

シヨートノート

新築住宅の室内ホルムアルデヒドおよび揮発性有機化合物濃度の経時変化

原 邦夫¹, 伊藤昭好¹, 原田幸一², 宮北隆志², 魏 長年², 上田 厚²

[受付 2000.1.31] [受理 2000.10.11]

Time Series of Indoor Concentrations of Formaldehyde and Volatile Organic Compounds in a newly-built Brick House.

Kunio HARA¹, Akiyoshi ITO¹, Koichi HARADA², Takashi MIYAKITA²Chang-Nian Wei² and Atsushi UEDA²

[Received Jan 31, 2000] [Accepted Oct 11, 2000]

要 旨

新築住宅の内装材（壁材，天井材，床材，および接着剤など）や家具類から発生するホルムアルデヒドおよび揮発性有機化合物（VOCs）によるヒトへの健康影響が心配されている。本研究の目的は，新築住宅を対象として内装材・家具類から放散されるホルムアルデヒドおよび VOCs 室内濃度を経時的に測定し，新築時の室内のホルムアルデヒドおよび VOCs に対する対策について考える際の基礎的データを収集すること，およびスポットサンプリング・分析方法（VOCs：TenaxTA-GC/MS法，ホルムアルデヒド：XPOsure-HPLC）と光音響式マルチガスモニタによる測定方法を比較することである。対象とした新築住宅は，空気循環式の煉瓦造住宅で，強制的なベイクアウトはおこなわなかった。外壁材は煉瓦，内部の基礎部分および接着剤はホルムアルデヒドを含有しない物を使用した。壁材，天井材および床材の内装材は市販の通常の物が使用された。調査は1998年6月から12月まで行った。スポットサンプリング・分析方法による結果は内装工事終了時点でホルムアルデヒド濃度が $0.171 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.141ppm)，トータル VOCs（トルエン換算濃度）濃度が $5,830 \mu\text{g}/\text{m}^3$ に上昇することを示した。その後，ホルムアルデヒドおよびトータル VOCs 濃度は内装工事終了後の5ヶ月でほぼ以前の室内濃度レベルに低減した。窓を開閉し室内のホルムアルデヒドおよびトータル VOCs 濃度を24時間連続測定することでも，内装工事終了の2ヶ月後においてもホルムアルデヒドおよび VOCs の発生が認められた。また，スポットサンプリング・分析方法とマルチガスモニタによるホルムアルデヒドおよびトータル VOCs 濃度測定値の間に統計的に有意な相関関係が確認された。

Abstract

Formaldehyde and volatile organic compounds (VOCs), which emit from building materials (such as wall materials, ceiling materials, floor materials and adhesive agents) in houses or buildings, are suspected to be toxic to humans. The objectives of our study are to collect time series data of the indoor concentrations of formaldehyde and VOCs in a newly-built brick house and to compare the spot sampling and analytical methods (VOCs: TenaxTA-GC/MS; formaldehyde: XPOsure-HPLC) and a multi-gas-monitor method. Our newly-built house has a natural air circulation system with a brick exterior surface, and was not treated with bake-out. The basic structural building materials and adhesive agents used in the house contain no formaldehyde. However, the materials that are typically available on the market were used for the walls (10 items), ceilings (10 items) and the floors (2 items). The survey of indoor air quality was conducted from June 1998 until December 1998. The results obtained in the spot sampling and analytical methods showed that the concentrations of indoor formaldehyde and total-VOCs (the values converted to toluene-equivalent concentration) reached $0.171 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.141 ppm) and $5,830 \mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively, right after the interior wood finishing work was done. The concentrations of both formaldehyde and VOCs decreased with time approximately to the initial level in five months after the finishing woodwork. Two months after the finishing woodwork was done, the indoor formaldehyde and total-VOCs concentrations were monitored for 24 hours with a closed condition following a ventilation with windows and doors opened. The 24-hour monitoring data confirmed that formaldehyde and VOCs were still emitted from the interior surface. The statistically significant positive correlation was examined between the values of formaldehyde and total-VOCs obtained by the spot sampling and analytical methods and those by the multi-gas-monitor.

Key words: VOCs, formaldehyde, indoor air, brick veneer house.

