

室内環境における揮発性有機化合物濃度の測定*

山口県環境保健研究センター

洲村 弘志・長田健太郎・松田 義彦
藤原美智子・松岡 幸恵・熊谷 洋
北山 光正**

Determination of Volatile Organic Compounds Concentration in Indoor Environment

Hiroshi SUMURA, Kentaro OSADA, Yoshihiko MATSUDA
Michiko FUJIWARA, Sachie MATSUOKA, Hiroshi KUMAGAI,
Mitsumasa KITAYAMA**

Yamaguchi Prefectural Research Institute of Public Health

はじめに

室内環境に起因する健康被害であるシックハウス症候群は、建築材料や家庭用品から発生する揮発性有機化合物 (VOCs) が大きく関与していると言われている¹⁻⁶⁾。

しかし、①VOCsの種類が数百以上あり、発生源も多岐にわたること、②健康被害に個人差があること、③住宅事情、生活パターン、気候 (温度、湿度、風など) 等の因子が複雑に影響を及ぼすこと、などの理由で全体像が掴みにくく、その実態はほとんど解明されていないのが現状である。

そこで厚生労働省 (旧厚生省) では、その対策の一環として1995年度から室内環境中のVOCs濃度調査を全国的に行っている。これまでにその結果を受けて、ホルムアルデヒドなどの室内濃度指針値が策定され、同時に試料採取、分析方法なども公表された^{7, 8)}。

このような状況において我々は、山口県内の住宅の室内環境VOCs濃度の実態を把握することを目的に種々の調査を実施した。その結果、VOCs濃度レベルが確認でき、いくつかの知見も得られたので今回報告する。

調査方法

1 採取時期

- (1) 冬季: 1998年11月末, 1999年1月, 2月
- (2) 夏季: 1999年7月, 8月
- (3) 秋季: 2000年10月

2 対象とした室内環境

今回対象とした室内環境を以下に示す。住宅によっては数回採取を行ったが、築年数は最初の採取を行った時期のものである。また、これらの環境で生活する人の中に特別な健康被害を訴える人はいなかった。

- (1) 住宅ア: 築11年 木造2階1戸建
2階居間 (約60㎡の畳+フローリング)
- (2) 住宅イ: 築5年 鉄筋2階建集合住宅
2階LDK (約20㎡のフローリング)
- (3) 住宅ウ: 築3ヵ月 木造2階1戸建
1階LDK (約30㎡のフローリング)
- (4) 住宅エ: 築5ヵ月 木造1階1戸建
1階居間 (約21㎡のフローリング)
- (5) 住宅オ: 築19年 木造2階1戸建
1階の和室 (約20㎡の畳)

3 採取方法

(1) 採取位置

採取は部屋の中央で行ったが、状況により困難な場合は、壁からできるだけ離れた位置とした。採取の高さは1~1.2mとした。

(2) ホルムアルデヒドの採取

捕集管はWatersのSep-pak DNPHカートリッジ (shortbody) を1連または2連で使用し、前段にオゾンスクラバーを接続した。ポンプはGASTECのGSP-250FTを使用し、捕集管をシリコンチューブで取り付け、100~200mL/分で所定時間吸引し

* 本報告の要旨は、平成11年度全国公害研協議会中国・四国支部第26回大気部会 (1999年10月, 山口市) 及び平成13年度大気環境学会中国支部研究発表会 (2001年5月, 山口市) において発表した。

** 防府健康福祉センター: 防府市駅南町14-28

た。また、電気化学計器のAUTOMATIC GAS SAMPLER MODEL AG-3を用いて、1時間毎のサンプリングを500mL/分の吸引量で24時間連続して行った。採取中は捕集管をアルミホイルで遮光した。また採取時には、必ずトラベルブランク試験を行った。

