

短報

室内空気汚染化学物質濃度調査について (平成13~20年度)

仲野富美¹, 上村 仁¹, 辻 清美¹, 伏脇裕一¹,
渡辺貞夫², 長谷川一夫¹

Survey of indoor air chemicals (2001-2008)

Fumi NAKANO¹, Hitoshi UEMURA¹,
Kiyomi TSUJI¹, Yuichi FUSHIWAKI¹,
Sadao WATANABE² and Kazuo HASEGAWA¹

はじめに

室内における化学物質汚染が居住者に健康被害を及ぼすシックハウス症候群が社会問題化している。厚生労働省は現在までに13物質（アルデヒド2物質、揮発性有機化合物（VOC）6物質、農薬3物質及びフタル酸2物質）について室内空気濃度指針値を策定している¹⁾。神奈川県では居住環境が及ぼす健康被害の未然防止や軽減を図り、快適な居住環境を確保するため、「住まいと健康サポート推進事業」を実施しており、保健福祉事務所において住まいが原因と考えられる体調不良について県民からの相談に応じている。さらに、相談者への助言を行うために、必要によって、衛生研究所では住宅の室内化学物質濃度、ダニ、カビアレルゲンの量等の調査を実施した。その中で、平成13年度から20年度に実施した室内汚染化学物質の調査結果について報告する。

方 法

1. 調査対象

平成13年4月から平成21年3月までに居住者などの体調不良による相談があった個人住宅112カ所及び学校・事業所11カ所であった。調査は相談があったから概ね1ヶ月以内に実施した。

2. 測定物質

測定物質はアルデヒド類11物質及びVOC43物質と

した。さらに、検出したVOCの濃度を合計し、総揮発性有機化合物（TVOC）量を求めた。調査対象1カ所において、アルデヒド類及びVOCを両方測定したが、一部、相談の内容によってはいずれか一方のみの測定を行った。なお、調査数はアルデヒド類114件、VOC122件であった。

3. 空気試料の採取

室内空気のサンプリングは原則、居住状態の室内空気を、床上1.2から1.5mの高さで、サンプリングポンプを用いて流量100ml/minで、24時間、捕集管（アルデヒド類：Sep-Pac DNPH-Silica short body, ウォーターズ社製, VOC:ORBO-91Lあるいは91T, スベルコ社製）に採取した。但し、平成13年度のアルデヒド類の測定は約20ml/minの流量で24時間採取した（n=28）。また、ポンプが設置できなかった場合は、パッシブサンプリング法により、捕集管（アルデヒド類：DSD-DNPH, スベルコ社製, VOC:VOC-SD, スベルコ社製）を用いて24時間室内空気を採取した。

4. 試薬

アセトニトリルは和光純薬社製 HPLC 用試薬を、二硫化炭素は和光純薬社製作業環境測定用試薬を用いた。標準物質はスベルコ社製 DNPH 誘導体化アルデヒド混合標準溶液及び和光純薬製 VOCs 混合標準溶液を用いた。内部標準はアイソテック社製のトルエン-d8を用いた。

5. 測定用試料の調製

アルデヒド類は捕集管をアセトニトリル5mlで溶出し、HPLC用試料とした。VOCは捕集剤を二硫化炭素5mlで溶出して、内部標準溶液（トルエン-d8, 試料中濃度0.5μg/ml）を混和し、2時間静置したものをガスクロマトグラフ-質量分析計（GC/MS）用試料とした。

6. 定量

アルデヒド類は測定用試料20μlをHPLCに注入し、あらかじめ作成した検量線からピーク面積法により定量した。測定条件は、カラム：Discovery RP Amide C16, 5μm, 250mm×4.6mm, 移動相：アセトニトリル：水（55：45）、流量：1.0ml/min, カラム温度：40℃, 検出器：UV 検出器（測定波長360nm）とした。

VOCは北原らの方法²⁾に従い、定量した。キシレンはm-, p-, o-キシレンの合算値とした。なお、ノナール及びデカールはアルデヒドであるが、VOCの分析法で測定を行うため、VOCに分類した。

結果及び考察

1. アルデヒド類

1 Kanagawa Prefectural Institute of Public Health, 1-3-1, Shimomachiya, Chigasaki 253-0087

1 神奈川県衛生研究所理化学部
〒253-0087 茅ヶ崎市下町屋1-3-1

2 神奈川県衛生研究所地域調査部

結果を表1に示した。室内空気濃度指針値が設定されているホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドは調査した114件のうち109件及び103件で検出され、検出数が多かった。ホルムアルデヒドは4.1~260 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度で検出され、11件で室内空気濃度指針値100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

m^3 を上回った。アセトアルデヒドは4.0~120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度で検出され、12件で指針値48 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を上回った。指針値のない物質では、アクロレイン及びトルアルデヒドが他のアルデヒドに比べて高濃度（最大値90及び120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）で検出された。