-
- 1 (財) 労働科学研究所・研究部 〒216-8501 神奈川県川崎市宮前区菅生2-8-14
Research Department, Institute for Science of Labour, 2-8-14 Sugao, Miyamae-ku, Kawasaki City, Kanagawa 216-8501, Japan
- 2 熊本大学医学部衛生学講座 〒860-0811 熊本県熊本市本荘2-2-1
Department of Hygiene, Kumamoto University, School of Medicine, 2-2-1 Honjo, Kumamoto City, Kumamoto 860-0811, Japan

1. はじめに

近年、シックビル症候群¹⁾や化学物質過敏症²⁾を訴える者が増加する傾向が見られ、それらの症状についての原因究明が求められている。しかし、原因物質が必ずしも特定されていないのが実状である。一般家庭内の空気には様々な物質が含まれている³⁾が、特に新築時には、新しい壁や床およびそれらの接着剤あるいは新しい家具類から放散した有機性の様々な物質が含まれている。近年、ヒトへ何らかの健康影響を及ぼしている物質として、ホルムアルデヒド、様々な揮発性有機化合物 (Volatile organic compounds : VOCs)、あるいは防蟻剤、殺虫剤などが注目され始めている⁴⁾。

これまで、室内の空気中のホルムアルデヒドの濃度測定が行われ、その高濃度を危惧する報告がなされている⁵⁾。また、室内のホルムアルデヒドや VOCs 対策として、壁材あるいは床材などにホルムアルデヒドや VOCs を極力抑えた材質を使用する、あるいは新築ビル内では壁材や床材あるいはそれらの接着剤に対するベイクアウトの事後措置をとる、などが行われている⁶⁾。しかし、空気循環式の住宅を対象として、ヒトが居住せずヒトの生活活動の影響を抑えた条件下で、内装工事が終了し新規の家具類が搬入された後のホルムアルデヒドおよび VOCs が経時的にどの様に変化するかについて報告した例は少ない。

本研究では、外壁に煉瓦、またホルムアルデヒドを

含まない内部の基礎部分および接着剤を用いた新築煉瓦造住宅を対象として、市販されている通常の壁材、天井材および床材および家具類から放散されるホルムアルデヒドおよび VOCs (特に、トルエン、キシレン、ベンゼンおよびトータル VOCs) 室内濃度を経時的に測定した。本研究の目的は、新築時の室内のホルムアルデヒドおよび VOCs に対する対策について考える際の基礎的データを収集することである。また、本研究では、ホルムアルデヒドおよびトータル VOCs を測定するに際し、スポット的な測定方法である個体捕集・機器分析法と、連続測定が可能な光音響ガスモニタを用いた測定方法の2種類の方法を実施し、両者の比較も目的とした。

2. 方法

2.1 測定対象とした煉瓦造住宅

測定対象とした新築の煉瓦造住宅は、道路近辺に位置するが、都市にみられる一般環境中の空気汚染の影響はほとんど考える必要はない郊外に建てられたものである。この煉瓦造住宅は、オーストラリア製のキットを使用したオーストラリア輸入の注文住宅で、ベッドルーム3部屋、キッチン、ダイニング、居間、およびラウンジからなる平屋の洋風の建築物である (Fig. 1)。延床面積は223.06 m²、寝室の広さは全て18.05 m²である。外壁を煉瓦で、内部の基礎部分および接