(3) その他のVOCs類の採取

捕集管は柴田科学のチャコールチューブ単層型及びSUPELCOのORBO91を用いた。

その他の採取条件は、(2)ホルムアルデヒドの採取と同様に行った。

(4) 捕集管保存方法

採取終了後、それぞれの捕集管の両端にフタをして、アルミホイルで遮光し、活性炭入りのタイトボックスで冷凍保存した。

4 分析方法

(1) ホルムアルデヒド

捕集管からアセトニトリル5mLでゆっくりとDNPH誘導体を溶出し、5mLにメスアップしてサンプルとした。分析はHPLC(東ソー 8020シリーズ)で行った。分析条件を表1に示す。定量はピーク面積による検量線法で行った。

表1 HPLC分析条件

カラム	TSKgel ODS-80Ts 粒径 5 μ m 4.6mm \times 250mm
移動相	アセトニトリル:水=60:40
流量	1ml/分
試料注入量	20 μ L
カラム温度	40 $^{\circ}$ C
検出器	UV360nm

(2) その他のVOCs類

二硫化炭素1mLを入れたバイアル瓶に、捕集管から活性炭を取り出して入れ、軽く振り混ぜた。2時間静置した後に内部標準物質トルエン-d₈の1000 μ g/mL二硫化炭素溶液を5 μ L加えた。均一に振り混ぜた後、別のバイアル瓶に上澄み溶液を取り出してサンプルとした。分析はGC/MS(HP 5890-II/5971)で行った。分析条件を表2に、対象としたその他のVOCs類を表3に示す。表3のVOCs以外にも約30種の定量を試みたが、定量下限値以下が多く、また類似の傾向を示した物質群については代表的なVOCsを取り上げたために、今回の検討対象は10種となった。定量は内部標準物質とのピーク面積比による検量線法で行った。

表2 GC/MS分析条件

カラム	DB-1 膜厚1 μ m 0.25mm \times 60m
カラム温度	40 $^{\circ}$ C \times 5分 \rightarrow 10 $^{\circ}$ C/分 \rightarrow 300 $^{\circ}$ C \times 3分
カラムヘッド圧	14.5psi
キャリアガス	He
試料注入法	スプリット (スプリット比1:10)
試料注入量	1 μ L
注入口温度	250 $^{\circ}$ C
イオン源温度	220 $^{\circ}$ C
検出法	SIM

表3 対象としたその他のVOCs類10種

脂肪族炭化水素 (5種)	ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、トリデカン
芳香族炭化水素 (1種)	トルエン
ハロゲン炭化水素 (2種)	トリクロロエチレン、p-ジクロロベンゼン
テルペン類 (2種)	α -ピネン、リモネン

結果と考察

1 冬季及び夏季の室内VOCs濃度の特徴

室内のVOCs汚染は、季節によって差があると考えられる。そこで、冬季及び夏季の室内VOCs濃度について調査を行った。

まず図1に住宅Aで冬季に採取した1時間毎のホルムアルデヒド濃度と室温変化を示す。室温の高い時間帯は濃度が高く、逆に室温の低い時間帯は濃度が低下した。これは、室内に発生源が存在し、室温の変動により揮発量が変化したためと考えられる^{9,10}。

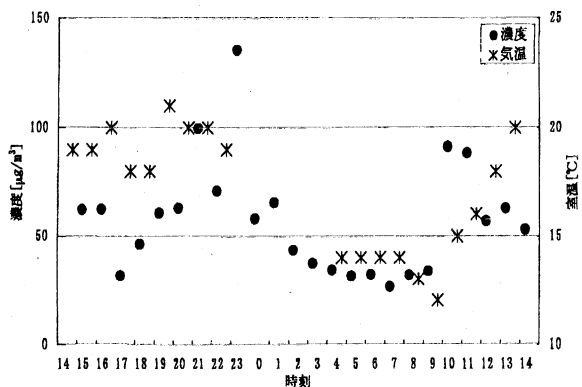


図1 冬季におけるホルムアルデヒド濃度と室温の経時変化(住宅A)

