

原著論文

福岡県における室内化学物質の実態調査

力 寿雄, 柳川正男, 濱村研吾, 大石興弘, 岩本眞二, 中村又善

新築住宅における総揮発性有機物(TVOC; Total volatile organic compounds)を様々な分析方法で測定することにより, TVOCについて, 測定方法の確立, 実態の把握を目的とした調査を福岡県内の全15戸の住宅において実施した. 揮発性有機化合物(VOC; Volatile organic compounds)については, アクティブ法により116成分が定量可能であったが, テルペン類の定量には2種類の捕集管の併用が必要であった. また, パッシブ法によりハロゲン化炭化水素類やエステル類の空气中濃度を推測することが可能であった. 本調査結果から, TVOC値の高い住宅は築3ヶ月以内の新築住宅が中心であったが, 石油系暖房器具の使用の影響もあると推察された. また, 室内空气中主要物質について, 人の1日吸入暴露量の推定を行った.

[キーワード : 室内空気汚染, シックハウス症候群, 揮発性有機化合物, TVOC, 暴露量]

1 はじめに

近年, 省エネルギー対策として, 高気密・高断熱住宅の普及が進み, それに伴う室内空气中的化学物質汚染が大きな社会問題となっている. そこで, 個別のVOCについては, 順次室内濃度指針値の設定が進められている. 一方, VOC混合物の総量であるTVOCは, 個別VOCに指定されていない物質による室内汚染を未然に防止することを目的に, 現在, $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (新築の場合 $1000 \mu\text{g}/\text{m}^3$)と暫定的な指針値が設定されている¹⁾. そのTVOCについては, 対象化合物の選定, 試料採取方法, 分析方法の確立が必要となっている. そこで, 福岡県ではTVOCに係る指針の検討に必要な基礎データの整備と新築居住住宅におけるTVOCの実態を把握するために, 平成13, 14年度に全15戸(うち木造11戸, 鉄筋4戸)の住宅で調査を実施した. さらに, 経気道暴露される化学物質の大部分は室内空気による可能性が高いことから^{2,3)}, 室内空气中的主要成分の暴露量について考察した.

2 調査方法

2・1 VOC類: アクティブ採取-溶媒抽出-GC/MS法

アクティブ法空気試料の採取は, 築3年以内の15戸の住宅において, 室内(居間)および屋外で行なった. ポンプ(GLサイエンス製 SP204-500Dual)を用いてシグマアルドリッチ社製捕集管(ORBO91L)に 100 mL /分程度の流量で24時間試料空気を採取した. また, 8戸の住宅で捕集管 ORBO101 と ORBO91L を連結したもののについて, 同様に試料空気を採取した. 試料採

取後, 吸着剤に二硫化炭素を加え抽出し, さらに, 内標準溶液(トルエン d-8 $100 \mu\text{g}/\text{mL}$) $2 \mu\text{L}$ を加えて GC/MS により分析した. 測定条件を表1に示す.

2・2 VOC類: パッシブ採取-溶媒抽出-GC/MS法

パッシブ法空気試料の採取は, 柴田科学製パッシブガステューブ(7戸)またはシグマアルドリッチ製 VOC-SD(8戸)を床上 1.2 m 付近にセットし24時間暴露した. 試料採取後はアクティブ法と同様に処理した.

2・3 アルデヒド類: パッシブ採取-溶媒抽出-HPLC法

アルデヒド類は, シグマアルドリッチ社製 DSD-DNPH を床上 1.2 m 付近にセットし24時間暴露した. 試料採取後, 捕集管にアセトニトリル 5 mL を通液し, カルボニル化合物のヒドラゾン誘導体を溶出し, HPLC により測定した. 測定条件を表2に示す.

なお, 調査は10月下旬~12月上旬にかけて実施した.

3 結果及び考察

3・1 TVOC測定方法の検討

アクティブ法による試料採取ではポンプにより試料空気を吸着剤に採気し, VOC を捕集する. 従来, 室内化学物質調査では試料導入装置を必要とする加熱脱着法を用いるが, 今回の調査では通常の GC/MS 装置で分析可能な溶媒抽出法により, 室内空气中 VOC の測定を実施した. 空气中 VOC を測定する際に一般的に使用される溶媒抽出用吸着剤である ORBO91L(カーボンモレキュラーシーブ)を単独で利用したもの, 加熱脱着用の吸着剤と同種の吸着剤である ORBO101(グラファイトカーボンブラック)を ORBO91L の前方

表1. VOC類の測定方法

	アクティブ試料採取		パッシブ試料採取	
捕集管	シグマアルドリッチ社製			柴田科学社製
	ORBO91L	ORBO101+ORBO91L	VOC-SD	パッシブガスチューブ
試料採取	ポンプにより100mL/分で 空気を24時間吸引		空気に24時間曝露	
抽出	二硫化炭素2mLにより抽出			
GC/MS	Agilent 6890/5973			
カラム名&極性	HP-INNOWax Polyethylene Glycol 極性			
カラムサイズ	60m×0.32mm×0.25μm			
GC/MS注入量	1.0μl			
スプリット比	20 : 1			
カラム昇温条件	40℃(10min)→3℃/min→140℃→5℃/min→200℃→20℃/min→220℃(18min)			
注入口温度	250℃			
検出器温度	260℃			

