

原著論文

居住環境内における化学物質汚染の実態調査

大塚建次¹・松村年郎²・濱田実香²

[受付 2002. 2. 25] [受理 2002. 5. 29]

A Survey of Chemical Substances in Residences

Kenji OTSUKA¹, Toshiro MATSUMURA² and Mika HAMADA²

[Received Feb 25, 2002] [Accepted May 29, 2002]

要旨

近年、室内空気中の化学物質が Sick building syndrome (SBS) や化学物質過敏症 (Chemical sensitivity, CS) 等の発症に大きく関与していることが指摘されている。本報告は室内空気中のホルムアルデヒド (HCHO)、揮発性有機化合物 (VOCs)、有機リン化合物がどの程度存在し、それが年間を通してどのように推移するのか、また、室内温湿度とどのような関連性を示すのか、神奈川県横浜市に建立する集合住宅内で調査を行った。更に、同一住宅内でフタル酸エステル類の実態調査も合わせて行った。

その結果、ホルムアルデヒドは夏季に濃度が高く、室内の温度とよく似た変動を示すことが明らかとなった。揮発性有機化合物は竣工直後から濃度が減少する成分と夏季に濃度が上がる成分とが認められた。有機リン化合物は粒子状とガス状成分とでは挙動が異なることが明らかとなった。フタル酸エステル類は蒸気圧の高いフタル酸ジメチル、フタル酸ジエチル、フタル酸ジアリル等はガス状、フタル酸ジブチル、フタル酸ジオクチル等は粒子状で存在する割合が大きいことが判った。また、室内に据え付けられた収納棚はホルムアルデヒドの室内発生源の一つであることが明らかとなった。

Abstract

Recently, it has been shown that chemical substances in indoor air are strongly associated with both Sick Building Syndrome (SBS) and Chemical Sensitivity (CS). This paper reports the measurements of formaldehyde (HCHO), organophosphorus compounds and volatile organic compounds (VOCs) in a newly-constructed multi-unit dwelling in Yokohama. The measurements were conducted to detect the chemical species, their concentrations and their seasonal variability over one year. The relationships between the chemical concentrations and the indoor temperature and humidity were also investigated. Furthermore, we measured the concentrations of phthalate ester in the same units. The results showed that the indoor concentrations of HCHO often increased with warmer temperatures (summer) and were positively correlated with the indoor temperatures. The emission rate of the VOCs decreased immediately after the completion of house construction, increased during the summer, and then decreased again gradually after the summer. The emission rate of the organophosphorus compounds depended on whether they were gaseous or particulate. Phthalate esters were observed in a gaseous form as dimethyl phthalate, diethyl phthalate and high-pressure diallyl phthalate as well as in a particle form as dibutyl phthalate and dioctyl phthalate. Finally, it was clear that pre-installed storage shelves were one of the sources of HCHO in the house.

Key words: field measurements, formaldehyde, organophosphorus compounds, volatile organic compounds, phthalate ester, house

1. はじめに

Sick building syndrome (SBS) や化学物質過敏症 (Chemical sensitivity, CS) の発症には室内に存在する化学物質が大きく関与¹⁻³⁾していることが指摘されている。従って、これら SBS や CS の原因究明や予防対策を行うには、室内空気中の化学物質汚染の実態を調査しその挙動を解明する必要がある。我々は1日の内、

約70%程度(平均的)⁴⁾は室内で過ごしているが、ヒトの滞在時間や室内化学物質濃度は季節によって異なる事は明らかである⁵⁻⁶⁾。従って、呼吸を通した化学物質の個人暴露量も季節的変動が予想される。これらを考慮し室内空気中の化学物質濃度について年間を通して測定し、その挙動を解明することは SBS や CS の発症解明或いは予防対策に大きく貢献するものと思わ

1 鋼管計測(株) Kokan-Keisoku Corporation, 2-1Suehiro-cho, Tsurumi-ku, Yokohama 230-0045, Japan

2 国立医薬品食品衛生研究所(現、健康事業総合財団・財団法人東京顕微鏡院)

Institute for Food and Environment, Tokyo Kenbikyō-In Foundation, For Life and Environment of All People, 1-100-38, Takamatsu-cho, Tachikawa Tokyo 190-8535, Japan

れる。

室内空気中の化学物質に関する調査は短期間の測定例⁷⁻⁸⁾は比較的報告されているが、年間を通した調査例は少ない。そこで、本研究においては上述のような観点から新築集合住宅を対象に、竣工直後から1年間を通してVOCs（44成分）、HCHO、有機リン化合物（3成分）等の化学物質濃度、同時に温湿度等の室内環境条件との関係を対象に測定を実施し、化学物質の経月変化、温湿度との関連性を検討した。更に、収納棚からのホルムアルデヒドの発生量や内分泌攪乱化学物質の一つとして作用が懸念されているフタル酸エステル類についても測定を行い、室内環境内に存在する化学物質に関する基礎的データの収集をはかった。有機リン化合物とフタル酸エステル類については室内空気中の存在形態によって人への影響が異なることが考えられることからガス状物質及び粒子状物質に分けて測定を行った。

今回の調査に用いた測定法は、VOCsは活性炭捕集・溶媒抽出-GC/MS法、有機リン化合物はロシ捕集・溶媒抽出-GC/FPD法、フタル酸エステル類はロシ捕集・溶媒抽出-GC/MS法、ホルムアルデヒドはDNPHカートリッジ捕集・溶媒抽出-HPLC法である。

2. 調査概要

2.1 調査項目

調査は新築の住宅において、化学物質汚染の経月変化に関する調査を中心に行い、それらの調査結果の解析、ならびに空気汚染対策を目的として関連する調査を実施した。調査項目を以下に示す。

- 1) 室内の化学汚染物質の経月変化
- 2) ホルムアルデヒド濃度の時間変化
- 3) ホルムアルデヒドの収納棚からの放散

2.2 調査対象住宅及び期間

調査は神奈川県に建立する新築集合住宅を選定し、竣工後1年間にわたって化学物質の汚染の実態調査を実施した。調査対象とした住宅の間取りは3LDKで、広さは80m²であり、居間、和室および寝室の部屋において測定した。調査期間は1998年3月から1999年3月とした。サンプリングは毎月1回、第1週に行った。Table 1に調査住宅における各部屋の内装の材質を示したが天井材及び壁材はビニルクロスを使用している。ホルムアルデヒド、VOCs、有機リン化合物、フタル酸エステル類の測定は居間で行った。ホルムアルデヒドのみ和室、寝室及び外気を加えた。試料の採取は調査期間を通して、普段の生活状態で行った。住人は大人2人で共に昼間は会社勤めのため日中は窓を締め切った状態であり、帰宅時と週末に換気を行っている。各部屋には換気口があり24時間自然換気が行われている。1ヶ月に1回の測定時は平日を選択し住人にも普段と変わらない生活をしていただいた。測定時の窓開放は居間において平均30分で夏季と冬季はエアコンを使用している。