また図2は、夏季に採取した同様の結果であるが、室温が変化していないために、濃度変化もあまり見られ

なかった。

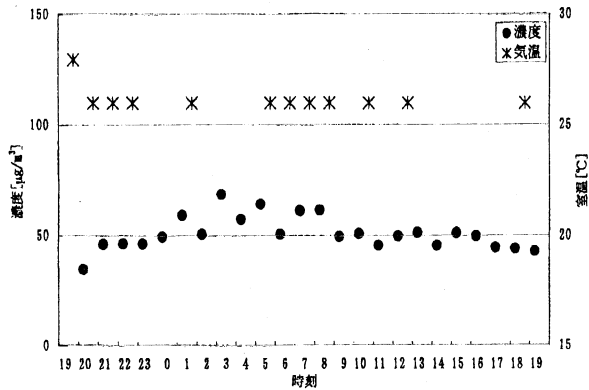


図2 夏季におけるホルムアルデヒド濃度と室温の経時変化 (住宅ア)

次に図3に住宅アで冬季に採取した1時間毎のデカン、トルエンの濃度変化と、部屋の状況を示す。ファンヒーターを使用することにより、デカンやトルエンなどの濃度が上昇している。これは、図1に示したような室温の上昇による室内発生源からの揮発量の増加以外に、ファンヒーターなど燃焼型の暖房器具が脂肪族炭化水素、芳香族炭化水素、ホルムアルデヒド等の発生源になるためと考えられる¹¹⁻¹⁴⁾。暖房器具使用時には部屋を閉め切るため、この結果のようにVOCs濃度は徐々に上昇するが、一方で22時頃に窓を開けるとVOCs濃度は低下しており、換気が室内VOCs濃度の低減化に有効な方法であることも確認できた^{10, 14)}。

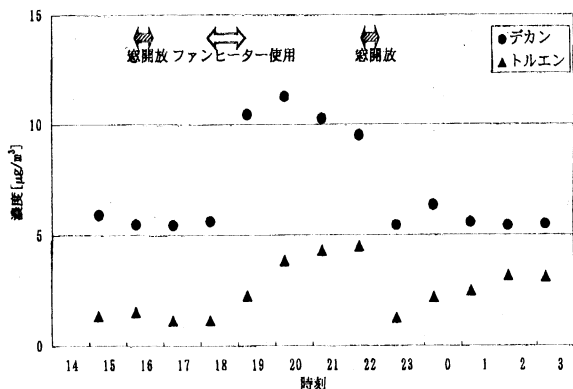


図3 冬季におけるデカン、トルエン濃度の経時変化と部屋の状況 (住宅ア)

次に図4に住宅アで夏季に採取した1時間毎のトルエン、 α -ピネンの濃度変化と、部屋の状況を示す。この図から、クーラーを使用している時間にトルエンや α -ピネンなどの濃度が上昇することがわかる。これは、クーラーの風で室内発生源からの揮発が促進され、部屋を閉め切っているために徐々にVOCsが蓄積

されたことが原因と考えられる¹⁰⁾。

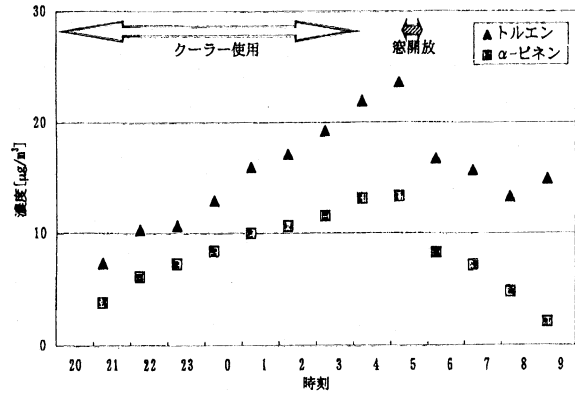


図4 夏季におけるトルエン、 α -ピネン濃度の経時変化と部屋の状況 (住宅ア)

