

一般住宅における室内空気中の揮発性有機化合物による 汚染実態とその要因について

丸山 浩一・横尾 保子・酒井 洋

Keywords：室内空気汚染；揮発性有機化合物；VOC；ホルムアルデヒド

1 はじめに

近年、住宅の高気密・高断熱化に伴いシックハウス症候群や化学物質過敏症などの健康障害が問題になっている。そして、これら健康障害の原因の一つである住宅の建材、内装材及び家具等から発生する揮発性有機化合物（以下VOC）やホルムアルデヒド等の化学物質による室内空気汚染が危惧されている。

このため、室内空気中の化学物質の存在実態や挙動について、各地で種々の調査研究^{1~4)}が行われていて、厚生労働省も平成9年度から本格的に全国調査を実施し、平成12年から順次室内空気中化学物質の室内濃度指針値（以下室内濃度指針値）を設定している。平成15年3月現在、トルエン等13物質の指針値と総揮発性有機化合物（以下TVOC）の暫定目標値が設定されている。

当所では、平成9年度から国立医薬品食品衛生研究所による暴露評価研究及び厚生科学研究事業の共同研究⁵⁾に参加するとともに、平成10～11年度には室内空気中化学物質の実態調査を実施し報告⁶⁾した。その結果、新潟県では降雪のある冬期に室内の換気不足と暖房器具の使用によって室内空気汚染が進むことが推測された。

そこで今回は、調査対象を新築以外の住宅にも広げて室内空気汚染の実態を幅広く把握するとともに、夏期と冬期（暖房期）の測定結果の比較から日常生活と室内空気汚染の関連性を検討したので報告する。

なお、本調査では国立医薬品食品衛生研究所が平成13～14年度に暴露評価研究及び厚生科学研究として実施した「全国における室内空気中化学物質の実態に関する研究」（主任研究者：国立医薬品食品衛生研究所・安藤正典環境科学部長）の一環として当所で調査した結果の一部も併合して解析を行った。

2 調査方法

2.1 調査対象及び時期

新潟県内の一般の木造一戸建て住宅（55軒）を対象に、平成13年7月から平成15年3月に実施した。詳細を表1に示した。

2.2 調査項目

調査対象項目はVOC43物質、TVOC、ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドとした。ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドは広い意味でのVOCで高揮発性有機化合物（VVOC）に分類されるが、沸点、毒性、分析法等の違いから区別して取り扱った。VOC43物質の詳細を表2に示した。TVOCはエタノールを除くVOC42物質について検出された濃度を合計して求めた。

その他に、サンプリング中の気温、家屋の構造、換気扇及び冷暖房器具の使用状況、窓の開閉等について調査した。

2.3 試料捕集

測定は各住宅の室内1～2か所（居間、寝室等）と屋外1か所で行った。室内測定は部屋の中央付近で床上約

表1 調査実施状況

調査季節	調査年月	住宅数	測定項目
夏	平成13年7月～9月	17	VOC43物質, ホルムアルデヒド
冬	平成13年12月～平成14年2月		
冬	平成14年1月～2月	6	VOC43物質
夏	平成14年7月	26	VOC43物質, ホルムアルデヒド
冬	平成15年2月～3月		
冬	平成14年12月	6	VOC43物質

表2 VOCの調査対象物質

No	化学物質名	No	化学物質名
芳香族炭化水素類		アルコール類	
1	ベンゼン	25	1-ブタノール
2	トルエン	26	エタノール
3	エチルベンゼン	ケトン類	
4	キシレン	27	アセトン
5	1,2,4-トリメチルベンゼン	28	メチルエチルケトン
6	1,3,5-トリメチルベンゼン	29	メチルイソブチルケトン
7	1,2,3-トリメチルベンゼン	含ハロゲン類	
8	1,2,4,5-テトラメチルベンゼン	30	ジクロロメタン
9	スチレン	31	四塩化炭素
脂肪族炭化水素類		32	1,2-ジクロロエタン
10	n-ヘキサン	33	トリクロロエチレン
11	n-ヘプタン	34	テトラクロロエチレン
12	n-オクタン	35	1,1,1-トリクロロエタン
13	n-ノナン	36	1,4-ジクロロベンゼン
14	n-デカン	37	1,2-ジクロロベンゼン
15	n-ウンデカン	38	クロロジプロモメタン
16	n-ドデカン	39	クロロホルム
17	n-トリデカン	エステル類	
18	n-テトラデカン	40	酢酸エチル
19	n-ペンタデカン	41	酢酸ブチル
20	n-ヘキサデカン	アルデヒド類	
21	2,4-ジメチルペンタン	42	1-ノナナール
22	2,2,4-トリメチルペンタン	43	1-デカナール
テルペン類			
23	α -ピネン		
24	リモネン		

1.2mで行い、通常的生活状態でサンプリングした。外気は雨、風及び排気ガスの影響を直接受けない場所でサンプリングした。各サンプリング場所では、温度データロガー (TR-51A, (株)ティアンドデイ製) を用いて10分間隔で気温を測定し、平均気温を求めた。