3. 調査方法

3.1 化学物質の経月変化

3.1.1 試料採取法および温湿度、換気量の測定

ホルムアルデヒドはWaters製のXPoSureタイプの

Table 1 Characteristics of the sampled rooms

Sampling point	Floor	Wall	Ceiling
Living room	Wooden floor	Vinyl cloth	Vinyl cloth
Tatami room	Tatami mat	Vinyl cloth	Vinyl cloth
Bedroom	Carpet	Vinyl cloth	Vinyl cloth
Outdoor	Tile	—	—

Outdoor: Air was sampled on the porch

ものを、パッシブサンプラーとして使用し24時間試料空気を捕集した。すなわち、サンプラーを部屋の中央床上約1.2m地点にくるように天井から吊した。なお、このサンプラーのサンプリングレートは松村らが⁹⁾報告した0.0854 $\mu\text{g}/\text{ppm} \cdot \text{hr}$ を用いた。

VOCsは活性炭チューブをポンプに接続し、毎分500 mLで24時間試料空気を捕集した。試料採取後は直ちにキャップをし、シールテープで密栓した後、活性炭入りの広口びんに入れ試験室まで持ち帰り分析時まで冷暗所(-20℃)にて保管しておいた。

有機リン化合物はガラス繊維フィルタ(1段目)とEmpore C18 Disk フィルタ(2段目)を重ねてテフロン製のフィルタホルダにセットする。これに試料空気を毎分5 Lで24時間捕集する。試料採取後は各フィルタを取り出し、アルミ製の保存袋に入れ密閉した後、試験室に持ち帰り分析時まで冷暗所(-20℃)に保管しておく。ここで、1段目のガラス繊維フィルタで捕集される物質を粒子状、2段目のEmpore C18 Disk フィルタで捕集される物質をガス状物質としてそれぞれ定義した。

フタル酸エステル類は石英繊維フィルタ(1段目)とCarbon Disk フィルタ(2段目)を重ねてテフロン製フィルタホルダにセットする。これに試料空気を毎分10 Lで24時間捕集する。試料採取後は各フィルタをアルミ製の保存袋に入れ、活性炭を入れた広口の容器に入れ試験室まで持ち帰り分析時まで冷暗所(-20℃)に保管しておく。ここで、用いる石英繊維フィルタは電気炉で350℃に3時間加熱処理したものを使用した。一方、Carbon Disk フィルタはジクロロメタン抽出、真空乾燥処理したフィルタを使用した。これらの処理を施したフィルタはフタル酸エステル類を1枚当たり10 ng以下に押さえることができた。

温湿度の測定は小型温湿度計を部屋の中央床上1.2 m地点に置き、24時間連続測定を行った。また、換気回数の測定はCO₂減衰法を用いて行った。

3.1.2 装置および試薬

GC/MS：島津製QP-5000型

ガスクロマトグラフ：島津製GC-17A型、炎光度検出器(FPD)

高速液体クロマトグラフ：島津製LC-10AT型、UV検出器(SPD-10AT)

ホルムアルデヒド自動計測器：東亜・DKK製SAP-100(s)型

遠心分離器：久保田製パーソナル冷却遠心機 2700

型

ポンプ：柴田科学製MP-Σ300型

DNPHカートリッジ：Waters製XPoSure

ガラス繊維フィルタ：ゲルマン製A/E型、外径47 mm

Empore C18 Disk filter：3 M製Octadecyl、外径47 mm

VOCs捕集用活性炭チューブ：柴田科学製ジャンボ型(二層式充填、400+200 mg)

小型温湿度計：テイアンドデイ製おんどとりTR-72型

CO₂計測器：ガステック製CMCD-10p型、赤外線吸収法(0-5000 ppm)

アセトニトリル：高速液体クロマトグラフ用

ジクロロメタン：残留農薬用

アセトン：残留農薬用

二硫化炭素：試薬特級

3.1.3 分析操作

ホルムアルデヒドは試料を捕集したサンプラーに注射筒(10 mL)を接続し、これにアセトニトリル5 mLを入れ、ゆっくりと共栓試験管に押し流す。アセトニトリルで5 mLにメスアップする。この溶液20 μL を高速液体クロマトグラフ(HPLC)に導入し、分析を行う。

VOCsはサンプリングの終わった捕集管から活性炭を取り出し共栓試験管に入れる。これに二硫化炭素2 mLを加え、2時間室温に放置する。その後、激しく振とうする(何回か繰り返す)。ついで、テフロン製のデイスポーザルフィルタ(外径13 mm)を接続した5 mLの注射筒に抽出液(二硫化炭素)の上清液を入れ濾過する。この濾液1 mLを取り内部標準溶液(トルエンd-8)を添加混合後、その1 μL をGC/MSに導入し分析を行う。

有機リン化合物(粒子状)は試料を捕集したガラス繊維フィルタを細かく切り共栓試験管に入れる。これにアセトン10 mLを加え、30分間室温の状態に放置する。ついで、10分間超音波抽出を行う。デイスポーザルフィルタを装着した注射筒(20 mL)に抽出液を入れ、ゆっくりと押し流し濾過する。濾液5 mLを分取して、これに内部標準溶液10 μL を添加混合後、その100 μL を大量試料導入装置付きGC/FPDに導入し分析を行う。また、有機リン化合物(ガス状)は粒子状物質の操作に準じて行う。

フタル酸エステル類(粒子状)は試料を捕集した石

英繊維フィルタを細かく切り共栓試験管に入れる。これにジクロロメタン 10 mL を加え、30 分間室温に放置する。ついで、10 分間超音波抽出 (35-37℃) を行う。上清液を遠心分離管 (10 mL) に移し、毎分 3000 回転で 10 分間冷却遠心 (0℃) を行う。上清液 1 mL を分取して、これに 3 種混合内部標準溶液 (各内部標準物質, d-DEP, d-DBP, d-DOP) 200 μ L を添加混合後、その 1 μ L を GC/MS に導入し、分析を行う。また、フタル酸エステル類 (ガス状) は粒子状物質の操作に準じて行う。

3.1.4 測定値

ホルムアルデヒド, VOCs, 有機リン化合物及びフタル酸エステル類は原則として、24 時間捕集し、採取流量で除して測定値 (24 時間値) を算出した。

3.2 ホルムアルデヒド濃度の時間変化

アセチルアセトン法の自動計測器 (東亜・DKK 製 SAP-100(s) 型) を用いて、11 月に 1 時間おきに 48 時間ホルムアルデヒド濃度を計測し、窓の解放後どの程度の時間で平衡濃度に達するかを調査した。測定箇所は居間で行った。窓の開放は朝 9 時から 30 分間開放した。

3.3 ホルムアルデヒドの収納棚からの放散

室内におけるホルムアルデヒドの発生源特定の一環として、収納棚内のホルムアルデヒド濃度を晩夏 (9 月初旬) と初秋 (10 月) に測定を行った。収納棚における採取は棚内部の中央にサンプラーを設置し扉は閉めた状態で採取した。分析方法は 3.1.3 と同様に行った。