表1 室内空气中アルデヒド類の検出結果 平成13年~20年度

物質名	調査数	検出数	室内空气中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)			指針値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	指針値 超過件数
			最小値*	最大値	中央値		
ホルムアルデヒド**	114	109	4.1	260	37	100	11
アセトアルデヒド**	114	103	4.0	120	19	48	12
アクロレイン	114	17	4.4	90	24		
プロピオンアルデヒド	114	23	4.1	13	5.4		
ブチルアルデヒド	114	17	4.0	25	4.8		
ベンズアルデヒド	114	28	4.0	23	6.4		
クロトンアルデヒド***	40	0					
イソバレルアルデヒド***	40	0					
バレルアルデヒド***	40	4	4.4	23	4.9		
トルアルデヒド***	40	6	8.2	120	13		
ヘキサアルデヒド***	40	20	4.2	66	8.2		

* 定量下限値は4.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。但し、平成13年度調査分については20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (n=28)。

** 厚生労働省が室内空气中濃度の指針値を設定している物質。

*** 平成16年度より測定対象物質に追加した。

指針値を超過した事例の年度別検出数は、表2に示すようにホルムアルデヒドはほぼ毎年、指針値を超過した事例があった。アセトアルデヒドは平成13年度に最も多く、8件で指針値を超過した。アセトアルデヒドは平成14年2月に厚生労働省により指針値が定められた物質であるため、平成13年度は調査時にはまだ指針値が示されていなかった。指針値が示されたことで建材や家具等でのアセトアルデヒドの使用が減少した可能性が推察された。

表2 指針値を超過した事例の年度別検出数 (検出数 / 調査数)

調査年	ホルムアル デヒド	アセトアル デヒド	トルエン	p-ジクロロ ベンゼン
平成13年度	2/28	8/28	0/34	3/34
平成14年度	2/23	1/23	0/25	4/25
平成15年度	3/20	2/20	1/20	1/20
平成16年度	2/13	0/13	1/13	1/13
平成17年度	0/11	1/11	0/11	0/11
平成18年度	1/12	0/12	0/12	0/12
平成19年度	1/5	0/5	0/5	1/5
平成20年度	0/2	0/2	0/2	0/2

指針値を超過した事例の検出数を季節別 (4~6月, 7~9月, 10~12月及び1~3月) に区分して表3に示した。ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドは、7~9月にそれぞれ8件で指針値を超過した。ホルムアルデヒドが指針値を超過した事例では、毎年、夏に体調が悪化するといったケースもあり、締め切った室内には放散したホルムアルデヒドなどの化学物質が高濃度に残留するため、十分に換気してから生活することが健康被害を防ぐために非常に重要であると思われる。一方、築年数が古い住宅であってもホルムアルデヒドが高濃度に検出された事例があった。室内において一旦、内装材等に高濃度のホルムアルデヒドが使用されると、長期間にわたりホルムアルデヒドは放散し続けると推察された。

表3 指針値を超過した事例の季節別検出数 (検出数 / 調査数)

調査月	ホルムアル デヒド	アセトアル デヒド	トルエン	p-ジクロロ ベンゼン
4~6月	2/23	2/23	0/25	2/25
7~9月	8/37	8/37	1/39	3/39
10~12月	1/31	0/31	1/35	3/35
1~3月	0/23	2/23	0/23	2/23

2. VOC

結果を表4に示す。調査した122件のうち、芳香族炭化水素類のうち指針値が設定されているトルエンは116件（濃度4.2~390 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、エチルベンゼンは70件（濃度4.1~130 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、キシレンは86件（濃度4.0~200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、スチレンは19件（濃度4.2~100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）で検出された。トルエンが検出数、濃度ともに最も高く、2件で指針値260 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を上回った。エチルベンゼン、キシレン、スチレンは指針値（それぞれ3800, 870, 220 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）を超過しなかった。指針値以下ではあるが、トルエン、エチルベンゼン、キシレン、スチレンは同時に検出されることも多かった。これらの物質は塗料や接着剤の溶剤などに多く使用される成分であり、同一の発生源から放散する可能性も考えられた。指針値のない物質では、ナフタレンが高濃度（150~300 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）で5件検出され、家庭内で衣類用防虫剤として使用していると推察された。

