡: 非水溶性クロム酸塩の測定方法の検討、作業環境、6(5)、53、1985</p> <p>9. 滝沢頭彦、<u>山田憲一</u>、山岡和寿、蓮沼秀信、大柴聡、青木文治、小堀衛、浦島幸昌: 鉛取扱作業場の環境調査に関する一考察 - 粉じんマスクのフィルター付着鉛量について、作業環境、6(6)、46-、1985</p> <p>10. 滝沢頭彦、<u>山田憲一</u>、浦島幸昌、樋上幸一、大野博: 鉛取扱作業場の環境調査に関する一考察 - うがい水中鉛量測定結果および測定意義について、作業環境、5(4)、47、1984</p> <p>11. 滝沢頭彦、浦島幸昌、<u>山田憲一</u>、樋上幸一、大野博: 鉛取扱作業場の環境調査に関する一考察 - 休憩室における気中濃度について、作業環境、5(4)、42、1984</p> <p>12. 滝沢頭彦、宇都宮忠生、<u>山田憲一</u>、松岡満徳、大野博、平島次郎、小谷野道子: 非鉄合金鋳物工場の作業環境について、作業環境、3(1)、45、1982</p> <p>13. 宮野由利子、滝沢頭彦、<u>山田憲一</u>: 某鉛取扱作業場の環境調査に関する一考察、作業環境、2(1)、55、1981</p> <p>14. 田中 茂、<u>山田 憲一</u>、宮野 由利子、浦島 幸昌: 植物検疫燻蒸作業における労働衛生学的調査: (1) 作業環境気中臭化メチル量について (有害有機物)、産業医学、Vol.23, No.7、p. 765、1981</p>
--------------	---