VOCは、ORBO-91L (スベルコ社製) を捕集管に使用して、アクティブサンプリング法により流速100ml/minで24時間捕集を実施した。

ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドは、DSD-DNPH サンプラー (スベルコ社製) 又は Sep-Pak XPoSure Aldehyde Sampler (Waters 社製) を使用して拡散サンプリング法により24時間捕集を実施した。

2.4 試薬及び標準物質

二硫化炭素は作業環境測定用 (又は分光分析用)、アセトニトリルは高速液体クロマトグラフ (以下 HPLC) 用、ホルムアルデヒド2,4-ジニトロフェニルヒドラゾン (以下

表3 分析条件

GC-MS	
GC-MS	QP-5050 (株島津製作所製)
カラム (サイズ)	DB-1 長さ60m, 内径0.25mm, 膜厚0.25 μ m
昇温条件	40°C (5min) \rightarrow 10°C/min \rightarrow 180°C \rightarrow 20°C/min \rightarrow 300°C (5min)
温度設定	注入口, インターフェースともに250°C
キャリアガス	ヘリウム
注入方法	スプリット1:10 (又は1:20)
注入量	1 μ l
検出方法	SIM
HPLC	
カラム (サイズ)	Mightysil RP-18 長さ150mm, 内径4.6mm
移動相	アセトニトリル:水=50:50
流速	1ml/min
注入量	20 μ l
カラム温度	40°C
検出器	UV検出器 (360nm)

ホルムアルデヒド2,4-DNPH) 及びアセトアルデヒド2,4-ジニトロフェニルヒドラゾン (以下アセトアルデヒド2,4-DNPH) は東京化成工業(株)製, トルエン-d8はスベルコ社製標準溶液 (2mg/ml) を使用した。

VOCの標準液は、関東化学(株)製 VOCs 混合標準液 (45種, 各1mg/ml) 及び和光純薬工業(株)製 TVOC 標準液 (70種及び52種, 各0.1mg/ml) を二硫化炭素で適宜希釈して用いた。VOC分析の内部標準液 (IS) は、トルエン-d8を二硫化炭素で希釈して用いた。

ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドの標準液は、ホルムアルデヒド2,4-DNPH 及びアセトアルデヒド2,4-DNPH をアセトニトリルで溶解・希釈して用いた。

2.5 分析方法

2.5.1 VOC

捕集管から吸着剤を抽出瓶に移し、二硫化炭素1又は2mlと内部標準液 (トルエン-d8, 0.1mg/ml) 2 μ lを加えて時々振り混ぜながら約2時間抽出し、ガスクロマトグラフ-質量分析計 (以下 GC-MS) で分析した。GC-MSの分析条件を表3に示した。

2.5.2 ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒド

捕集後のサンプラーからアセトニトリル3又は5mlでホルムアルデヒド2,4-DNPH 及びアセトアルデヒド2,4-DNPHを溶出し、HPLCで分析した。なお、濃度はメーカー参考値のサンプリングレートを用いて算出した。HPLCの分析条件を表3に示した。

2.5.3 統計処理

データの統計解析にはノンパラメトリック法 (Wilcoxon の順位和検定, Mann-Whitney の U 検定, Spearman の順位相関) を用いた。なお, 定量下限値未満 (ND) の濃度データについては, 定量下限値の 1/2 の値を代入して解析を行った。

化学物質濃度の比較には幾何平均値を用いた。室内濃度 / 屋外濃度の比 (以下 I/O 比), 夏期濃度 / 冬期濃度の比 (以下 S/W 比) についても幾何平均値を用いて算出した。

3 結果及び考察

3.1 住宅の概要

調査した住宅の概要を表 4 に示した。調査住宅の居住者には, 在宅時に不快な症状を訴える人はいなかった。

冬期の室内平均気温は夏期に比べて 10.9℃低かった。冬期の調査では 71 か所中 49 か所 (69%) が窓を閉め切っていて, 換気をしていなかった。

調査時点での住宅の築年数は 1 ヶ月から 32 年で, 平均 5.3 年であった。

3.2 化学物質の検出状況

室内及び屋外における化学物質の検出状況を表 5 に示した。室内空気中の各物質は幅広い濃度範囲を示し, トリデ

カン, リモネン及び 1,4-ジクロロベンゼン (以下 *p*-DCB) は, 最小値から最大値まで 3000 倍以上の濃度差があった。TVOC についても最小値から最大値まで 42 倍の濃度差があり, 住宅により室内空気の汚染状況は様々であった。各物質の室内濃度のヒストグラムは, 高濃度側に長く裾を引く分布を示し, 一部は対数正規分布に近似された。

一方, 屋外空気中の各物質の濃度は低く, 幾何平均濃度で 1 µg/m³ を超えた物質は, トルエン (4.3 µg/m³), キシレン (1.9 µg/m³), アセトン (1.2 µg/m³), エタノール (1.1 µg/m³) の 4 物質だけであった。TVOC は最小値から最大値まで 8 倍の濃度差があった。