4. 結果および考察

4.1 化学物質汚染の経月変化

4.1.1 測定結果の概要

Table 2 にホルムアルデヒド, VOCs 及び有機リン化合物の年間を通した測定結果の概要を示した。ホルムアルデヒドは屋外平均濃度 0.018 ppm に対して室内は 0.06~0.41 ppm の濃度範囲, 年平均値は 0.17 ppm であった。一方, トルエンは 67~2700 μ g/m³ の濃度範囲, 年平均値は 660 μ g/m³, キシレン (o,m,p-) は 130~2400 μ g/m³ の濃度範囲, 年平均値で 760 μ g/m³ であった。木材由来の α -ピネンは 160~500 μ g/m³, 平均値は 280 μ g/m³ であった。これらの測定値を参考のため, 厚生労働省の室内ガイドライン値と比較すると, ホルムアルデヒドは 24 時間値の最高値 (0.41

ppm) でガイドライン値 (0.08 ppm) の約 5 倍, 年平均値 (0.17 ppm) で約 2 倍高い値を示していた。一方, VOCs はトルエンの 24 時間値の最高値 (2700 μ g/m³) がガイドライン値 (260 μ g/m³) の約 10.4 倍, 年平均値 (660 μ g/m³) が約 2.5 倍高い値であった。また, キシレンの場合は 24 時間値の最高値 (2400 μ g/m³) がガイドライン値 (870 μ g/m³) の約 2.8 倍高い値であった。その他, パラジクロロベンゼン, エチルベンゼン, スチレン, クロロピリホス等はガイドライン値以下であった。また, 換気回数の調査を 5 月に窓を閉め切った状態で行った。その結果, この住宅の換気回数は 0.35 回/Hr であった。

4.1.2 ホルムアルデヒド

Fig.1 に各部屋におけるホルムアルデヒドの経月変化を示した。居間を例にとると竣工後 5 ヶ月を経過した 8 月に最も高く 0.41 ppm, その後, 徐々に減少し, 11 ヶ月後の 2 月に最低濃度 (0.064 ppm) を示した。夏季に高濃度を検出したのはこの住宅の換気量が 0.35 回/Hr で気密性が高いことが要因として考えられる。また, この挙動は Fig.2 に各部屋のホルムアルデヒド平均濃度と室温の関係を示したようにホルムアルデヒド濃度は室温と良く一致した動きを示しており, 室内ホルムアルデヒド濃度は室温に大きく影響されていることが明らかとなった。そして 1 年後の 3 月には竣工時 0.07 ppm に対してほぼ同様の 0.09 ppm という濃度であり 1 年経過後も同様の経月変化となることが考えられる。また, 各室間のホルムアルデヒド濃度の差を検証するために 3 部屋 (居間・和室・寝室) で同時調査を実施した。その結果, 24 時間平均値で最高 0.084 ppm, 最低で 0.002 ppm の濃度差が見られた。また, これら各部屋の経月変化では居間と同様の変化を示し, 年平均値で各室間を比較すると統計的に有意差は見られなかった。雨谷らの調査¹⁰⁾ では畳の部屋の調査では有意に濃度が低いという調査結果であったが, 今回の調査では, 畳の部屋は居間に比べて押入れやタンス等の発生源が多く存在することが原因して畳の部屋の濃度も高い傾向を示していた。

4.1.3 VOCs

Fig.3 はトルエン, m,p-キシレン, o-キシレン等の代表的な芳香族炭化水素の経月変化を示した。竣工後 1 ヶ月後に最も高い濃度を示したがその後, 経月的に減少している。一方, Fig.4 はリモネン, スチレン, パラジクロロベンゼンの経月変化を示した。これらは斎藤¹¹⁾ らが 2 年間, 夏と冬にホルムアルデヒドと 8

種類の VOC (トルエン, スチレン, パラジクロロベンゼン及び5種のハロゲン化炭化水素) について調査を行っているが, これと同様に竣工時からしばらく経過した時期に濃度上昇する傾向を示していた。個々の経月変化をみると発生源が木材由来であるリモネンは竣工後4ヶ月, 夏季7月に最高値 ($72 \mu\text{g}/\text{m}^3$) を示していた。一方, 発生源が断熱材由来であるスチレンは竣工後6ヶ月, 晩夏の9月に最高値 ($87 \mu\text{g}/\text{m}^3$) を示していた。このピーク値出現の違いはどこに由来しているのか考察を行った。まず, 考えられるのは物

質固有の性質や材料に使用されている状態の違いによって揮散速度が異なる為だと考えられる。通常, スチレンは壁の裏側に断熱材(ボード)として使用されているが, リモネンは木材由来であり, 木材が押し入れ, 家具, フローリング等剥き出し状態で露出されている割合が多いので, これらが原因して露出されている部分の多いリモネンの方から早い時期に放散し始めたと考えられる。スチレンについても揮発はしていたが壁が障害となり室内への放散はリモネンよりも遅い時期になったと思われる。パラジクロロベンゼンは生活由

Table 2 Summary of the measurement results

Chemicals	Concentration	
	Range	Average
Formaldehyde [ppm]		
HCHO(indoor)	0.06~0.41	0.17
HCHO(outdoor)	N.D.~0.036	0.018
Volatile organic compounds [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]		
Acetone	N.D.~79	47
Methylethylketone	N.D.~118	53
Ethylacetate	N.D.~113	37
Benzene	0.06~14	4.4
Methylisobuthylketone	N.D.~170	33
Toluene	67~2700	660
Buthylacetate	3.8~170	40
Ethylbenzene	12~1100	300
<i>m,p</i> -Xylene	27~1800	430
<i>o</i> -Xylene	7.2~600	200
Styrene	5.6~87	33
α -Pinene	160~500	280
Decane	0.85~460	58
Tetradecane	N.D.~15	4.3
1,2,4-Trimethylbenzene	0.8~320	64
Limonene	1.1~72	29
<i>p</i> -Dichlorobenzene	N.D.~54	15
Organophosphorus compounds [ng/m ³]		
Tri-butyl phosphate	12~23	17
Tris(2-chloroethyl)phosphate	1.4~8.9	4.8
Chlorpyrifos	N.D.~3.4	0.89

Each value : 24-hour averaged concentration measured once a month for 1 year after the completion of the house construction.

Values of organophosphorus compounds : Sum of the concentrations of gaseous and particulate fractions.