脂肪族炭化水素類で指針値が設定されているテトラデカンは、26件（濃度4.0~50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）で検出され、指針値（330 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）を超過しなかった。脂肪族炭化水素類は調査した住宅によって、ほとんど検出されない場合と、ノナン、デカン、ウンデカンを含む数種類の物質が同時に検出される場合があった。これらの物質の発生源のひとつとしては灯油があり、石油ストーブ用灯油の保管容器から漏れ出た空気が室内 VOC の汚染源となった住宅ではウンデカン、デカン、ノナン、1, 2, 4-トリメチルベンゼン及びキシレンの室内空気中濃度が高かったという報告がある³⁾。今回の調査において、ノナン、デカン、ウンデカン、1, 2, 4-トリメチルベンゼン及びキシレンが高濃度（51~210 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）で検出された事例が2件あり、これらの住宅では石油ストーブを使用していた。灯油容器の保管場所から空気が流入して居室の空気を汚染した可能性があり、保管場所を変えるなどの配慮をすることで室内空気濃度を低減化できると考えられた。

ハロゲン類で指針値が設定されている p-ジクロロベンゼン（p-DCB）は77件（濃度4.0~1600 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）で検出された。10件で指針値（240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）を超過し、その検出濃度は指針値の約1~7倍（260~1600 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）と高かった。p-DCB と同時にナフタレンも検出された事例もあり、これらの物質は居住者が持ち込む衣類用防虫剤が原因であることが推定された。室内空気汚染を避けるために、居住者は必要以上の量の防虫剤を使用しないような注意が必要である。しかし、家庭内で衣類用防虫剤を使用していないにもかかわらず、p-DCB が検出された事例が数例あった。p-DCB は

非常に残留性が高い物質であるため⁴⁾、中古住宅や賃貸住宅の場合、以前の居住者が使用した防虫剤が押入れやクローゼットに残留している可能性も考えられる。指針値を超過した事例の年度別検出数は表2に示すように、平成13年から16年度は毎年超過事例があったが、それ以降は平成19年度に1件であった。現在、ピレスロイド系農薬を有効成分とした無臭タイプの衣類用防虫剤も広く市販されているため、p-DCB 以外の防虫剤を使用する家庭が増えている可能性も考えられた。指針値を超過した事例の季節別検出数は表3に示すように、p-DCB はホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドに比べ、年間を通して検出される傾向であった。

トリクロロエチレン（TCE）及びテトラクロロエチレン（PCE）は室内空気中濃度について指針値がない物質であり、今回の調査において検出数は少なかったが、高濃度（TCE120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、PCE580 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）で検出された事例が1件あった。TCE 及び PCE は皮膚、中枢神経、肝臓及び腎臓への毒性があるため、大気汚染に係わる環境基準においても大気中の1年平均値がいずれも0.2mg/ m^3 以下であることと定められている⁵⁾。今回検出された室内空気中濃度は PCE が環境基準値を超える濃度であり、居住者の健康影響が懸念された。また、この住宅ではホルムアルデヒド、アセトアルデヒド（指針値超過）、トルエン、エチルベンゼン、キシレン、スチレン、アセトンと、非常に多種類の物質が検出され、TVOC は1800 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。この住宅は新築一戸建ての住宅で、店舗と住居を兼ねていた。空気のサンプリングは住居部分の居室で行われたが、住宅の建材、内装材、住居に持ち込まれた家具、店舗に持ち込まれたもの等、多種類の発生源があると思われる。居住者の生活スタイルによって室内で検出される物質は多種多様であり、相談者の住まい方等を詳細に聞き取り調査し、さらに室内空気濃度を測定することは、居住空間の空気質の改善に有用であると考えられる。

TVOC は暫定目標値400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を32件（濃度410~1800 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）が超過した。そのうち10件は指針値のある物質のうちいずれかが指針値を超過していた。それ以外の22件は、複数の VOC が検出され、合計値として高濃度となったものであった。防虫剤由来の成分である p-DCB 及びナフタレンが TVOC のうちのほとんどを占める事例や、トルエン等の芳香族炭化水素類や脂肪族炭化水素類の多種類の物質が検出された事例もあった。居住者の配慮によって、衣類用防虫剤や灯油などの使用や保管を工夫することで TVOC を減少できるケースも多いと考えられた。

表4 室内空气中のVOC 検出結果 (n=122)