表2. アルデヒド類の測定方法

捕集管	パッシブ試料採取	
	シグマアルドリッチ社製	
	DSD-DNPH	
試料採取	空気に24時間曝露	
抽出	アセトニトリル5mLにより抽出	
HPLC	東ソー製 CO8010シリーズ	
カラム	Discovery RP-Amide C16 25cm×4.6mm	
移動相	アセトニトリル/水=55/45	
流速	1.0mL/min	
カラム温度	40℃	
検出	360nm	
注入量	20 μ l	

に連結した二通りの方法により 8 戸の住宅で試料採取を行った。両法による各測定物質の定量結果から散布図を作成し、その相関関係を表 3 にまとめた。調査対象の成分の多くについては両法による相関式の傾きは 1 に近く、すなわち、両法によって同様な定量結果が得られることが確認された。しかし、テルペン類のうち、 α -ピネン、 β -ピネンと 3-カレンについては、その相関式の傾きから、両測定法による定量結果には大きな違いがあったことがわかった。これは、これらの物質が単環構造に二重結合を 1 つ持つという共通の構造を有しており、多孔性炭素吸着剤であるカーボンモレキュラーシーブ ORBO91L に強力に吸着するため、二硫化炭素により抽出されにくいことが要因であると推察された。(ORBO101+ORBO91L)連結の結果では、そのテルペン類の増加分のため、2 戸の住宅で TVOC 値も大きく増大した。すなわち、通常、空気中の VOC

を捕集する際に使用される捕集管 ORBO91L 単独ではテルペン類の定量は不可能であり、他の捕集管との併用が不可欠であることが判明した。

パッシブ法はアクティブ法のように、ポンプを必要とせず、動作時の騒音が問題となる寝室などでも測定が可能であるという利点がある。そこで、柴田科学製パッシブガスチューブとシグマアルドリッチ製 VOC-SD を使用し、パッシブ法とアクティブ法を比較検討することにより、パッシブ法の有用性を検討した。パッシブガスチューブを使用した場合、 n -ドデカンや n -テトラデカンの捕集管由来と思われるブランクが非常に高く、これらの成分の定量は困難であった。一方、VOC-SD は捕集管由来のブランクは無視できる程度であった。パッシブ法(VOC-SD 使用)の有用性を確認するために、アクティブ法 (ORBO101+ORBO91L 連結) との比較を行なった結果を図 1 に示す。ハロゲン化炭

表3. 2種類の捕集管による定量結果の相関

x: (ORBO91L), y: (ORBO101+ORBO91L)

物質名	R ²	相関式	物質名	R ²	相関式
ベンゼン	1.00	y=0.90x-0.11	n-テトラデカン	0.99	y=0.93x-0.65
トルエン	0.67	y=1.25x+4.92	n-ペンタデカン	0.96	y=1.46x+0.14
エチルベンゼン	0.98	y=1.06x-0.05	n-ヘキサデカン	0.73	y=2.33x+0.24
m-キシレン	0.99	y=1.03x-0.10	2-メチルペンタン	0.77	y=1.13x+0.50
p-キシレン	0.98	y=1.05x-0.01	1-オクテン	0.33	y=1.84x+0.32
o-キシレン	0.98	y=0.98x-0.24	メチルシクロヘキサン	0.29	y=2.06x+0.45
イソプロピルベンゼン	1.00	y=1.14x-0.01	3-カレン	0.49	y=4.67x+0.71
n-プロピルベンゼン	1.00	y=1.11x-0.01	α -ピネン	0.96	y=178.40x+1.33
1,2,4-トリメチルベンゼン	1.00	y=1.11x-0.01	β -ピネン	0.10	y=-10.87x+0.36
1,3,5-トリメチルベンゼン	1.00	y=1.15x-0.03	リモネン	0.92	y=0.95x-2.44
1,2,3-トリメチルベンゼン	1.00	y=1.15x-0.07	メンソール	0.40	y=2.04x+0.22
1-メチル-3-プロピルベンゼン	1.00	y=1.11x-0.07	2-プロパノール	0.99	y=0.82x-0.13
2-エチルトルエン	1.00	y=1.12x-0.03	1-ブタノール	1.00	y=0.91x+0.03
スチレン	0.85	y=0.90x+0.04	フェノール	0.97	y=1.02x
ナフタレン	0.99	y=1.21x-0.01	デキサノール	0.76	y=2.18x+0.16
2-メチルヘキサン	0.88	y=0.94x-0.01	エタノール	0.93	y=0.99x+0.50
3-メチルヘキサン	0.95	y=1.39x+0.10	アセトン	0.89	y=0.85x-0.88
n-ヘプタン	0.97	y=0.91x-0.23	メチルエチルケトン	0.46	y=1.06x+1.04
n-オクタン	0.99	y=1.10x-0.04	メチルイソブチルケトン	0.76	y=1.76x+0.26
n-ノナン	1.00	y=1.12x-0.25	ジクロロメタン	0.66	y=0.91x+0.29
2-メチルオクタン	0.97	y=1.25x-0.05	p-ジクロロベンゼン	1.00	y=1.05x-0.79
3-メチルオクタン	0.96	y=1.25x-0.07	クロロホルム	0.79	y=0.98x+0.06
2-メチルノナン	0.93	y=1.26x-0.18	酢酸メチル	0.90	y=0.85x-0.02
3,5-ジメチルオクタン	1.00	y=1.74x+0.02	酢酸エチル	1.00	y=0.99x+0.14
n-デカン	0.98	y=0.74x-2.07	酢酸ブチル	0.90	y=0.94x-0.10
n-ウンデカン	1.00	y=1.31x+0.03	メタクリル酸メチル	0.80	y=2.35x+0.14
n-ドデカン	0.99	y=0.96x-1.47	TXIB	0.99	y=0.99x-0.12
n-トリデカン	1.00	y=0.92x-1.07	フタル酸ジブチル	0.11	y=0.52x+0.19