Average : Yearly average

Sampling point : Living room

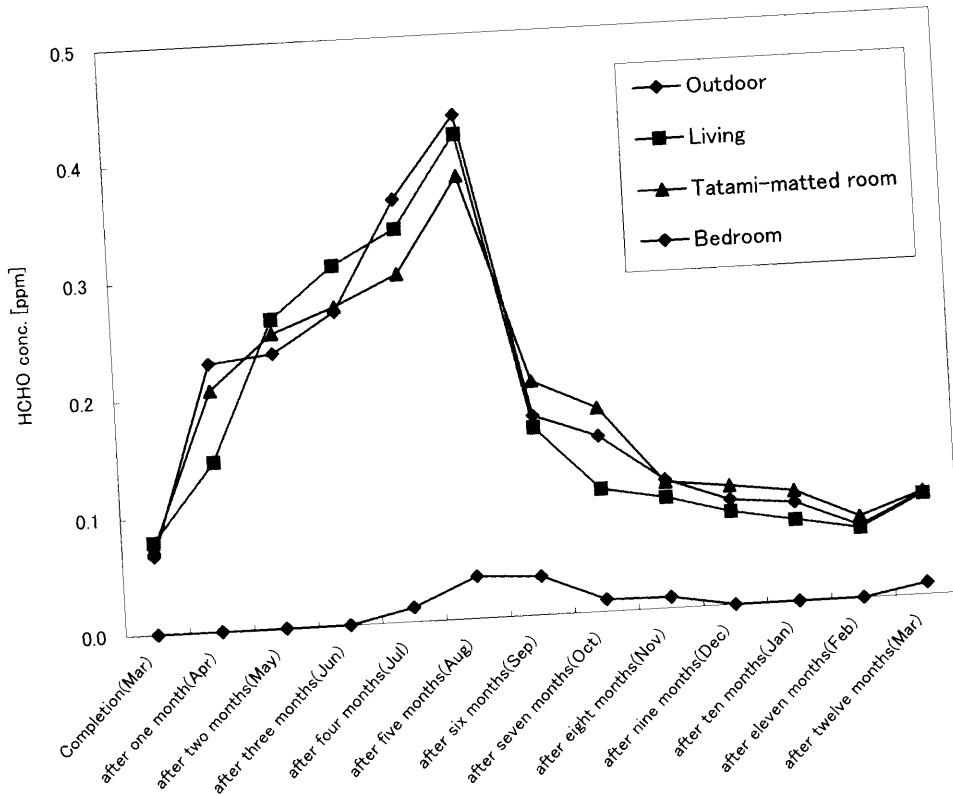


Fig.1 Monthly variation of formaldehyde concentration at various rooms

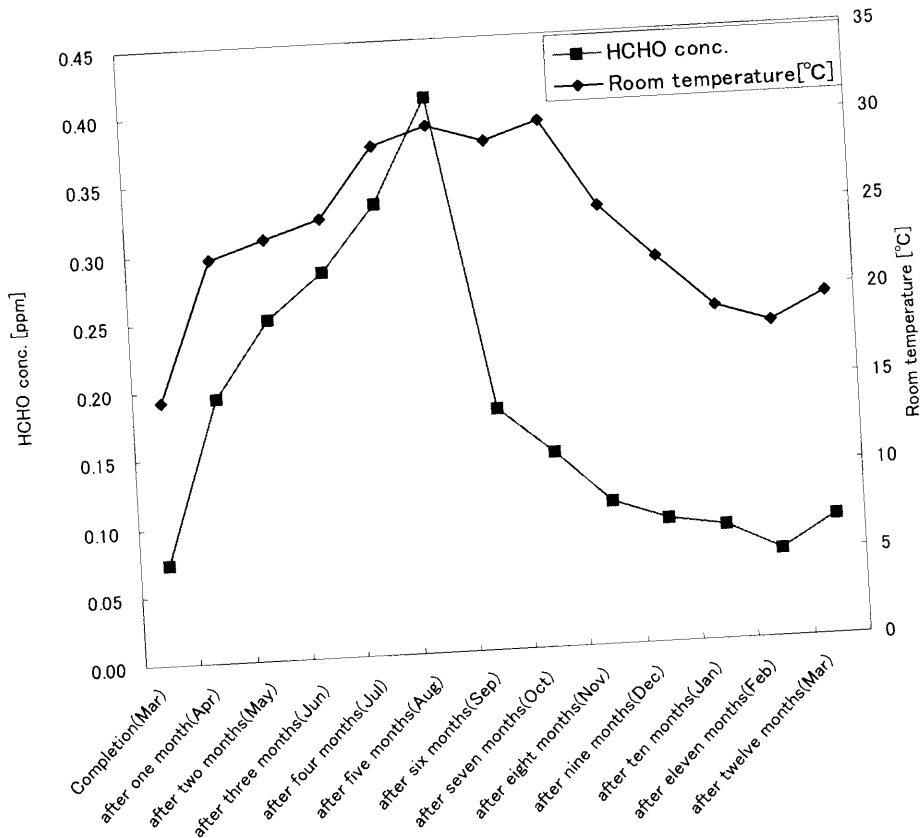


Fig.2 Monthly variation of formaldehyde concentration and room temperature at a living room