3.3 室内濃度と屋外濃度の比較

I/O 比は表 5 に示すとおりで 1.0 ~ 147 の範囲であった。トリデカン, テトラデカン, *a*-ピネン, リモネン, エタノール及びアセトンは, I/O 比 10 以上で, 室内の発生源の存在が強く示唆された。逆に平成 13 年度全国調査⁷⁾と同様に室内に起因しないと考えられる値を I/O 比 2 以下とした場合には, ベンゼン, ジクロロメタン等 12 物質が該当し, 全て低い濃度 (1.4 µg/m³ 以下) で検出された物質であった。

3.4 全国調査結果及び室内濃度指針値との比較

室内空気中から高濃度に検出された物質と室内濃度指針

表 4 調査住宅の概要

	夏 期	冬 期
調査住宅数	43軒	55軒
調査場所数	室内62か所, 屋外43か所	室内71か所, 屋外49か所
室内気温(平均)	23.6℃~31.2℃ (27.3℃)	8.4℃~27.1℃ (16.4℃)
屋外気温(平均)	20.0℃~30.0℃ (25.8℃)	0.6℃~11.0℃ (5.0℃)
窓開放時間	平均7.2時間	平均0.3時間
冷暖房使用時間	平均2.3時間	平均11.3時間
築年数	1年未満 28か所 (21%), 1~3年未満 29か所 (22%) 3~10年未満 57か所 (43%), 10年以上 19か所 (14%)	
暖房器具	開放型ガス石油ストーブ 30か所 (42%) 室外排気型ガス石油ストーブ 8か所 (11%) エアコン、床暖房その他 33か所 (46%)	
床の材質	フローリング 98か所 (74%), 畳 19か所 (14%) 絨毯等その他 16か所 (12%)	
その他	飲酒37か所 (28%) 高気密住宅18軒 (33%) 喫煙8か所 (6%)	