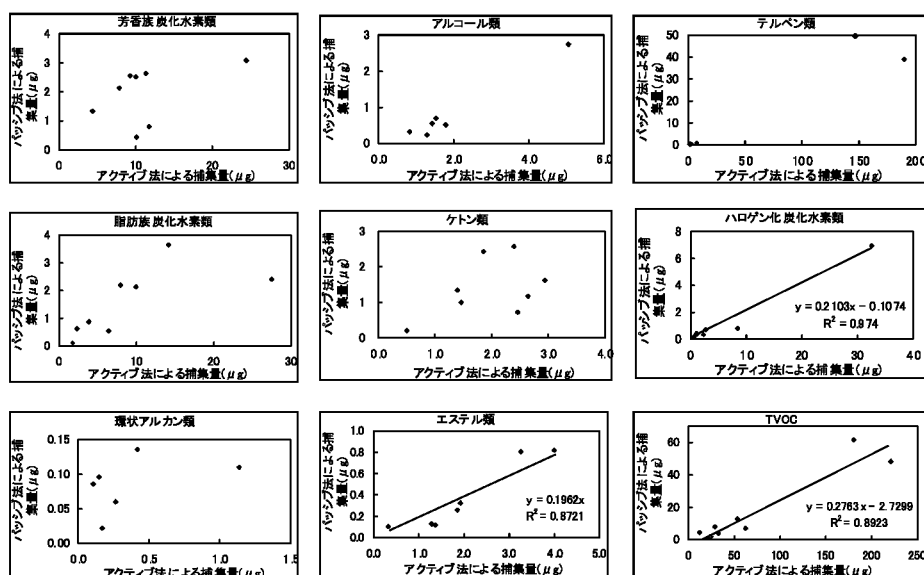


図 1. アクティブ法とパッシブ法の比較

化水素類およびエステル類では両法の相関がよく、パッシブ法から空气中濃度を算出することが可能であると思われる。脂肪族炭化水素類および環状アルカン類では一部住宅の結果を除くと、両法の相関が見られた。しかし、パッシブ法は原理上、空气中成分の捕集を吸着剤への拡散に頼るため、微量成分の定量は困難であった。また、TVOC 値については、2 戸の住宅でテルペン類が高濃度で検出されたことにより、TVOC 値が高濃度側と低濃度側の住宅に二分したため、見かけ上パッシブ法とアクティブ法の相関は良好であったが、実際の低濃度領域での相関はよくなかった。ただし、パッシブ法はポンプを必要とせず、動作時の騒音が問題となる寝室などでも測定が可能であるという利点があり、多地点での試料採取が容易であることから、モニタリング等への使用も考えられる。

3・2 室内TVOC値

今回測定対象とした VOC は、室内空气中に存在すると考えられる成分を中心に、芳香族炭化水素類 26 種、脂肪族炭化水素類 23 種、環状アルカン類 6 種、テルペン類 10 種、アルコール類 14 種、グリコールエーテル類 10 種、ケトン類 5 種、ハロゲン化炭化水素類 10 種、エステル類 14 種、フタル酸エステル類 2 種、その他 6 種の全 126 種であった。今回の調査では極性カラムである HP 社製 INNOWAX を使用したため、*n*-ヘキサン等の低級アルカン類が抽出溶媒である二硫化炭素のシグナルと重なり、定量できなかった。調査した全15戸の室内および屋外空气中化学物質の濃度は付表のとおりである。定量可能な 116 成分のうち、室内で検出された成分は 75 成分、屋外で検出された成分

は 45 成分であった。調査した全住宅の室内から検出された32成分に DNPH 法により定量したホルムアルデヒド、アセトアルデヒドを加えた 34 成分について、15 戸の調査対象住宅における室内空气中濃度の最大値、最小値、中央値を図 2 にまとめた。各成分の室内空气中濃度は住宅により大きな開きがあり、その中央値が低濃度側にあることから明らかに、室内空气中の化学物質は一部の住宅において非常に高濃度に検出されるという特徴がみられた。室内空气中、中央値の高い上位 20 物質について、その室内および屋外空气中濃度、さらに室内と屋外の濃度比 (I/O 比) を表 4 にまとめた。接着剤や塗料の溶剤等を使用されるトルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素類、溶剤や石油成分から発生する *n*-ノナン、*n*-デカン等の脂肪族炭化水素類が上位を占めるなか、防虫剤の *p*-ジクロロベンゼン、木質建材から発生するリモネンなどの屋外大気中では微量の成分が、室内空气中に高濃度で検出された。この表で、I/O 比の高い物質は主に室内に発生源があることを示しており、アルデヒド類、脂肪族炭化水素類、ケトン類などが室内から発生していると確認された。