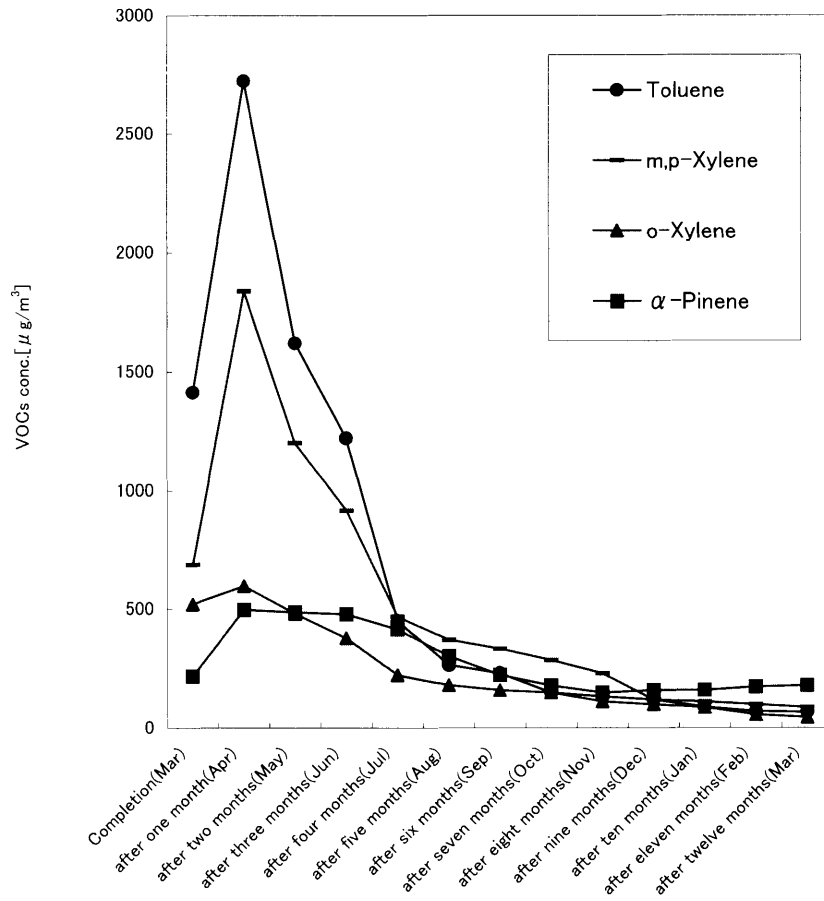


Fig.3 The time course of VOCs concentration in a living room

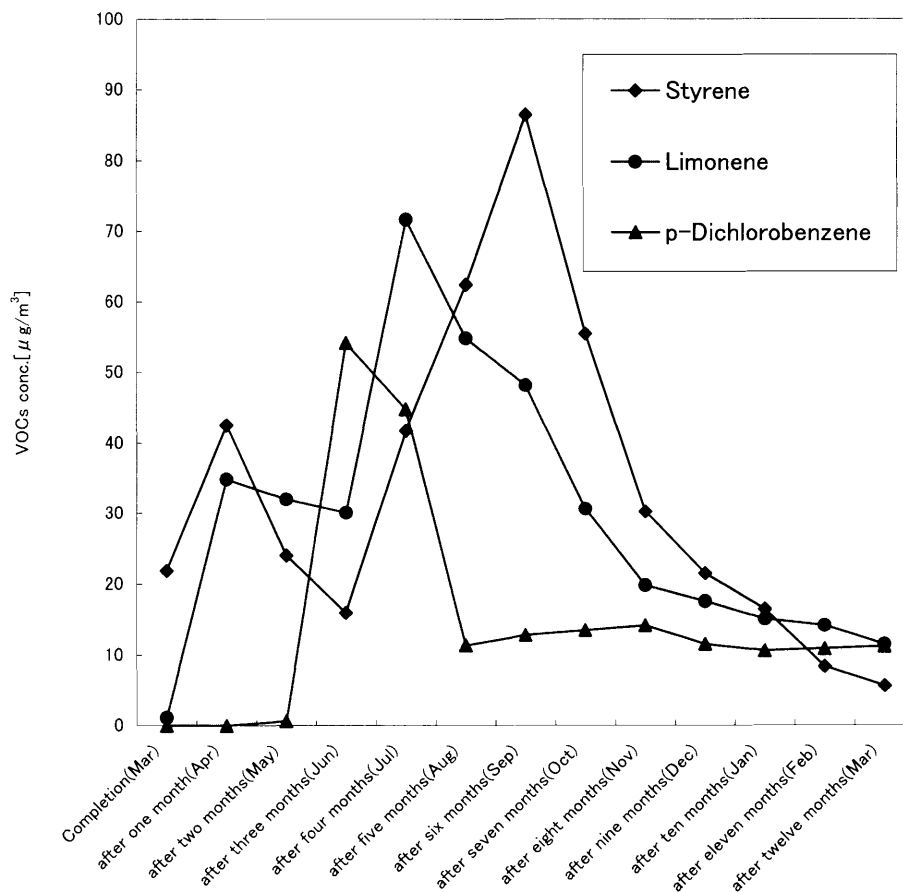


Fig.4 The time course of VOCs concentration in a living room

来で6月の梅雨時に防虫剤の入れ替えが行われていた関係で6月から7月に最も濃度が高く(ピーク値は6月),その後横ばい状態が続いている。また,竣工1年後は成分によっては竣工直後よりも濃度が増加している成分がみられた。

測定対象成分(44成分)を芳香族,脂肪族,テルペン類,アルデヒド・ケトン類,アルコール類,ハロカーボン類に分類し,合計した族性別測定値が経月のにどのように変化するかを検討した。その結果, Fig.5に示したように,特に竣工直後(竣工後3ヶ月まで)は芳香族炭化水素が70%以上を示していた。その後,築4ヶ月から8ヶ月までは55-62%の範囲を推移し,その後は徐々に減少している。族性別では芳香族についてテルペン類の割合が高い傾向を示している。木材由来のテルペン類は築後1年を経過しても容易に減少せず,むしろ増加傾向を示していた。

4.1.4 有機リン化合物

Fig. 6~8にトリブチルホスフェート(TBP), トリス-2-クロロエチルホスフェート(TCEP)及びクロルピリホス(CP)の粒子およびガス状の経月変化を示した。3成分の中で高濃度に検出されたのはTBPであり,4ヶ月後に粒子状とガス状合計値として

23 ng/m³であった。それぞれの化合物とも竣工後3,4ヶ月くらいまではガス状物質が検出されているが,5ヶ月以降になってくると粒子状物質が高くなってきている。また,夏季において粒子状物質が特異的に高く検出された。それぞれの成分の粒子状とガス状合計値は室温とほぼ同様の変化をしていることからホルムアルデヒドと同様に室温に影響されていることが明らかとなった。ガス状物質はTCEPを除いては竣工時から減少傾向を示していた。これはビニルクロス等の壁装材が新しい時はガス状物質の放散が多いことが松村ら¹²⁾の報告で明らかであることから,竣工後ガス状物質が高く検出されると考えられる。しかしTCEPのガス状物質のみが室温とほぼ同様の変化を示していること,夏季以降TCEPを除いて粒子状とガス状が逆転するか,全く検出されない状態となっている。有機リン化合物は壁材から室温の上昇に伴って揮発して室内の粒子に付着すると考えられるが,成分によって付着する粒子に違いが生じることは考えにくいことからこの傾向についての原因は明らかでない。