表5 化学物質の検出状況

分類	測定物質	室内濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)				屋外濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)				I/O比 ²⁾
		N ¹⁾	最小	最大	幾何平均	N ¹⁾	最小	最大	幾何平均	
芳香族炭化水素類	ベンゼン	127	<0.6	51.3	1.4	92	<0.6	1.9	0.8	1.7
	トルエン	133	2.6	219	14.3	92	0.5	36.3	4.3	3.4
	エチルベンゼン	133	0.5	104	4.3	92	<0.2	3.8	0.9	4.9
	キシレン	133	1.1	159	9.0	92	<0.3	8.8	1.9	4.8
	1,2,4-トリメチルベンゼン	133	0.6	98.1	2.7	92	<0.3	2.9	0.6	4.3
	1,3,5-トリメチルベンゼン	133	<0.2	30.1	0.8	92	<0.2	1.1	0.2	4.0
	1,2,3-トリメチルベンゼン	133	<0.3	30.1	0.7	92	<0.3	1.0	<0.3	3.7
	1,2,4,5-テトラメチルベンゼン	133	<0.2	4.3	0.2	92	<0.2	0.3	<0.2	1.2
	スチレン	133	<0.2	20.3	0.2	92	<0.2	0.3	<0.2	1.5
	合計 ³⁾	133	6.7	496	36.8	92	2.0	48.4	9.8	3.8
脂肪族炭化水素類	n-ヘキサン	121	<0.2	40.1	2.4	84	<0.2	5.9	1.0	2.3
	n-ヘプタン	121	<0.5	121	1.6	84	<0.5	3.1	<0.5	4.0
	n-オクタン	133	<0.4	197	1.6	92	<0.4	4.4	<0.4	5.7
	n-ノナン	133	<0.3	301	3.4	92	<0.3	9.1	0.4	8.2
	n-デカン	133	0.5	256	4.3	92	<0.4	4.8	0.6	7.5
	n-ウンデカン	133	<0.4	152	3.1	92	<0.4	2.2	<0.4	9.1
	n-ドデカン	133	<0.4	96.7	3.0	92	<0.4	2.2	<0.4	8.4
	n-トリデカン	133	<0.1	325	2.4	92	<0.1	1.6	0.2	10.1
	n-テトラデカン	133	<0.1	280	2.3	92	<0.1	2.1	0.2	12.5
	n-ペンタデカン	133	<0.2	75.4	1.0	92	<0.2	0.5	<0.2	7.3
	n-ヘキサデカン	133	<0.2	15.3	0.7	92	<0.2	0.5	<0.2	4.4
	2,4-ジメチルペンタン	127	<0.4	2.5	<0.4	86	<0.4	0.4	<0.4	1.0
	2,2,4-トリメチルペンタン	121	<0.4	3.4	<0.4	84	<0.4	0.5	<0.4	1.1
	合計 ³⁾	133	4.0	884	35.3	92	2.5	29.3	5.1	6.9
テルペン類	α -ピネン	133	<0.2	104	4.3	92	<0.2	8.6	0.4	10.3
	リモネン	133	<0.2	935	9.7	92	<0.2	0.9	0.2	46.4
	合計 ³⁾	133	1.3	940	18.8	92	0.2	8.8	0.7	26.4
アルコール類	1-ブタノール	133	<0.5	25.6	1.9	92	<0.5	<0.5	<0.5	6.1
	エタノール	133	4.5	3390	162	92	<0.3	16.2	1.1	147
	合計 ³⁾	133	5.0	3390	169	92	0.4	16.5	1.5	110
ケトン類	アセトン	133	1.7	141	14.5	92	<0.4	10.0	1.2	11.8
	メチルエチルケトン	133	<0.3	17.1	1.8	92	<0.3	2.8	0.5	3.9
	メチルイソブチルケトン	133	<0.4	40.1	0.7	92	<0.4	0.7	<0.4	2.4
	合計 ³⁾	133	3.1	175	17.7	92	0.7	10.4	2.2	8.1
含ハロゲン類	ジクロロメタン	133	<0.6	23.9	1.2	92	<0.6	19.9	0.9	1.4
	四塩化炭素	133	<0.4	0.9	<0.4	92	<0.4	0.8	<0.4	1.1
	1,2-ジクロロエタン	133	<0.5	<0.5	<0.5	92	<0.5	<0.5	<0.5	
	トリクロロエチレン	133	<0.4	69.1	0.6	92	<0.4	23.7	0.6	1.0
	テトラクロロエチレン	133	<0.3	19.8	0.4	92	<0.3	21.5	<0.3	1.4
	1,1,1-トリクロロエタン	133	<0.4	15.6	<0.4	92	<0.4	0.6	<0.4	1.0
	1,4-ジクロロベンゼン	133	<0.2	75.4	4.9	90	<0.2	31.4	0.6	8.9
	1,2-ジクロロベンゼン	97	<0.3	<0.3	<0.3	74	<0.3	<0.3	<0.3	
	クロロジプロモメタン	133	<0.5	2.3	<0.5	92	<0.5	<0.5	<0.5	1.1
	クロロホルム	133	<0.3	5.5	0.5	92	<0.3	0.8	<0.3	1.9
	合計 ³⁾	133	3.1	758	14.7	92	2.3	33.8	5.3	2.8
エステル類	酢酸エチル	133	<0.4	38.8	3.9	92	<0.4	16.0	0.6	6.2
	酢酸ブチル	133	<0.5	28.4	1.6	92	<0.5	0.8	<0.5	4.7
	合計 ³⁾	133	0.6	65.1	6.3	92	0.5	16.3	1.1	5.9
アルデヒド類	1-ノナナル	121	<0.5	18.0	4.5	84	<0.5	1.9	<0.5	9.6
	1-デカナル	121	<0.6	9.4	1.5	84	<0.6	1.7	<0.6	2.9
	合計 ³⁾	133	1.0	22.1	6.3	92	0.6	2.7	1.0	6.2
TVOC ⁴⁾	133	35.6	1490	188	92	11.7	95.0	27.4	6.8	
ホルムアルデヒド	125	<9.8	220	31.6	88	<9.8	44.2	<9.8	5.4	
アセトアルデヒド	56	<5.4	156	15.3	55	<5.4	<5.4	<5.4	5.7	

注1) 測定場所数

注2) 室内濃度幾何平均値/屋外濃度幾何平均値

注3) 各分類別の測定物質の合計濃度

注4) エタノールを除く VOC42 物質の合計濃度

値の設定されている物質の検出状況を表6に示した。平成9～10年及び平成13年度全国調査^{5,7)}の結果(一部は中央値)と比較すると、トルエン、キシレン、TVOC等の濃度は低い傾向であった。これは、全国調査が主に新築住宅を対象にしているのに対し、本調査では平均築年数5.3年の住宅を対象としたためと推測された。

一方、エタノールは全国調査の結果に比べ高い濃度であった。エタノールは全住宅から検出され、14軒(夏期3か所、冬期15か所)では1000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の濃度であった。特に飲酒住宅において有意に高濃度で検出され、飲酒、調理等の生活活動から大量に発生することが推測された。エタノールはTVOCの算定における取り扱いが定まっていないことから、TVOCの算定から除くことにした。エタノールとテルペン類は、捕集管(ORBO-91L)の捕集効率が悪いという報告⁷⁾があり、実際の室内濃度は更に高い

可能性があった。

検出結果を室内濃度指針値と比較すると、ホルムアルデヒドは調査した48軒のうち13軒(夏期15か所、冬期2か所)で超過し、超過率は27%であった。p-DCBは調査した55軒のうち5軒(夏期5か所、冬期1か所)で超過し、超過率は9.1%であった。アセトアルデヒドは調査した30軒のうち2軒(夏期1か所、冬期1か所)で超過し、超過率は6.7%であった。TVOCは調査した55軒のうち15軒(夏期9か所、冬期7か所)で暫定目標値を超過し、超過率は27%であった。トルエン、キシレン、エチルベンゼン、スチレン、テトラデカンは全住宅で室内濃度指針値以内であった。