今回の調査では、超揮発性有機化合物(VVOC)の 2-メチルペンタン(沸点 62 °C)から半揮発性有機化合物(SVOC)のフタル酸ジブチル(沸点 340 °C)の範囲に検出される個々の VOC をそれぞれ定量し、その濃度の総和を TVOC 値とした。なお、エタノールの TVOC 値に占める割合は 19 %から 70 %と非常に高く、室内空気汚染実態の把握の妨げとなるため、TVOC 値の対象成分からは除外した。このようにして算出した TVOC 値と前述の 32 成分のみの総和から算出した TVOC 値

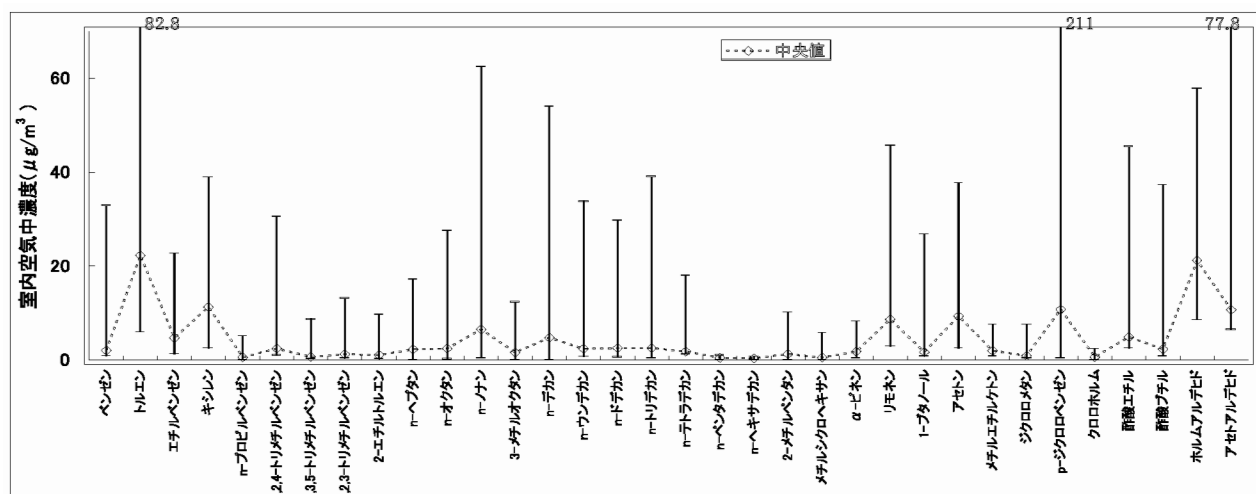


図2. 主要成分の室内空气中濃度

には大きな違いはないことから、TVOC 値の算出には前述の 32 成分を中心に必須 VOC リストを作成することが適当であると考えられる。測定結果を VOC のカテゴリー別に分類したものを表 5 に示す。エタノールを除くと、室内では芳香族炭化水素類および脂肪族炭化水素類の濃度が高く、2 戸の住宅を除いて、TVOC 値の 40 ～ 80 % を占めていた。その脂肪族炭化水素類のうち、n-ノナンとn-デカンが高濃度の住宅はいずれも石油系暖房器具を使用した住宅であった。次いで、ハロゲン化炭化水素類、テルペン類であったが、ハロゲン化炭化水素類のほとんどは p-ジクロロベンゼンであり、テルペン類はα-ピネン、リモネン、β-ピネンが主成分であった。室内濃度指針値が定められたトルエン、ホルムアルデヒド、p-ジクロロベンゼン等の 13 物質のうち、アセトアルデヒドで指針値を超過した住宅が 1 戸あった他は、全対象住宅とも各成分の濃度は指針値以下であった。TVOC 値では、2 戸の住宅の総量がそれぞれ、534 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、668 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と、暫定指針値

である 400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した。これら未達成住宅は築 3 ヶ月以内の新築住宅であり、新築住宅の指針値である 1000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ は達成されていた。木質建材や芳香剤から発生するα-ピネン等のテルペン類や防虫剤からの p-ジクロロベンゼンが一部住宅で非常に高濃度で検出されたが、こうした発生源が特有な物質を除くと、TVOC 値の高い住宅は、築 3 ヶ月以内の新築住宅が中心であった。また、脂肪族炭化水素類が高濃度の住宅と石油系暖房器具を使用した住宅が一部を除き一致し、さらに、これらの住宅では石油の揮発成分であるn-ノナン、n-デカン等が高濃度であったことから、石油系暖房器具の使用による脂肪族炭化水素類の発生等が TVOC 値に影響していると推察された。今回の調査では居住中の住宅が対象であったため、暖房器具の種類や使用時間、換気の時間、芳香剤・防虫剤の使用など居住者の居住状況による影響が非常に大きく、建材の種類や天井・壁・床材の種類という住宅自体からの発生原因を把握するのは困難であった。