4.1.5 フタル酸エステル類

Table 3 にフタル酸エステル類の測定結果を示した。フタル酸エステル類については経月的に測定を行って

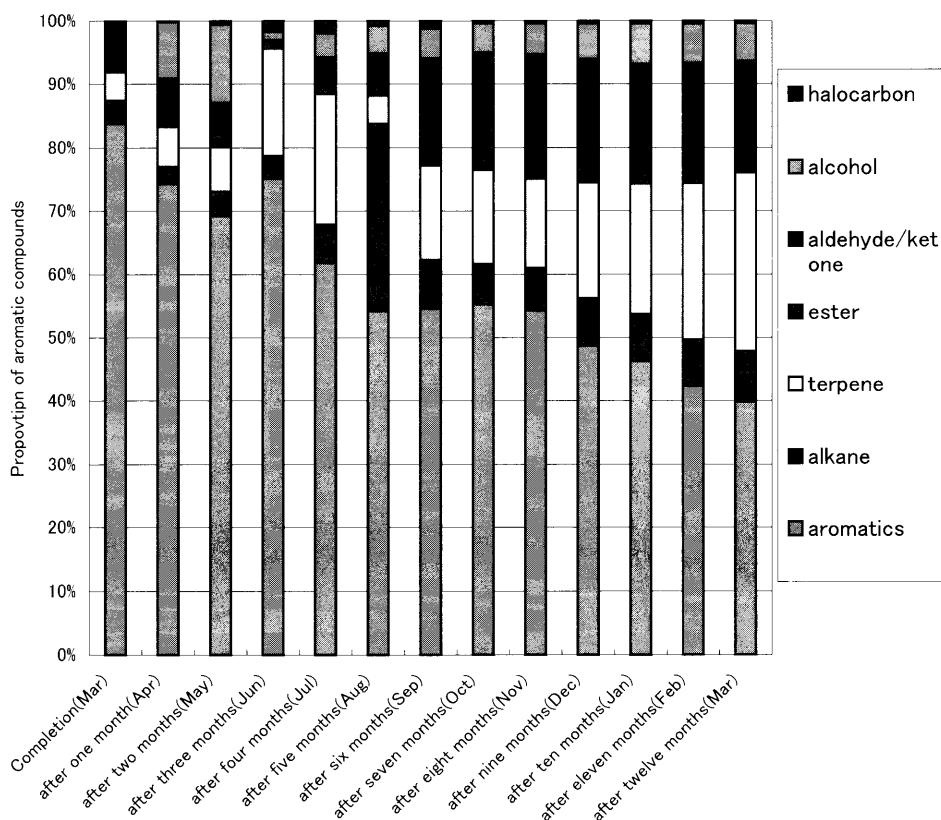


Fig.5 The time course of each aromatic compound

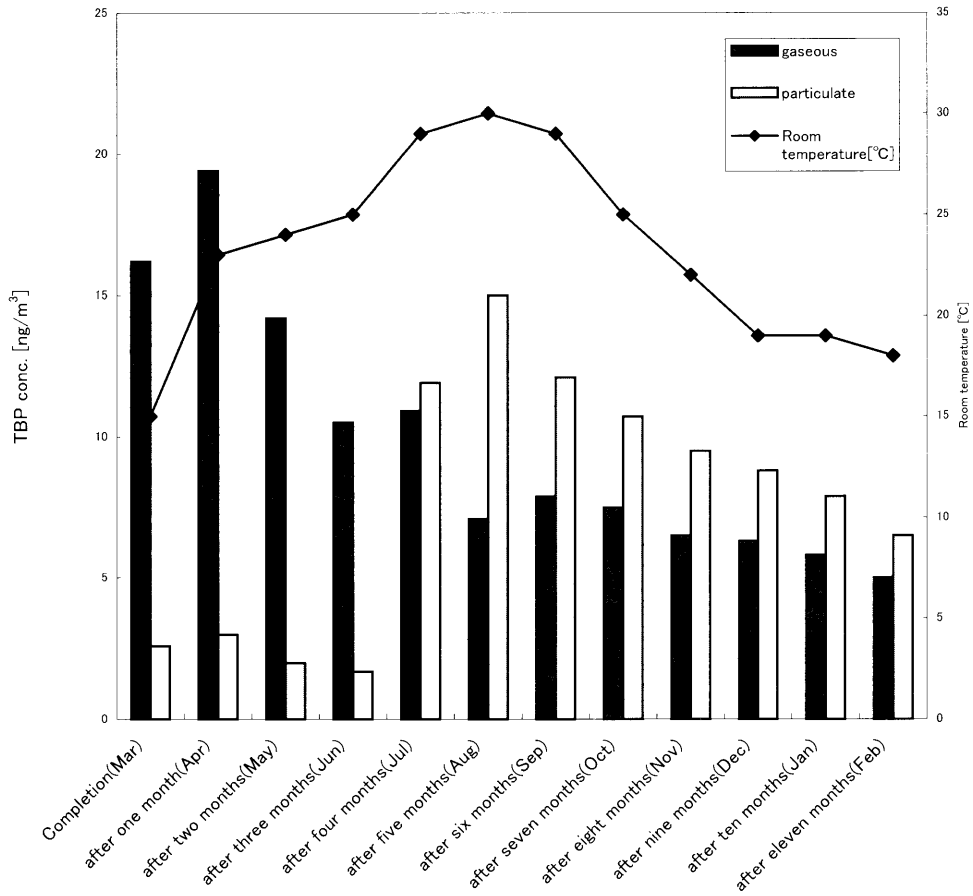


Fig.6 The time course of Tributylphosphate concentration in a living room

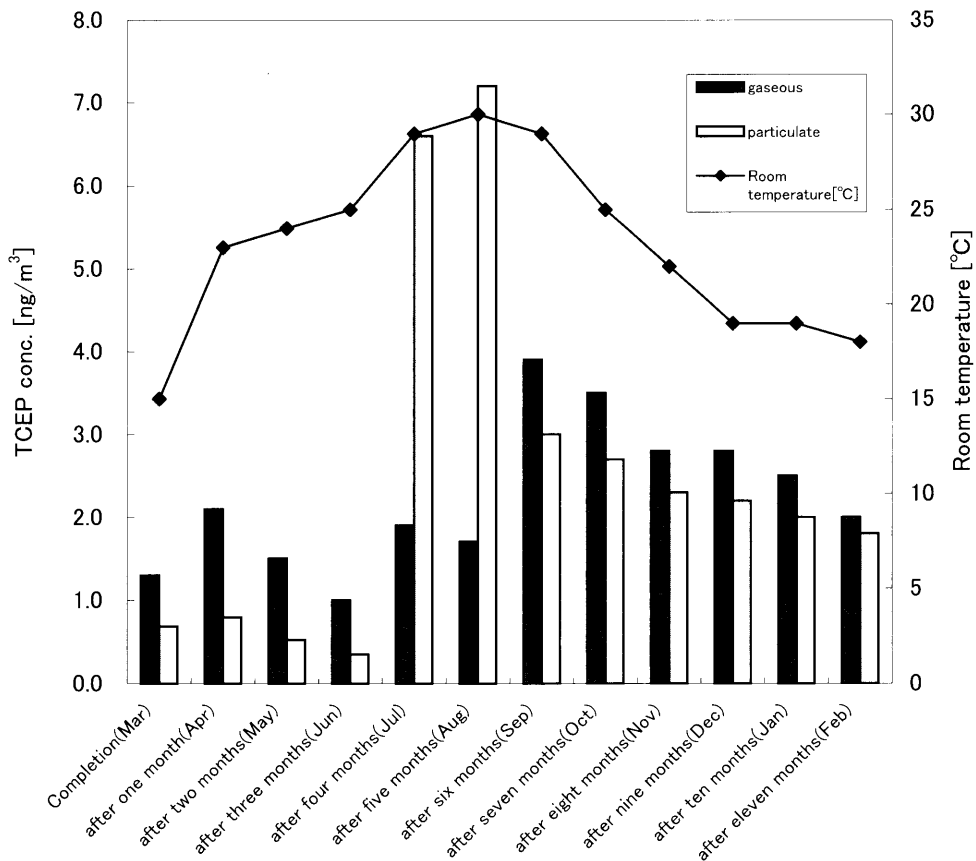


Fig.7 The time course of Tris (2-chloroethyl)phosphate concentration in a living room