3.5 室内の各化学物質濃度間の相関性

室内における化学物質の各グループ別濃度間の相関係数を表7に示した。含ハロゲン類は他のグループと有意な相

表6 高濃度に検出された物質と指針値の設定されている物質の状況

化学物質名	検出濃度			H9, 10年 全国調査	H13年 全国調査	室内濃度 指針値
	最小	最大	幾何平均			
エタノール	4.5	3390	162	84.7	5.9	—
アセトン	1.7	141	14.5	18.3	9.1	—
トルエン	2.6	219	14.3	26.2	26.3	260
リモネン	<0.2	935	9.7	9.4	9.3	—
キシレン	1.1	159	9.0	13.9	12.7	870
1,4-ジクロロベンゼン	<0.2	754	4.9	14.2	6.9	240
a-ピネン	<0.2	104	4.3	4.2	6.1	—
1-ノナナール	<0.5	18.0	4.5	5.1	—	—
エチルベンゼン	0.5	104	4.3	6.8	7.6	3800
n-デカン	0.5	256	4.3	5.8	6.8	—
n-テトラデカン	<0.1	280	2.3	3.6	2.4	330
スチレン	<0.2	20.3	0.2	0.4	1.1	220
TVOC ¹⁾	35.6	1490	188	218	246	400 ²⁾
ホルムアルデヒド	<9.8	220	31.6	50	24.4	100
アセトアルデヒド	<5.4	157	15.3	19.6	—	48

注) 単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$

注1) 測定したVOCの合計濃度(エタノールを除く)

注2) 暫定目標値

表7 化学物質のグループ別濃度間の相関係数

分類	芳香族 炭化水素類	脂肪族 炭化水素類	テルペン類	ケトン類	含ハロゲン 類	エステル類	アルデヒド 類
芳香族炭化水素類	1						
脂肪族炭化水素類	0.522**	1					
テルペン類	0.287**	0.099	1				
ケトン類	0.471**	0.116	0.544**	1			
含ハロゲン類	0.133	-0.008	-0.052	-0.054	1		
エステル類	0.494**	0.161	0.386**	0.594**	0.084	1	
アルデヒド類	0.119	-0.045	0.272**	0.496**	-0.097	0.461**	1

** P<0.01

関がみられず、単独で発生していることが推測された。脂肪族炭化水素類は芳香族炭化水素類とだけに相関がみられ、特異的な発生源の存在（例えば暖房器具による石油等燃料の揮散及び燃焼ガス）が推測された。ケトン類、エステル類は、脂肪族炭化水素類と含ハロゲン類を除いた各グループと相関がみられ、広く様々な発生源に混在していることが推測された。

個別の化学物質濃度間について相関性をみると、同一グループ内の化学物質間で高い相関がみられる傾向を示した。しかし、ヘキサン、*p*-DCB、エタノールは、相関性のみられる化学物質が非常に少なく、単独の発生源（防虫剤、飲酒等）の存在が推測された。

3.6 室内濃度の夏期と冬期（暖房器具別）の比較

夏期の室内濃度は夏期全データを1群とし、平均して用いた。冬期の室内濃度は使用した暖房器具の種類別に①開放型ストーブ（開放型ガス・石油ストーブ、同ファンヒーター）、②FF式ストーブ（室外排気型ガス・石油ストーブ、同ファンヒーター）、③エアコン、その他（床暖房、蓄熱式暖房器具等）の3群に分類し、それぞれ平均して比較に用いた。夏期と冬期（暖房器具別）の化学物質検出状況を表8に示した。

テルペン類は暖房器具の種類にかかわらず冬期の濃度が夏期に比べ大幅に高かった。逆に、含ハロゲン類とエステル類は暖房器具の種類にかかわらず冬期の濃度が夏期に比べ低かった。ただし、含ハロゲン類についてはその大部分を占める *p*-DCB に起因する結果で、夏期に *p*-DCB が高濃度で検出された住宅に対して防虫剤の適正使用を指導したため、単に季節差として捉えることができなかった。

冬期に開放型ストーブを使用した部屋では、夏期及び他の暖房器具を使用した場合に比べ、芳香族炭化水素類、脂肪族炭化水素類、TVOCの濃度が高かった。これは、前報⁶⁾及び吉田らの報告⁸⁾と同様な結果で、ガス・石油の成分及び燃焼排気ガスによる汚染と推測された。FF式ストーブを使用した部屋では、前述した冬期のテルペン類濃度の増加が顕著であった。エアコン、その他の暖房器具を使用した部屋では、夏期及び他の暖房器具を使用した場合に比べ、芳香族炭化水素類、脂肪族炭化水素類、TVOCの濃度が有意に低かった。