表 4. 室内空气中、中央値の高い物質

単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

中央値が高い物質	室内(I)	主な用途	屋外(O)	I/O比
1 トルエン	22.3	接着剤や塗料の溶剤、石油など	11.5	1.9
2 ホルムアルデヒド	21.2	尿素樹脂等の接着剤など	2.0	11
3 キシレン*	11.3	接着剤や塗料の溶剤、石油など	3.4	3.4
4 p-ジクロロベンゼン	10.7	衣類の防虫剤、トイレの芳香剤など	0.96	11
5 アセトアルデヒド	10.7	接着剤、防腐剤など	2.2	4.9
6 アセトン	9.4	油性ラッカー、インキの溶剤、マニキュア除光液	0.21	45
7 リモネン	8.6	木質建材、消臭剤など	0.12	71
8 n-ノナン	6.5	溶剤、石油など	0.49	13
9 n-デカン	4.7	溶剤、石油など	0.65	7.2
10 エチルベンゼン	4.7	接着剤や塗料の溶剤、石油など	1.6	2.9
11 n-トリデカン	2.5	溶剤、石油など	0.22	12
12 n-ドデカン	2.5	溶剤、石油など	0.46	5.6
13 酢酸エチル	2.5	樹脂、インキ、香料など	0.05	51
14 1,2,4-トリメチルベンゼン	2.4	溶剤、塗料、染料など	1.5	1.6
15 n-オクタン	2.4	溶剤、石油など	0.21	12
16 n-ウンデカン	2.4	溶剤、石油など	0.53	4.5
17 酢酸ブチル	2.3	樹脂、インキ、香料など	0.12	19
18 n-ヘプタン	2.3	溶剤、石油など	0.57	4.0
19 ベンゼン	2.1	ガソリンの添加剤、その他の薬品の原料	1.8	1.1
20 メチルエチルケトン	2.0	ゴム・樹脂等の溶剤、塗装剤など	0.18	11

*o-, m-, p-キシレンの合計

表5. 定量結果 (VOCのカテゴリー別分類)

単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

対象住宅	H13年度調査							H14年度調査							
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N	O
芳香族炭化水素類	33.3	45.7	24.8	46.1	25.5	167.4	222.2	56.3	18.8	37.7	60.5	57.7	147.2	55.1	48.8
脂肪族炭化水素類	19.5	99.5	14.8	35.6	6.9	102.6	300.8	100.7	12.2	10.8	33.2	37.7	172.0	57.2	24.1
環状アルカン類	0.0	1.0	1.4	3.5	0.1	6.3	16.6	0.3	0.2	0.5	0.4	0.8	1.8	1.0	1.2
テルペン類	30.2	4.9	11.2	45.9	7.3	31.6	12.0	56.2	6.1	10.6	18.0	4.9	10.0	32.3	7.9
アルコール類	7.5	15.5	6.5	4.3	2.5	18.9	52.5	36.0	4.6	2.9	3.1	7.3	5.4	6.9	11.1
グリコール/グリコールエーテル類	0.9	0.7	0.0	0.5	0.0	9.5	2.8	2.2	0.0	0.0	1.5	0.0	0.0	0.0	0.0
ケトン類	7.1	4.2	14.7	6.6	15.0	49.9	23.0	12.9	8.5	4.8	4.9	17.2	13.9	17.2	20.6
ハロゲン化炭化水素類	9.4	11.3	139.4	2.7	3.0	84.7	26.3	5.3	2.7	58.4	13.6	7.2	3.3	15.5	213.1
エステル類	18.2	3.3	2.8	10.2	18.4	63.2	11.7	14.3	1.7	3.1	10.7	9.6	25.9	11.2	13.8
フタル酸類	2.2	0.6	0.0	0.0	0.8	0.0	0.0	0.5	0.1	0.3	0.3	0.3	0.0	0.4	0.2
その他	0.3	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.6	0.0	0.0	0.3	0.0	0.5	0.3	0.0
TVOC	129	187	216	155	80	534	668	285	55	129	146	143	380	197	341
築年数(ヶ月)	13	24	36	13	3	1	2	2	6	4	8	2	12	7	9
建材	木造戸建	木造戸建	木造戸建	木造戸建	木造戸建	木造戸建	木造戸建	木造戸建	木造戸建	鉄筋戸建	木造戸建	鉄筋集合	鉄筋戸建	木造戸建	鉄筋集合
暖房器具	エアコン	石油ストーブ	なし	電気ストーブ	エアコン	石油ファン	石油ファン	床暖房		エアコン	石油ファン	石油ファン	石油ファン	エアコン	
使用時間(分)	180	140	0	410	355	477	90			60		555	500	190	1120
換気	機械換気	自然換気	自然換気	自然換気	自然換気	機械換気	機械換気	自然換気	機械換気	自然換気	自然換気	機械換気	自然換気	自然換気	自然換気
床	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング	フローリング
壁紙	ビニルクロス	ビニルクロス	なし	紙	ビニルクロス	ビニルクロス	ビニルクロス	紙	紙	紙	ビニルクロス	ビニルクロス	ビニルクロス	その他	ビニルクロス
天井	ビニルクロス	ビニルクロス	木材	紙	ビニルクロス	木材		木材	木材	その他	ビニルクロス	ビニルクロス	ビニルクロス	その他	ビニルクロス

3・3 主要VOCの吸入暴露評価

Carrer らによると、人は1日の94%を室内で過ごし⁴⁾、我が国における調査では90%の時間を室内で行動すると報告されている⁵⁾。すなわち、人が気道経路で曝露される化学物質の大半は、室内の空気を通して吸入していることとなる。前述の報告による人の行動パターンを参考に、室内濃度指針値の設定されている物質を中心とした主要20物質について、15戸の調査住宅の室内空気中濃度および外気濃度の中央値を算出し、人が1日に吸入する空気量を 15m^3 と仮定した上で、1日の吸入曝露量を推定した。その吸入曝露量を外気曝露と室内曝露に分け、そのうちの室内曝露をさらに外気由来、室内由来に分類した結果を図3に示す。トルエンは室内空气中、中央値の最も高い物質であり、その中央値を用いて算出した1日吸入曝露量は $315\mu\text{g}/\text{day}$ と推測されたが、環境大気中にも比較的高濃度で検出されるため、吸入曝露量に対する室内由来分の寄与率は53%程度であった。同様に、キシレン、エチルベンゼン、1,2,4-トリメチルベンゼン等の芳香族炭化水素類は環境大気中にも存在することから、人の吸入曝露量に対する室内を発生源とする割合は48～66%を占めていた。これらの成分は溶剤等に