以上のように、室内VOCs濃度は室温と密接な関係があり、部屋を閉め切ることによって、濃度は上昇することがわかった。特に冬季は燃焼型の暖房器具が発生源になるため、注意が必要である。

2 室内VOCs濃度の季節変動及び経年変動

冬季及び夏季と同様に、秋季も調査を行った。図5は住宅イで採取したVOCsの24時間濃度について季節による比較を行ったものである。この図に示した物質を含むほとんどのVOCsで、秋季の濃度が冬季に比べ低い値であった。これは、換気時間の差が大きな要因と考えられる。

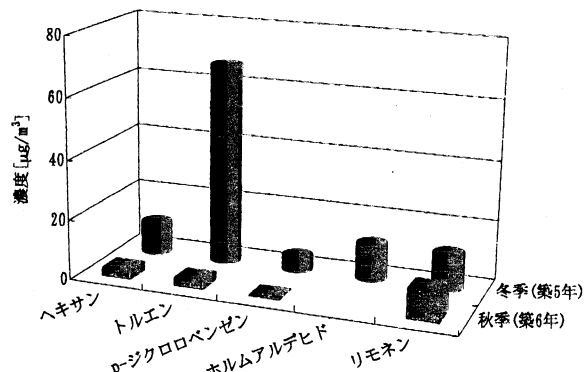


図5 VOCs24時間濃度の季節変動 (住宅イ)

同様に図6は、住宅アで採取したVOCsの24時間濃度について季節による比較を行ったものである。図5と同様に秋季のVOCs濃度が低い傾向を示したが、p-ジクロロベンゼンのみが例外であった。これは、p-ジクロロベンゼンが衣服の防虫剤に用いられるためと考えられ、秋季や春季の衣替えの季節に行う防虫剤の交換が影響したのではないかと考えられる。

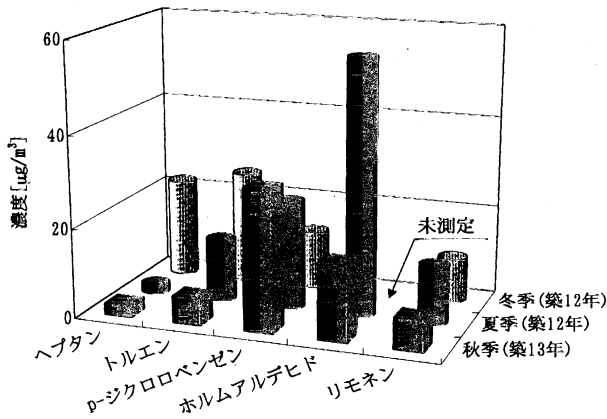


図6 VOCs24時間濃度の季節変動 (住宅ア)

次に、新築住宅の室内VOCs濃度について、新築時と2年後に採取を行い、経年変動を追跡してみた。図7に住宅ウで採取したVOCsの24時間濃度の比較を示す。

まず築3カ月後の冬季に1週間の間隔で2回の採取を行ってみたが、p-ジクロロベンゼンのように100 µg/m以上も濃度差が見られるVOCsがあった。これは、ドアや窓の開け閉めなどの換気時間や暖房器具の使用状況などの生活パターンの違いが影響したものと考えられる¹⁵⁾。一方、2年後の秋季にはVOCs濃度はかなり低下していた。これは、室内発生源に含まれるVOCs量が時間の経過により減少したことを示唆している。

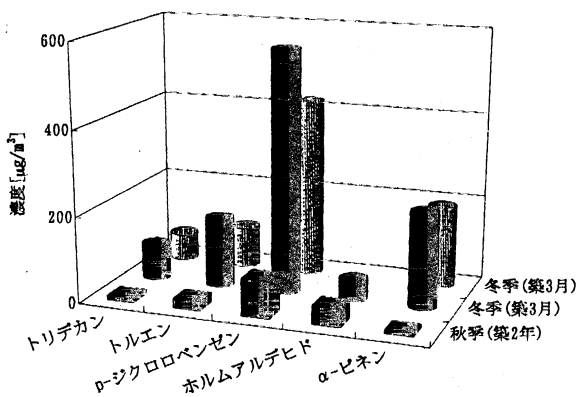


図7 VOCs24時間濃度の季節変動 (住宅ウ)