個別に化学物質濃度を検討すると、エチルベンゼン、ブタノール、ホルムアルデヒド等は、暖房器具の種類にかかわらずS/W比1以上で、夏期に濃度が高かった。夏期は窓を開けている時間が長く、換気の良い状況と考えられるが、それにもかかわらず夏期に濃度が高いのは、冬期より10℃以上高い室温が影響するためと推測された。一方、ベンゼン、エタノール等は暖房器具の種類にかかわらずS/W比1以下で、夏期に比べ冬期に濃度が高かった。

TVOCの濃度は冬期（開放型ストーブ使用）>夏期>冬期（FF式ストーブ使用）>冬期（エアコン、その他の暖房器具使用）の順に大きかった。

3.7 室内濃度と室温の関係

各化学物質の室内濃度と室温について相関性をみると、ブタノール ($r=0.535$, $p<0.01$)、酢酸ブチル ($r=0.41$, $p<0.01$)、ホルムアルデヒド ($r=0.653$, $p<0.01$) 等に有意な相関性が認められた。最も相関性が認められたホルムアルデヒド濃度と室温の関係を図1に示した。この結果は、前報⁶⁾及び桂らの報告⁹⁾と同様であった。TVOCにはこのような傾向は認められなかった。

3.8 室内濃度と築年数の関係

各化学物質の室内濃度と築年数の関係について、暖房器具の影響を受けない夏期の室内濃度を用いて検討した。その結果、芳香族炭化水素類、テルペン類、ケトン類、エステル類、アルデヒド類で築年数との間に負の相関が認められた。一方、脂肪族炭化水素類、エタノール、*p*-DCBには相関性が認められず、これらの物質の発生源が建築時期と無関係に住宅内に持ち込まれていたり、生活活動で発生していると推測された。これは、既に述べた発生源（石油等燃料の揮散及び燃焼ガス、飲酒、防虫剤）の推測と一致するものであった。