混合物として含有しているため、各成分間の相関が非常に高いという傾向があった。一方、*n*-ノナン、*n*-デカン、*n*-テトラデカン等の脂肪族炭化水素類は石油の揮発油成分であり、灯油そのものや塗料・接着剤等の溶剤の主要成分であるため、室内を発生源とする割合が高く、90%以上の寄与率であった。ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドの1日吸入曝露量はそれぞれ289、147 $\mu\text{g}/\text{day}$ であった。ホルムアルデヒドは合成樹脂の接着剤に使用される他、喫煙や石油・ガスの燃焼など人の生活に密接に関わっており、今回の調査で室内空気の寄与率は90%と、室内が主要な発生源であることが裏付けられた。その他、防虫剤や芳香剤として使用される*p*-ジクロロベンゼン、油性ラッカーやインキ等を使用されるアセトン、木質建材や芳香剤から発生するリモネン、樹脂・インキ等の酢酸エチルなどは100%近く室内を発生源としていた。特に、*p*-ジクロロベンゼンは調査住宅の室内空気中濃度の中央値から算出した1日吸入曝露量は146 $\mu\text{g}/\text{day}$ であったが、最大濃度の住宅での吸入曝露量は2864 $\mu\text{g}/\text{day}$ にも達していた。その他、ベンゼンについては、一部の住宅を除いて、外気濃度と室内空気中濃度は同程度であり、主要な発生源は環境中にあると確認された。

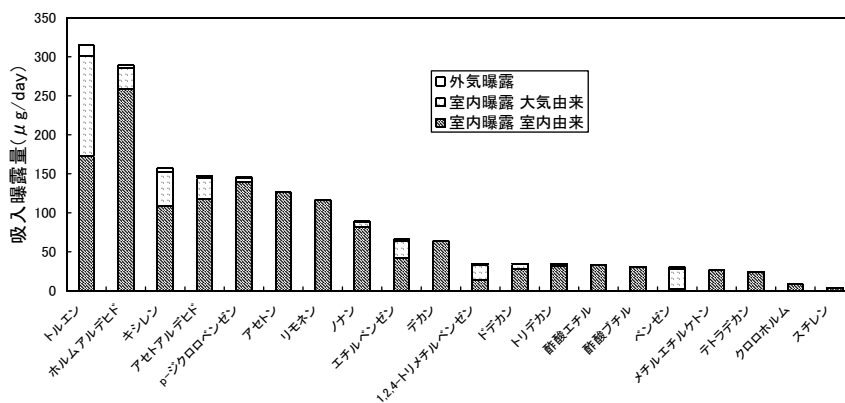


図3. 主要成分の1日吸入曝露量

4 まとめ

今回、室内空气中化学物質の測定は溶媒抽出法による調査を実施した。サンプリングは捕集管に強制的に試料空気を採気するアクティブ法と、ポンプ等を使用せず空气中に曝露するパッシブ法により行なった。その結果、アクティブ法に関しては環境大気調査でも使用される ORBO91L のみでは、室内空气中に高濃度で存在するテルペン類を定量できず、他の捕集管 (ORBO101) の併用が不可欠であることが判明した。また、パッシブ法については、同法によりハロゲン化炭化水素類やエステル類の空气中濃度を推測することは可能であり、パッシブ法の利点を生かし、多地点でのモニタリング等への使用も考えられる。

今回の調査では福岡県内 15 戸の新築居住住宅において、居住環境の TVOC の実態について調査した。その結果、調査全住宅で検出された物質は 32 成分で、芳香族炭化水素類、脂肪族炭化水素類で検出率が高かった。その他、防虫剤からの p-ジクロロベンゼン、木質建材や芳香剤を発生源とするリモネン、 α -ピネン等の室内特有の物質が高濃度で検出された。また、TVOC の暫定指針値 ($400 \mu\text{g}/\text{m}^3$) を超過した住宅は 2 戸の住宅であったが、これらの住宅は築 3 ヶ月以内の新築住宅であり、さらに、石油系の暖房器具を使用したことも影響していると推察される。

15 戸の調査住宅の調査結果を元に、主要 20 成分について、発生源の寄与率の推定を行った。トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類は室内を発生源とする割合は

48 ~ 66 % であり、環境大気からの寄与と同程度であると判明した。一方、室内空气中高濃度で検出された n-ノナン、n-デカン等の脂肪族炭化水素類は室内の寄与が 90 % 以上であり、その他、p-ジクロロベンゼン、リモネン、酢酸エチル、アセトン等は室内が発生源であると確認された。

本研究は国立医薬品食品衛生研究所の委託事業として、全国自治体の研究機関と共同で行なったものである。

文献

- 1) 厚生省：シックハウス(室内空気汚染)問題に関する検討会事務局(2000 年 12 月 15 日改訂)
- 2) 安藤正典, 他, 大気中多種化学物質曝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)
- 3) 安藤正典, 他, 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 623-646 (2002)
- 4) P.Carrer, M. Maroni, D.Alcini, D.Cavallo, S. Fustinoni, L.Lovato and F.Visigalli, Assessment through environmental and biological measurements of total daily exposure to volatile organic compounds of office workers in Milan, Italy. Indoor Air, 10, 258-268 (2000)
- 5) 塩津弥佳, 他, 生活時間調査による屋内滞在時間量と活動量 日本建築学会計画理論文集 511, 45-52 (1998)