分類	物質名	検出数	室内空气中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)			指針値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	指針値 超過件数
			最小値*	最大値	中央値		
芳香族炭化水素類	ベンゼン	22	4.0	14	5.0		
	トルエン**	116	4.2	390	20	260	2
	エチルベンゼン**	70	4.1	130	11	3800	0
	キシレン**	86	4.0	200	5.9	870	0
	スチレン**	19	4.2	100	6.4	220	0
	1,3,5-トリメチルベンゼン	14	4.0	33	11		
	1,2,4-トリメチルベンゼン	42	4.2	120	9.8		
	1,2,3-トリメチルベンゼン	18	4.2	21	7.4		
	ナフタレン	17	4.0	300	41		
脂肪族炭化水素類	ヘキサン	41	4.2	73	5.9		
	ヘプタン	30	4.1	27	6.1		
	オクタン	26	4.1	51	8.8		
	ノナン	45	4.5	210	14		
	デカン	56	4.1	180	13		
	ウンデカン	50	4.0	130	13		
	ドデカン	36	4.0	90	11		
	トリデカン	27	4.3	83	9.3		
	テトラデカン**	26	4.0	50	11	330	0
ペンタデカン	6	4.5	10	8.2			
ヘキサデカン	2	4.1	7	5.6			
ハロゲン類	ジクロロメタン	42	4.0	56	7.1		
	トリクロロエチレン	2	4.2	120	63		
	テトラクロロエチレン	6	5.0	580	8.6		
	p-ジクロロベンゼン**	77	4.0	1600	27	240	10
テルペン類	α -ピネン	60	4.2	120	13.6		
	リモネン	72	4.1	190	8.3		
エステル類	酢酸エチル	80	4.1	32	7.7		
	n-酢酸ブチル	34	4.1	59	7.7		
ケトン類	アセトン	115	5.4	320	24		
	2-ブタノン	37	4.1	46	6.5		
	4-メチル-2-ペンタノン	16	4.2	89	8.0		
アルコール類	1-ブタノール	27	4.2	62	8.4		
アルデヒド類	ノナナール	102	4.1	69	13		
	デカナール	32	4.0	590	8.7		
総揮発性有機化合物(TVOC)**		120	14	1800	250	400***	32

1,2,4,5-テトラメチルベンゼン, 2,4-ジメチルペンタン, 2,2,4-トリメチルペンタン, クロロホルム, 1,2-ジクロロエタン, 1,1,1-トリクロロエタン, 四塩化炭素, 1,2-ジクロロプロパン及びジブロモクロロメタンは定量下限値未満.

* 定量下限値は $4.0\mu\text{g}/\text{m}^3$.

** 厚生労働省が室内空气中濃度の指針値または暫定目標値を設定している物質.

*** TVOCは暫定目標値.

国土交通省はシックハウス対策として、平成15年7月、ホルムアルデヒドを放散する建材の使用制限や24時間換気設備の設置を義務付ける建築基準法改正を行った。平成12年度から17年度に実施された新築住宅を対象とした実態調査では、ホルムアルデヒド、トルエンについて指針値超過住宅の割合は年々減少し、平成16年度以降は非常に低い数値となったと報告されている⁶⁾。しかし、その一方で、国民生活センターに寄せられるシックハウスに関連した相談件数は依然減少していない⁷⁾。今後、居住者が持ち込む家具や生活用品等から放散される化学物質や指針値が示されていない物質による室内空気汚染対策への取り組みが重要な課題であると考えられた。

(平成21年8月11日受理)

ま と め

平成13年度から20年度において、神奈川県内で室内空気が原因と疑われる体調不良の発生した個人住宅及び学校・事業所123カ所について室内汚染化学物質の調査を行った。指針値を超過した事例はホルムアルデヒド11件、アセトアルデヒド12件、トルエン2件及びp-DCB10件で、ほぼ毎年指針値を超過した住宅があった。室内空気中の化学物質は新築・リフォームで使用された建材や内装材から発生するもの以外に、居住者が持ち込む生活用品等が発生源となるケースも多く、健康被害を防ぐために、その適切な使用方法について啓蒙することも重要であると考えられる。また、指針値はないが、ナフタレン、TCE、PCEのように高濃度に検出された物質もあった。室内空気中に発生する化学物質は多岐にわたり、今後、室内空気汚染に係わ

る対策がさらに整備されることが望まれる。

本調査は神奈川県保健福祉部生活衛生課「住まいと健康サポート推進事業」により実施された。

文 献

- 1) 室内空气中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法等について、厚生労働省通知医薬発第0207002号、平成14年2月7日
- 2) 北原節子, 梁川有紀, 高田絵里, 森 康明: 室内環境中の揮発性有機化合物 (VOC) 濃度の調査研究, 大妻女子大学紀要社会情報学研究, 11, 45-54 (2002)
- 3) 長谷川一夫, 仲野富美, 辻 清美: VOC パッシブサンプラーを用いた室内 VOC 汚染源調査, 神奈川県公衆衛生学会誌, 51, 5 (2005)
- 4) 長谷川一夫, 仲野富美, 辻 清美, 伏脇裕一: 木造住宅室内空気中におけるパラジクロロベンゼン濃度の推移, 神奈川県衛生研究所研究報告, 36, 30-32 (2006)
- 5) ベンゼン等による大気汚染に係わる環境基準について, 環境省告示4号, 平成9年2月4日
- 6) 国土交通省: 平成17年度室内空気中の化学物質濃度実態調査
 〈http://www.mlit.go.jp/kisha/kisha06/07/071130_.html〉
- 7) 国民生活センター: 消費生活相談データベースシックハウス
 〈http://datafile.kokusen.go.jp/wadai/sick_house.html〉