また、ホルムアルデヒドの室内濃度は築年数2年以上の住宅に比べ築年数2年未満の住宅で有意に低かった。夏期のホルムアルデヒド濃度と築年数の関係を図2に示した。

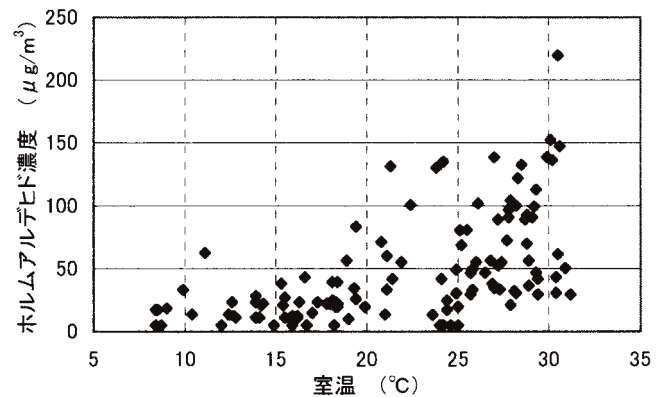


図1 ホルムアルデヒド濃度と室温の関係

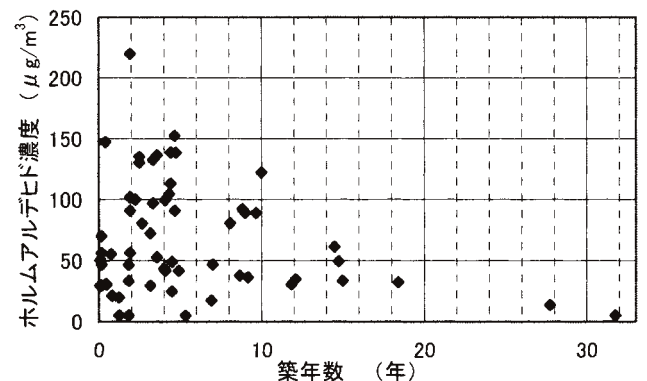


図2 ホルムアルデヒド濃度と築年数の関係

表8 夏期と冬期（暖房器具別）の化学物質検出状況

分類	測定物質	夏期濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	冬期濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)						
			開放型ストーブ			FF式ストーブ		エアコン、その他	
			幾何平均値	幾何平均値	S/W比 ¹⁾	幾何平均値	S/W比 ¹⁾	幾何平均値	S/W比 ¹⁾
芳香族 炭化水素類	ベンゼン	1.1	2.3	0.5	2.8	0.4	1.3	0.8	
	トルエン	15.6	12.6	1.2	15.2	1.0	13.6	1.1	
	エチルベンゼン	5.4	4.6	1.2	3.1	1.7	3.0	1.8	
	キシレン	9.6	12.6	0.8	8.5	1.1	5.9	1.6	
	1,2,4-トリメチルベンゼン	2.3	5.6	0.4	3.4	0.7	1.7	1.3	
	1,3,5-トリメチルベンゼン	0.7	1.7	0.4	1.1	0.6	0.5	1.4	
	1,2,3-トリメチルベンゼン	0.6	1.8	0.3	1.1	0.5	0.4	1.4	
	1,2,4,5-テトラメチルベンゼン	<0.2	0.3	0.5	0.2	0.7	<0.2	1.2	
	スチレン	0.2	<0.2	1.5	0.2	1.1	0.2	1.0	
	合計 ²⁾	38.2	45.0	0.8	37.0	1.0	28.5	1.3	
脂肪族 炭化水素類	n-ヘキサン	2.3	3.0	0.8	2.0	1.2	2.0	1.2	
	n-ヘプタン	1.4	3.8	0.4	2.2	0.6	0.9	1.5	
	n-オクタン	1.1	7.0	0.2	3.4	0.3	0.8	1.5	
	n-ノナン	2.4	14.5	0.2	7.2	0.3	1.5	1.6	
	n-デカン	3.3	13.4	0.2	5.9	0.5	2.4	1.3	
	n-ウンデカン	2.3	8.0	0.3	3.8	0.6	2.3	1.0	
	n-ドデカン	2.6	5.9	0.4	2.7	1.0	2.3	1.2	
	n-トリデカン	2.5	3.8	0.7	1.5	1.6	1.6	1.6	
	n-テトラデカン	2.8	2.7	1.0	1.7	1.7	1.5	1.8	
	n-ペンタデカン	1.2	1.1	1.0	0.8	1.5	0.7	1.7	
	n-ヘキサデカン	1.1	0.7	1.6	0.5	2.1	0.5	2.3	
	2,4-ジメチルペンタン	<0.4	<0.4	1.0	<0.4	1.3	<0.4	1.6	
	2,2,4-トリメチルペンタン	<0.4	<0.4	1.2	<0.4	1.5	<0.4	1.5	
合計 ²⁾	33.4	73.0	0.5	32.6	1.0	20.7	1.6		
テルペン類	α -ピネン	2.5	3.2	0.8	10.1	0.2	12.7	0.2	
	リモネン	7.3	14.5	0.5	12.9	0.6	10.9	0.7	
	合計 ²⁾	11.8	24.7	0.5	35.0	0.3	30.1	0.4	
アルコール類	1-ブタノール	2.8	1.1	2.6	1.7	1.6	1.6	1.8	
	エタノール	68.0	304	0.2	462	0.1	360	0.2	
	合計 ²⁾	73.9	306	0.2	465	0.2	363	0.2	
ケトン類	アセトン	12.9	13.4	1.0	16.8	0.8	18.5	0.7	
	メチルエチルケトン	2.2	1.4	1.6	2.0	1.1	1.6	1.4	
	メチルイソブチルケトン	1.2	<0.4	3.0	0.4	2.9	0.5	2.3	
	合計 ²⁾	17.0	15.5	1.1	19.5	0.9	21.2	0.8	
含ハロゲン類	ジクロロメタン	1.4	0.8	1.7	1.5	0.9	1.5	0.9	
	四塩化炭素	<0.4	<0.4	0.9	<0.4	0.8	<0.4	0.8	
	1,2-ジクロロエタン	<0.5	<0.5		<0.5		<0.5		
	トリクロロエチレン	0.5	0.8	0.6	0.9	0.5	0.7	0.7	
	テトラクロロエチレン	0.4	0.3	1.6	0.2	1.8	0.4	1.2	
	1,1,1-トリクロロエタン	<0.4	<0.4	0.8	<0.4	0.9	<0.4	0.9	
	1,4-ジクロロベンゼン	8.2	3.9	2.1	2.9	2.8	2.6	3.2	
	1,2-ジクロロベンゼン	<0.3	<0.3		<0.3		<0.3		
	クロロジプロモメタン	<0.5	<0.5	1.1	<0.5	1.1	<0.5	1.0	
	クロロホルム	0.4	0.4	1.1	0.4	1.1	0.6	0.7	
合計 ²⁾	18.3	14.0	1.3	12.0	1.5	10.7	1.7		
エステル類	酢酸エチル	4.4	3.4	1.3	3.8	1.2	3.5	1.3	
	酢酸ブチル	2.5	1.1	2.3	0.8	3.2	1.3	1.9	
	合計 ²⁾	7.9	5.1	1.6	4.9	1.6	5.3	1.5	
アルデヒド類	1-ノナナル	4.8	3.6	1.4	4.6	1.1	4.8	1.0	
	1-デカナル	1.7	0.8	2.1	1.5	1.2	1.6	1.1	
	合計 ²⁾	6.9	4.6	1.5	6.2	1.1	6.8	1.0	
TVOC ³⁾	192	233	0.8	177	1.1	150	1.3		
ホルムアルデヒド	48.1	17.0	2.8	26.5	1.8	22.7	2.1		
アセトアルデヒド	17.2	13.6	1.3	12.3	1.4	15.7	1.1		
平均室温	27.3°C	15.1°C		16.7°C		16.4°C			