A study of indoor air pollution by volatile organic compounds in Fukuoka prefecture

Hisao CHIKARA, Masao YANAGAWA, Kengo HAMAMURA, Okihiro OISHI, Shinji IWAMOTO
and Matayoshi NAKAMURA

*Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences,
Mukaizano 39, Dazaifu, Fukuoka 818-0135, Japan*

Determinations of total volatile organic compounds (TVOC) were performed in 15 newly-built houses to investigate the extent of indoor air pollution and confirm analytical methods by a few approaches. The active sampling method determined 116 kinds of volatile organic compounds (VOCs). Quantification of terpenes, however, required combined use of two kinds of trap tubes. The passive sampling method, on the other hand, was able to estimate concentration of halogenous hydrocarbons and esters in the indoor air. The results showed that the higher concentration of TVOC was found predominately in newly-built houses within 3 months, with a possible influence of burning kerosene heaters. Inhalation amount of major indoor air pollutants per day was also estimated.

[Key words; Indoor air pollutants, Sick-house syndrom, VOC, TVOC, Inhalation amount]

付表 室内および屋外空气中化学物質濃度－1

単位(μg/m³)

化学物質	室内空気(調査15戸)				屋外空気(調査15戸)	
	中央値	平均値	最大値	最小値	中央値	平均値
ベンゼン	2.1	4.3	32.9	0.9	1.9	1.8
トルエン	22.3	29.6	82.8	6.0	9.5	11.5
エチルベンゼン	4.7	6.5	22.7	1.3	1.6	1.6
m-キシレン	5.5	6.4	18.8	1.3	1.7	1.7
p-キシレン	2.2	2.6	7.8	0.5	0.8	0.7
o-キシレン	3.3	4.1	12.3	0.7	0.8	0.9
イソプロピルベンゼン	0.3	0.5	2.3	N.D.	N.D.	N.D.
n-プロピルベンゼン	0.6	1.1	5.1	N.D.	0.2	0.2
1,2,4-トリメチルベンゼン	2.4	6.2	30.5	1.0	1.4	1.5
1,3,5-トリメチルベンゼン	0.7	1.9	8.7	0.3	0.4	0.4
1,2,3-トリメチルベンゼン	1.2	2.8	13.1	0.4	0.4	0.4
1,2,4,5-テトラメチルベンゼン	N.D.	0.1	0.9	N.D.	N.D.	N.D.
1-メチル-3-プロピルベンゼン	0.4	0.7	3.0	N.D.	N.D.	0.1
n-ブチルベンゼン	N.D.	0.3	1.2	N.D.	N.D.	N.D.
1,3-ジイソプロピルベンゼン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
1,4-ジイソプロピルベンゼン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
エチルベンゼン	N.D.	N.D.	0.2	N.D.	N.D.	N.D.
p-メチルスチレン	N.D.	N.D.	0.3	N.D.	N.D.	N.D.
α-メチルスチレン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
2-エチルトルエン	1.1	1.9	9.6	0.2	0.3	0.3
スチレン	0.3	0.5	2.0	N.D.	N.D.	N.D.
ナフタレン	0.2	0.3	1.4	N.D.	N.D.	N.D.
4-フェニルシクロヘキセン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
2-メチルヘキサン	0.9	1.2	7.5	N.D.	0.4	0.6
3-メチルヘキサン	1.0	1.3	8.4	N.D.	0.4	0.6
n-ヘプタン	2.3	4.1	17.1	N.D.	0.4	0.6
n-オクタン	2.4	5.0	27.4	0.2	0.2	0.2
n-ノナン	6.5	11.7	62.5	0.4	0.5	0.5
2-メチルオクタン	1.9	2.4	10.9	N.D.	N.D.	N.D.
3-メチルオクタン	1.6	2.4	12.3	N.D.	0.1	0.2
2-メチルノナン	0.5	1.7	8.5	N.D.	N.D.	N.D.
3,5-ジメチルオクタン	0.2	0.7	3.8	N.D.	N.D.	N.D.
n-デカン	4.7	11.3	54.0	N.D.	N.D.	0.7
n-ウンデカン	2.4	7.0	33.8	0.6	0.4	0.5
n-ドデカン	2.5	7.1	29.7	0.6	0.4	0.5
n-トリデカン	2.5	6.0	39.0	0.3	0.2	0.2
n-テトラデカン	1.8	3.3	18.0	1.2	N.D.	N.D.
n-ペンタデカン	0.4	0.5	1.0	N.D.	N.D.	N.D.
n-ヘキサデカン	0.3	0.3	0.6	N.D.	N.D.	N.D.
2-メチルペンタン	1.3	1.8	10.2	N.D.	0.9	1.2
1-オクテン	0.6	0.6	3.2	N.D.	N.D.	N.D.
1-デセン	N.D.	N.D.	0.5	N.D.	N.D.	N.D.
2,4-ジメチルペンタン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
2,2,4-トリメチルペンタン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
メチルシクロペンタン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
シクロヘキサン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
c-1メチル-4メチルエチルシクロヘキサン	N.D.	N.D.	0.2	N.D.	N.D.	N.D.
t-1メチル-4メチルエチルシクロヘキサン	N.D.	0.1	0.9	N.D.	N.D.	N.D.
メチルシクロヘキサン	0.5	1.1	5.8	N.D.	N.D.	0.2
3-カレン	0.4	1.4	5.5	N.D.	N.D.	N.D.
α-ピネン	1.8	2.7	8.1	0.4	N.D.	0.5
(+/-)-キャンファー	N.D.	0.1	0.3	N.D.	N.D.	N.D.
β-ピネン	0.3	0.3	0.6	N.D.	N.D.	N.D.
リモネン	8.6	14.8	45.7	2.9	N.D.	N.D.
カンファー	N.D.	0.5	3.6	N.D.	N.D.	N.D.
メンソール	N.D.	0.4	1.4	N.D.	N.D.	N.D.