3 新築住宅における室内VOCs濃度の特徴

一般的に新築住宅は室内VOCs濃度が高く、健康被害が生じる可能性が高いと考えられる。そこで、新築住宅における室内VOCs濃度について、さらに検討を行ってみた。

表4に新築住宅2軒で採取したVOCsの24時間濃度を示す。住宅ウでは2回の測定ともに高濃度であるVOCsが多く見られたが、住宅エではエタノールを除いて低濃度であった。これは、住宅ウの採取が冬季で

あったために部屋を閉め切った状態が長かったこと、一方住宅エの採取が秋季であったために窓の開放による換気が長時間なされていたこと、また住宅エでは新築直後に夏を迎えたために発生源からの揮発が十分行われ、VOCs量が減少したこと、などの要因が影響したものと考えられる。住宅ウでは、畳やタンスの防虫剤に使用されるp-ジクロロベンゼン、木材や脱臭剤から発生するα-ピネン、床用ワックスや接着剤の溶剤に使用されるトルエンが高濃度であり、すべて新築特有の現象と考えられる。一方住宅エのエタノールは、料理用や飲用のアルコールが発生源で、新築特有の現象ではないと思われる。

4 室内VOCs濃度低減化の方法

図3でも示したように、換気はVOCs濃度低減に有効である。そこで、換気の方法について簡単な検討を行った。図8に住宅オで夏季に採取したVOCsの1時間濃度と、部屋の窓の開閉状況について示す。両側の窓を閉めて採取したVOCs濃度を100%とした場合の濃度割合を、片側の窓を開けた場合と両側の窓を開けた場合と比較すると、すべてのVOCsについて両側の窓を開けた場合の方が割合が低くなった。この結果から、2つの窓を開けて風の流れを作ることで、より効率的な換気になることが示唆された。逆に、外気が工場や自動車の排ガスなどで汚れている地域では、片側の窓を開けただけでは、室内が汚染される可能性も考えられ、注意が必要である。

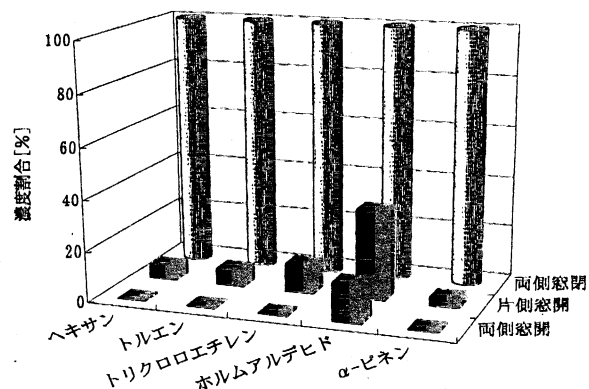


図8 VOCs1時間濃度に及ぼす窓の開閉状況の影響 (住宅オ)

また、室内VOCs濃度の発生を抑制する方法として以下のような事例が見られた。図9は住宅ウで冬期に採取したVOCsの1時間毎の濃度変化と、部屋の状況である。オクタン、トルエン、ホルムアルデヒドの濃度は、図3で示したようにファンヒーターの使用で上昇すると考えられたが、この結果からはその傾向が見られ

表4 新築住宅における VOCs24時間濃度の比較

VOCs名	住宅ウ (冬季)	住宅エ (秋季)
ヘキサン	2.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	5.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
デカン	15	34
トリデカン	63	82
トルエン	94	160
キシレン	15	23
トリクロロエチレン	1.6	1.8
p-ジクロロベンゼン	420	570
酢酸エチル	6.1	5.5
エタノール	未測定	未測定
ホルムアルデヒド	未測定	110
α -ピネン	190	220
リモネン	50	19