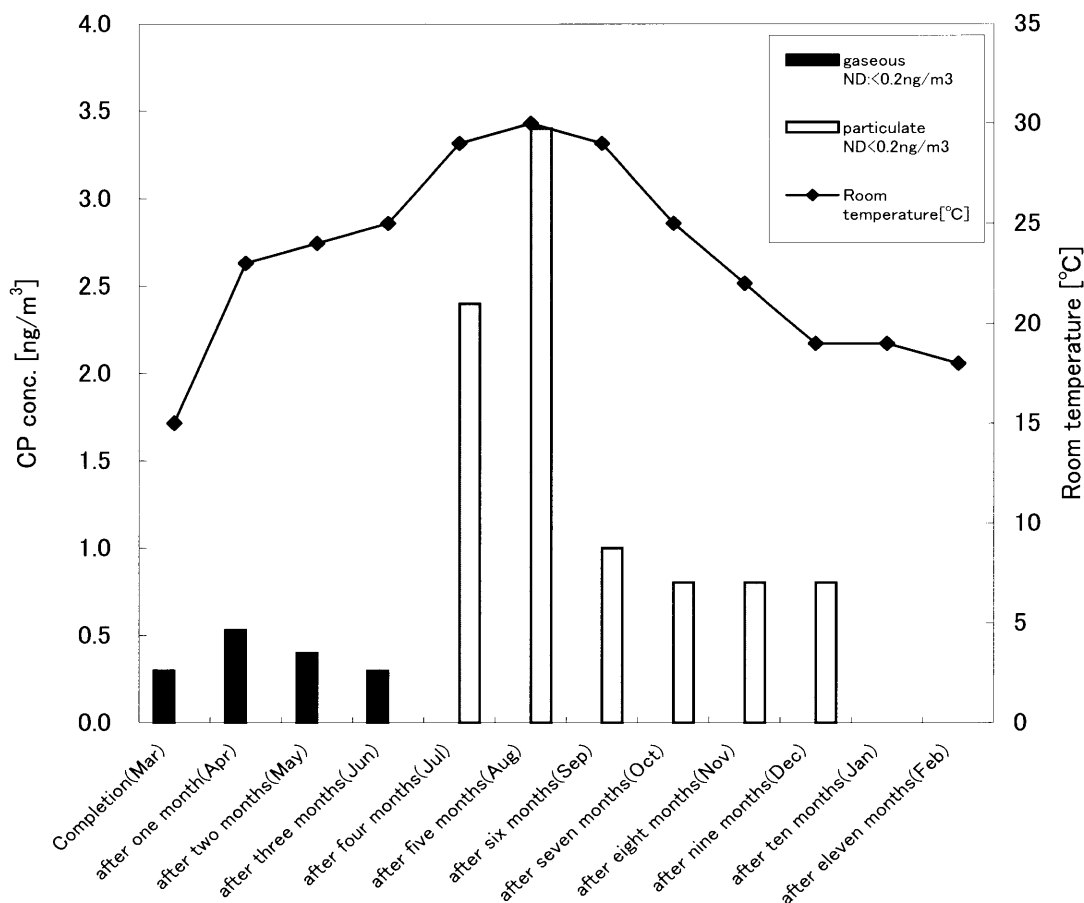


Fig.8 The time course of Chrolpirifos concentration in a living room

いないが、築後3ヶ月を経過した6月にフタル酸エステル類の測定を居間において実施した。その結果、最も高濃度で検出したのは粒子状ではフタル酸ジブチル (1500 ng/m³)、ガス状ではフタル酸ジエチル (160 ng/m³)であった。また、フタル酸エステル類の中でも比較的蒸気圧の高いフタル酸ジメチル、フタル酸ジエチル、フタル酸ジアリル等はガス状物質が高い傾向を示していた。粒子状ではフタル酸ジブチルやフタル酸ジオクチルが高い傾向を示していた。

4.2 ホルムアルデヒド濃度の時間変化

ホルムアルデヒド濃度の時間変化についてはFig. 9に示すように窓解放後約8時間後には平均濃度0.10 ppmに達していることが明らかとなった。これは今回行った11月の調査結果(0.10 ppm)と同様の結果であることから今回の調査結果は実際の日常生活における平均的濃度と見ることができる。また、この結果からこの部屋のホルムアルデヒド濃度を厚生労働省のガイドライン値0.08 ppmを超えないようにするためには、窓を閉めた後、約4～8時間経過したら窓を再び開放す

るか、換気扇等を作動することにより室内ホルムアルデヒド濃度をガイドライン値以下にできることが示唆された。

4.3 ホルムアルデヒドの収納棚からの放散

調査は居間の壁に設置された約0.3 m³の棚と洗面所横に設置された約0.2 m³の棚の2箇所で行った。いずれも入居前に設置された収納棚であり材質はベニア合板で作成されている。その結果、Fig. 10に示したように収納棚内のホルムアルデヒド濃度は気温の高い9月初旬に0.8 ppmを超える濃度を示しており、室内発生源の一つとして考えられた。因みに10月の濃度は9月と比較して50%程度減少していた。

5. おわりに

Sick building syndrome や化学物質過敏症等の発症に及ぼす室内空気中の化学物質の実態究明を目的として、大都市に建立する集合住宅内で年間を通して化学物質濃度を実測した。その結果、以下の点が明らか

Table 3 Measurement results of phthalate esters in a living

Substances	Phthalate esters [ng/m ³]	
	Particulate	Gaseous
DMP	1.4	67
DEP	3.9	160
DAP	8.0	130
DisoBP	6.2	44
DBP	1500	1.4
BBP	8.8	1.7
DHP	33	7.5
DOP	560	5.3
DNP	3.3	0.3

DMP : Dimethyl phthalate
 DEP : Diethyl phthalate
 DAP : Diallyl phthalate
 DisoBP : Di-*iso*-butyl phthalate
 DBP : Di-*n*-butyl phthalate
 BBP : Benzyl-*n*-buthyl phthalate
 DHP : Di-*n*-hexyl phthalate
 DOP : Dioctyl phthalate
 DNP : Dinonyl phthalate