付表 室内および屋外空气中化学物質濃度－2

単位(μg/m³)

化学物質	室内空気(調査15戸)				屋外空気(調査15戸)	
	中央値	平均値	最大値	最小値	中央値	平均値
1-プロパノール	N.D.	N.D.	1.3	N.D.	N.D.	N.D.
2-プロパノール	1.3	2.7	8.8	N.D.	N.D.	N.D.
2-メチル-2-プロパノール	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
2-メチル-1-プロパノール	N.D.	3.4	37.8	N.D.	N.D.	N.D.
1-ブタノール	1.7	4.0	26.8	0.8	N.D.	N.D.
1-ペンタノール	N.D.	0.4	2.0	N.D.	N.D.	N.D.
1-ヘキサノール	N.D.	N.D.	0.4	N.D.	N.D.	N.D.
シクロヘキサノール	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
1-オクタノール	N.D.	N.D.	0.4	N.D.	N.D.	N.D.
2-エチル-1-ヘキサノール	0.4	0.4	0.9	N.D.	N.D.	N.D.
フェノール	N.D.	N.D.	0.3	N.D.	N.D.	N.D.
テキサノール	0.3	1.1	8.7	N.D.	N.D.	N.D.
2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
メチル-tert-ブチルエーテル	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
エタノール	143.0	130.4	346.2	3.7	N.D.	N.D.
プロピレングリコール	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
ジメキシメタン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
ジメキシエタン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
2-メトキシエタノール	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
2-エトキシエタノール	N.D.	N.D.	2.1	N.D.	N.D.	N.D.
2-ブトキシエタノール	N.D.	N.D.	6.8	N.D.	N.D.	N.D.
1-メトキシ-2-プロパノール	N.D.	N.D.	1.0	N.D.	N.D.	N.D.
2-ブトキシエトキシエタノール	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
2-(2-エトキシエトキシ)エタノール	N.D.	N.D.	0.5	N.D.	N.D.	N.D.
アセトン	9.4	10.9	37.7	2.5	N.D.	N.D.
3-メチル-2-ブタノン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
メチルエチルケトン	2.0	2.5	7.6	0.8	N.D.	N.D.
メチルイソブチルケトン	N.D.	1.3	4.6	N.D.	N.D.	N.D.
アセトフェノン	N.D.	0.1	0.3	N.D.	N.D.	N.D.
ジクロロメタン	0.9	1.6	7.6	0.3	0.9	1.0
四塩化炭素	N.D.	0.1	0.4	N.D.	0.2	0.1
1,2-ジクロロメタン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
トリクロロエチレン	N.D.	0.1	1.0	N.D.	N.D.	0.1
テトラクロロエチレン	N.D.	0.6	7.9	N.D.	N.D.	0.5
1,1,1-トリクロロエタン	N.D.	N.D.	0.3	N.D.	N.D.	N.D.
1,4-ジクロロベンゼン	10.7	36.9	211.6	0.4	0.5	1.0
1,2-ジクロロプロパン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
クロロジブロモメタン	N.D.	N.D.	0.7	N.D.	N.D.	N.D.
クロロホルム	0.6	0.7	2.3	N.D.	N.D.	0.1
酢酸メチル	1.4	2.5	6.6	0.7	N.D.	N.D.
酢酸ビニル	N.D.	2.8	21.0	N.D.	N.D.	N.D.
ギ酸ブチル	N.D.	N.D.	1.3	N.D.	N.D.	N.D.
ギ酸イソブチル	N.D.	0.7	2.7	N.D.	N.D.	N.D.
酢酸エチル	2.5	5.5	45.5	N.D.	N.D.	N.D.
酢酸プロピル	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
酢酸ブチル	2.3	5.6	37.3	N.D.	N.D.	N.D.
酢酸イソプロピル	N.D.	N.D.	0.8	N.D.	N.D.	N.D.
2-メトキシエチルアセテート	N.D.	N.D.	0.4	N.D.	N.D.	N.D.
2-エトキシエチルアセテート	N.D.	N.D.	3.5	N.D.	N.D.	N.D.
2-エチルヘキシルアセテート	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
メタクリル酸メチルエステル	0.3	0.5	1.6	N.D.	N.D.	N.D.
TXIB	0.1	3.0	15.6	N.D.	N.D.	N.D.
フタル酸ジメチル	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
フタル酸ジブチル	0.3	0.4	2.2	N.D.	N.D.	0.1
1,4-ジオキサン	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
カプロラクタム	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
THF	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.