注1) 夏期濃度幾何平均値/冬期濃度幾何平均値

注2) 各分類別の測定物質の合計濃度

注3) エタノールを除くVOC42物質の合計濃度

築年数2～5年の住宅で濃度が高く、築年数2年未満の新しい住宅と築年数10年以上の古い住宅で濃度が低い傾向を示した。最近の新築住宅のホルムアルデヒド濃度の減少傾向についての報告^{10, 11)}と考え合せると、ホルムアルデヒド対策を考慮した建材及び住宅の普及が、築年数2年未満の住宅の濃度減少に現れていると推測された。

なお、TVOCには築年数と明確な相関は認められなかった。

3.9 室内濃度とその他の要因の関係

各化学物質の室内濃度を測定場所の床の材質別に比較すると、畳の部屋で芳香族炭化水素類、脂肪族炭化水素類、含ハロゲン類、TVOC等の濃度が低い傾向であった。

住宅の気密構造、換気方式、窓開放時間、喫煙等の要因については、室内濃度との明確な関連性はみられなかった。

4 ま と め

平成13年7月～平成15年3月の夏期及び冬期に、一般木造住宅55軒（平均築年数5.3年）について、VOC43物質及びホルムアルデヒド等の調査を実施した。その結果、以下のとおりであった。

- (1) 室内濃度の幾何平均値はTVOC $188\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、アセトン $14.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、トルエン $14.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、リモネン $9.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、ホルムアルデヒド $31.6\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、アセトアルデヒド $15.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、住宅によって幅広い濃度範囲をとった。
- (2) 厚生労働省の室内濃度指針値と比較すると、ホルムアルデヒドは全48軒のうち13軒(27%)、*p*-DCBは全55軒のうち5軒(9.1%)、アセトアルデヒドは全30軒のうち2軒(6.7%)で超過した。TVOCは暫定目標値を全55軒のうち15軒(27%)で超過した。
- (3) 室内の各化学物質濃度間の関係を検討したところ、脂肪族炭化水素類は芳香族炭化水素類とだけに相関が認められ、ケトン類、エステル類は脂肪族炭化水素類と含ハロゲン類を除いた各グループと相関がみられた。含ハロゲン類は他のいずれのグループとも相関が認められず、単独で発生していることが推測された。
- (4) 各化学物質濃度の季節による変化を検討したところ、エステル類、エチルベンゼン、ブタノール、ホルムアルデヒドは冬期に比べ夏期に濃度が高かった。冬期より 10°C 以上高い室温が影響するためと推測された。テルペン類、ベンゼン、エタノールは暖房器具の種類にかかわらず冬期に濃度が高かった。暖房器具別に各化学物質濃

度を比較したところ、開放型ガス・石油ストーブを使用した部屋では芳香族炭化水素類、脂肪族炭化水素類、TVOCの濃度が夏期より高く、燃料及び燃焼排気ガスによる汚染と推測された。

- (5) 各化学物質濃度と室温の関係を検討したところ、ブタノール、酢酸ブチル、ホルムアルデヒドは室温と相関が認められ、室温の高い部屋ほど濃度の高い傾向がみられた。
- (6) 各化学物質濃度と築年数の関係を検討したところ、芳香族炭化水素類、テルペン類、ケトン類、エステル類、アルデヒド類に負の相関が認められた。ホルムアルデヒド濃度は、築年数2～5年の住宅で高く、築年数2年未満及び10年以上の住宅で低い傾向を示した。ホルムアルデヒド対策を考慮した建材及び住宅の普及が、築年数2年未満の住宅の濃度減少に現れていると推測された。

5 謝 辞

本調査を実施するにあたり、対象住宅の選定及び試料捕集に多大なご協力をいただいた新潟市保健所環境衛生課の皆様にご感謝申し上げます。

文 献

- 1) 酒井潔, 三谷一憲, 土屋博信: 名古屋市衛生研究所報, **45**, 43 (1999).
- 2) 稲垣宏, 他: 仙台市衛生研究所報, **29**, 124 (1999).
- 3) 山下晃子, 山浦由郎, 小山和志, 込山茂久: 長野県衛生公害研究所報, **24**, 13 (2001).
- 4) 矢澤篤子, 他: 横浜市衛生研究所, **40**, 87 (2001).
- 5) 厚生省: 居住環境内における揮発性有機化合物の全国実態調査 (1998).
- 6) 青柳由美子, 酒井洋: 新潟県保健環境科学研究所報, **15**, 119 (2000).
- 7) 安藤正典: 化学物質過敏症等室内空气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13年度総括・分担研究報告書 (2002).
- 8) 吉田俊明, 安藤剛, 松永一朗: 大阪府立公衆衛生研究所報, **39**, 31 (2001).
- 9) 桂英二, 堀義宏, 入江雄司, 福島明: 北海道立衛生研究所, **49**, 68 (1999).
- 10) 安藤正典, 内山茂久: 大気中多種化学物質暴露による疾病発症要因解明と寄与率評価に関する研究 (2002).
- 11) 瀬戸博, 齋藤育江: 東京都立衛生研究所報, **53**, 179 (2002).