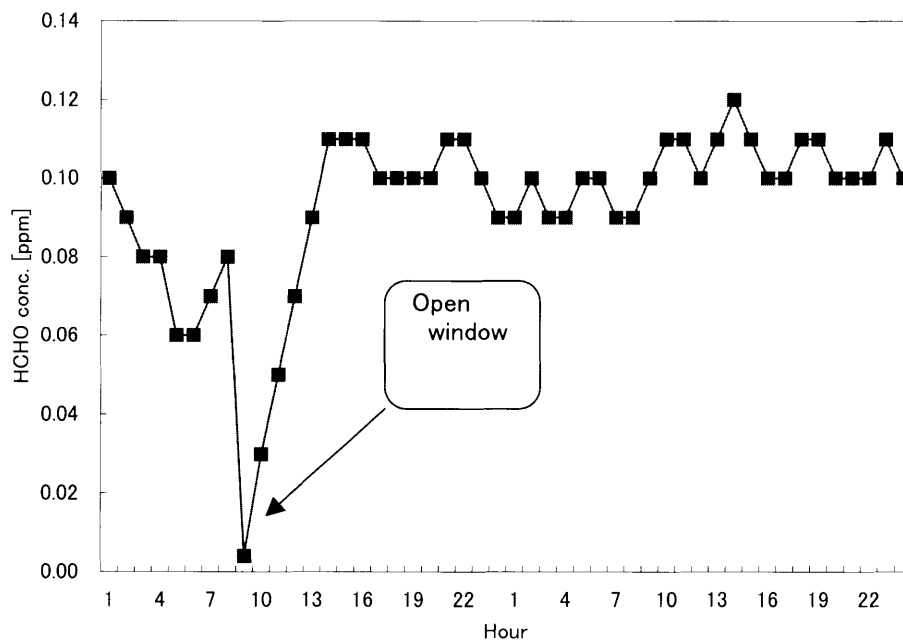


Fig.9 Two days variation of formaldehyde concentration in a living room

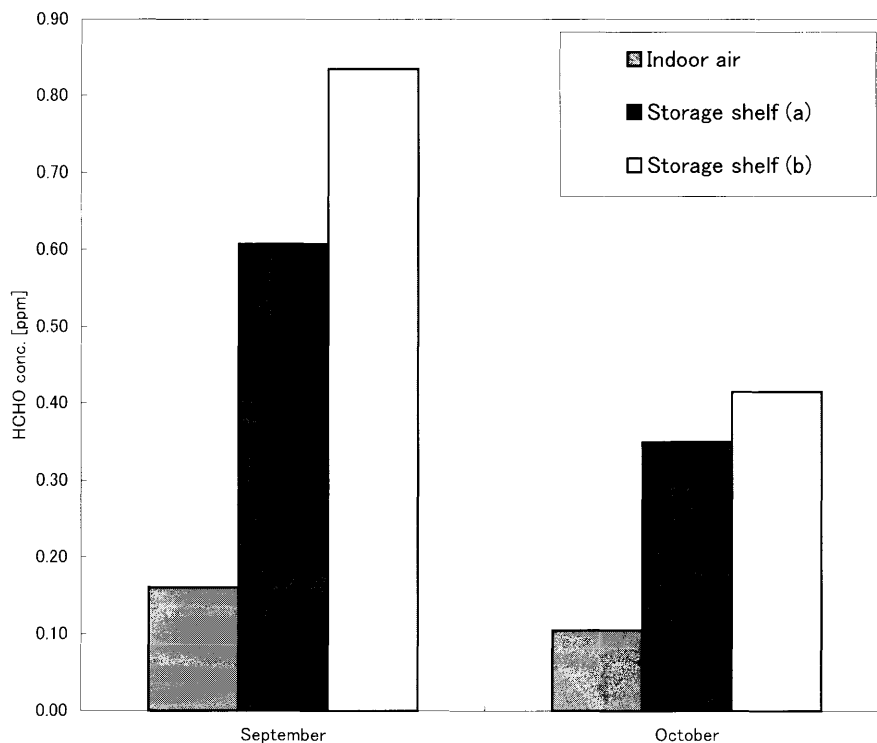


Fig.10 Measurement results of formaldehyde concentration in a living room and storage shelves

となった。

(1) 年間を通じたホルムアルデヒド濃度は0.06～0.41 ppmの範囲で、年間平均値は0.17 ppmを示していた。室内ホルムアルデヒド濃度は夏季に濃度が高く、冬季に低い典型的な一山タイプを示し、この変動に室温が大きく影響していることが明らかとなった。

厚生労働省の室内ガイドライン値と今回得られた測定値を比較すると、24時間値の最高値で5倍、年平均値で2倍ほど高い値を示していた。

(2) VOCsは竣工直後から濃度が減少する成分と夏季に濃度が上昇する成分が存在することが明らかとなった。VOCsを族性別に分けて濃度割合を検討すると、芳香族炭化水素類が圧倒的に高い傾向を示していた。

(3) 有機リン化合物は粒子状とガス状成分が混在していることが明らかとなった。その比率は築後の経過時間により異なるが、トリブチルホスフェート、クロルピリホスとも竣工後3ヶ月くらいまではガス状成分が、それ以降は粒子状成分が多くなることが明らかになってきた。

(4) フタル酸エステル類の測定は築後、4ヶ月後(6月)のみに行ったが、9種類のフタル酸エステル類が検出された。ガス状ではフタル酸ジメチル(67 ng/m³)、フタル酸ジエチル(160 ng/m³)、フタル酸ジアリル(130 ng/m³)が高い傾向を示し、一方、粒子状ではフ

タル酸ジブチル(1500 ng/m³)、とフタル酸ジオクチル(560 ng/m³)が高い傾向を示していた。

(5) 室内に据え付けられている収納棚内のホルムアルデヒド濃度は夏季には0.8 ppm程度まで上昇することから、室内ホルムアルデヒド汚染の発生源になりうることが明らかとなった。

文 献

- 1) 松村年郎；室内化学物質汚染の最近の動向，21世紀のいのちと環境シリーズ⑧室内環境をとりまく最近の動向，健康事業総合財団「財団法人東京顕微鏡院」，18-33(2000)。
- 2) 池田耕一；シックハウス症候群，生活と環境43，24-33(1998)。
- 3) 宮田幹夫；室内環境快適性とアレルギーおよび化学物質過敏症，第3回室内環境研究会講演集，20-25(1997)。
- 4) NHK放送世論調査所，国民生活時間調査，2000。
- 5) 松村年郎，井上哲男，樋口英二，山手昇；東京都霞ヶ関における空気中のホルムアルデヒド濃度，日本化学会誌(化学と工業化学) No 4，540-545(1979)。
- 6) Krause, C；Occurrence of volatile organic compounds in the air of home in the 500 Federal Republic of Germany, Proceeding of Indoor Air, 1, 102-106(1987)。
- 7) 鄭境岩，田中敏之，田中辰明，小林靖尚；新築住宅室内における揮発性有機化合物の発生と経時変化，環境化学，10，807-815(2000)。

- 8) 松村年郎, 村松学, 亀谷勝昭; 室内空気汚染に関する研究(第3報), 日本公衆衛生雑誌, 30, 303-308(1983).
- 9) 松村年郎, 安藤正典, 名智幸江; ホルムアルデヒドパッシブサンプラーの開発, 第24回建築物環境衛生管理技術研究会講演要旨集, 38-39(1997).
- 10) 雨谷敬史, 大浦健, 杉山智彦, 房家正博, 松下秀鶴; 富士市・夏季におけるアルデヒド類による室内外の汚染実態調査, 室内環境学会誌, 3, 35-43(2000).
- 11) 斎藤育江, 瀬戸博, 多田宇宏, 長嶋親治, 竹内正博, 土屋悦輝; 住宅の室内ホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物濃度の経時変化, 東京衛研年報 50, 235-239(1999).
- 12) 松村年郎, 濱田実香, 安藤正典; 室内空気中の有機リン化合物の測定結果について, 第41回大気環境学会年会, 講演要旨集, 357(2000).