なかった。この原因について調べてみると、このファンヒーターの温風出口に VOCs 等を吸着するフィルターがついていることがわかった。その効果のために、ファンヒーターが発生源となる VOCs の濃度が上昇しなかったものと推察された。一方 α -ピネンや p-ジクロロベンゼンは、ファンヒーターの使用により室温が上がり、他の室内発生源から揮発したために濃度が上昇したものと考えられる。

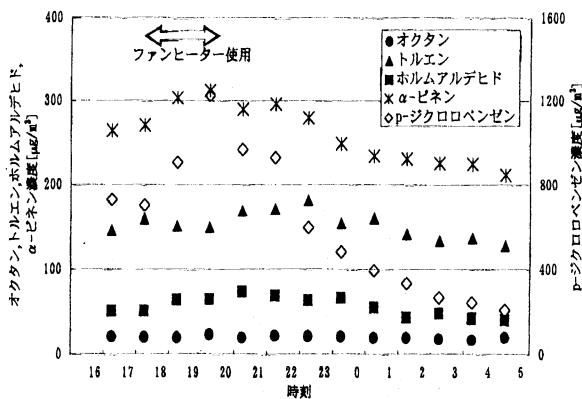


図9 冬季における VOCs 濃度の経時変化と部屋の状況 (住宅ウ)

まとめ

山口県内の住宅の室内環境について VOCs 濃度を測定したところ、以下の知見を得た。

- 1 室内に VOCs 発生源がある場合、室温の変化に合わせて VOCs 濃度が変動した。
- 2 冬季及び夏季は、室内を閉め切る時間が長くなるために、徐々に VOCs 濃度が上昇する傾向を示した。
- 3 ファンヒーターなど燃焼型の暖房器具は、脂肪族炭化水素、芳香族炭化水素、ホルムアルデヒドなどの発生

源となった。しかし暖房器具の中には、有害物質を除去するフィルターなどの装置が取り付けられているものもあり、この有効性が確認できた。

- 4 秋季は、窓を開ける時間が長いために室内の VOCs 濃度は低い値を示すが、衣替えの影響で、防虫剤に含まれる p-ジクロロベンゼンの濃度が高くなる例が見られた。
- 5 新築直後の住宅は、VOCs 濃度が高いが、数カ月から数年経過すると濃度は減少した。特に室温が高くなる夏を過ぎると揮発量はピークを超え、室内発生源に含まれる VOCs 量が減少するために、それ以降の VOCs 濃度は低い値となった。
- 6 換気は、室内の VOCs 濃度を低減化する有効な方法であるが、2つの窓を開けて風の流れを作ると、より効率的であることがわかった。

参考文献

- 1) 松村年郎：大気環境学会誌 31 (6) A154~A164 (1996)
- 2) 安藤正典：資源環境対策 33 (8) 737~744 (1997)
- 3) 松木秀明：大気環境学会誌 33 (2) A19~A30 (1998)
- 4) 池田耕一：生活と環境 43 (5) 24~34 (1998)
- 5) 小峯裕己：臭気の研究 30 (1) 1~14 (1999)
- 6) 花井義道：環境技術 28 (3) 161~166 (1999)
- 7) 平成12年6月30日付 生衛発第1093号
厚生省生活衛生局長通知
- 8) 平成12年12月22日付 生衛発第1852号
厚生省生活衛生局長通知
- 9) 松村年郎ほか：第39回大気環境学会年会要旨集 446 (1998)

- 10) 宮崎竹二ほか：全国公害研会誌 23 (3) 33~41
(1998)
- 11) 松村年郎ほか：第39回大気環境学会年会要旨集
447 (1998)
- 12) 徳原賢ほか：環境化学 7 (7) 809~819 (1997)
- 13) 平田武志：生活と環境 45 (2) 80~84 (2000)
- 14) 赤松哲也ほか：第9回環境化学討論会要旨集
550~551 (2000)
- 15) 鄭境岩ほか：環境化学 10 (4) 807~815 (2000)