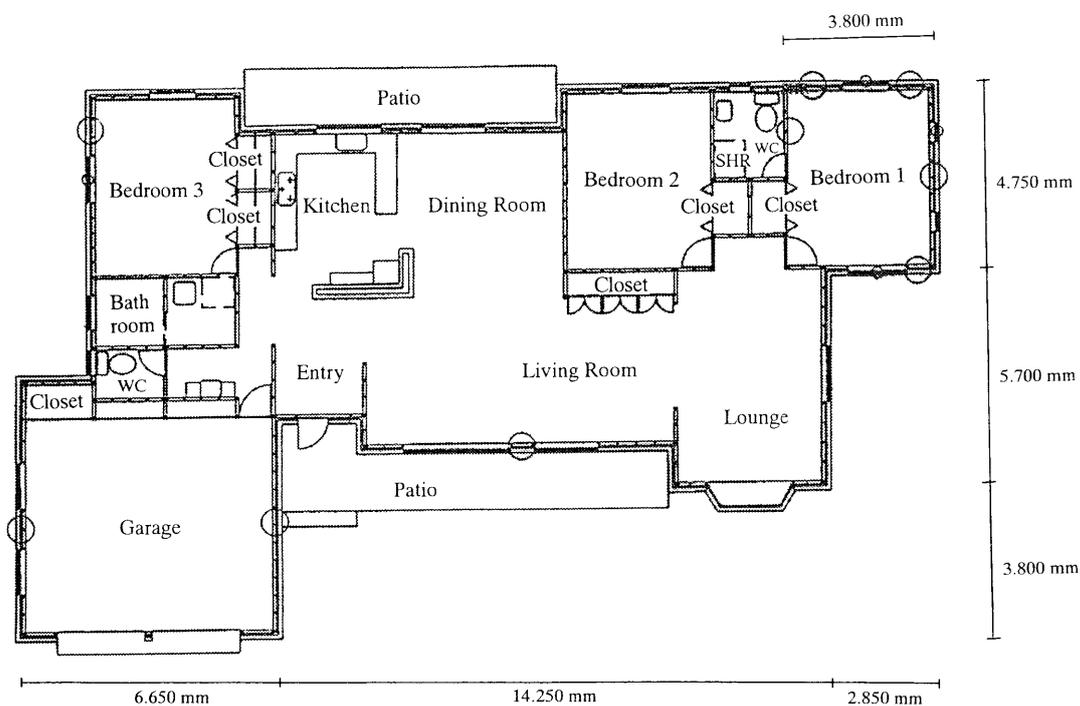


Fig.1. The floor plan of the newly-built brick house (SHR: Shower room).

着剤（2種類の接着剤の主要成分は、（1）澱粉・酢酸ビニルエマルジョン・水、（2）アクリルラテックス・粘着樹脂）は、ホルムアルデヒドを含まない材質のものである。しかし、内装の10種類の壁材、10種類の天井材および2種類の床材は一般の木造住宅と同様の通常の物が使用され、また、新しい食器棚および厨房用品の家具類も市販の物が搬入された。内装作業および家具類の搬入は、1998年6月下旬に終了した。この新築住宅は、空気循環式の煉瓦造住宅で、暖房装置を用いた加熱による強制的なベイクアウトはおこなわなかったものである。竣工（1998年6月）後の6ヶ月間は通常の入居者は認めず、1回あたり平均3時間で合計69回の関係者の温度・湿度などの調査の出入りのみを認めた。その際、一時的にドアおよび窓を開放した。

2.2 ホルムアルデヒドおよび VOCs 測定方法

対象としたホルムアルデヒドおよび VOCs 捕集は、室内を1日以上密閉した状態後に行った。試料空気の捕集位置は、寝室3部屋、居間のそれぞれ部屋中央、および屋外の床上あるいは地上約1mとした。

ホルムアルデヒドおよび VOCs 測定は、スポット測定として個体の吸尿管に捕集し機器で分析して行った。スポット測定の捕集方法および加熱脱着・GC/MS 分析方法の概念図を Fig. 2 に示した。ホルムアルデヒド

は XPOsure（ウオーターズ社製）で捕集し、HPLC（日立製 L 6000；カラム：CapcellPAKC18 SG120 150mm（Shiseido 社製）；移動相：アセトニトリル／水 = 1 / 1（流速0.8ml/min）；測定波長：360nm；注入量：10 μl）で分析し、VOCs は TenaxTA 管（ジューエルサイエンス社製）で捕集し、加熱脱着装置 パージ・アンド・トラップ（CHROMPACK 社製 CP4020）-GC/MS（HP 社製6890/MSD: 5 % phenyl-methylsilicone カラム；50℃ - 10℃/min - 250℃、スキャンモード）で分析した。定性・定量は標準物質（東京化成）と比較して行った。なお、トータル VOCs 濃度は、クロマトグラム上でピークとして検出されたそれぞれの物質について、トルエンの標準物質と比較して換算した濃度を合計して求めた。なお、屋外の測定は、外気の影響を評価するために行い、室内および外気をほぼ同時に採取あるいは測定した。

また、24時間の経時変化を測定するため、連続的な測定が可能な光音響マルチガスモニタ（ブリューエル・ケアー社製、マルチガスモニタ1302）を用い、トータル VOCs 測定時には、トルエン濃度として換算するように調整した。光音響マルチガスモニタは、ガスあるいは蒸気を密閉した容器内に閉じこめ、そこに特定の光を断続的に照射すると容器内部のガス体により光が吸収され、それによって温度変動が生じ、その

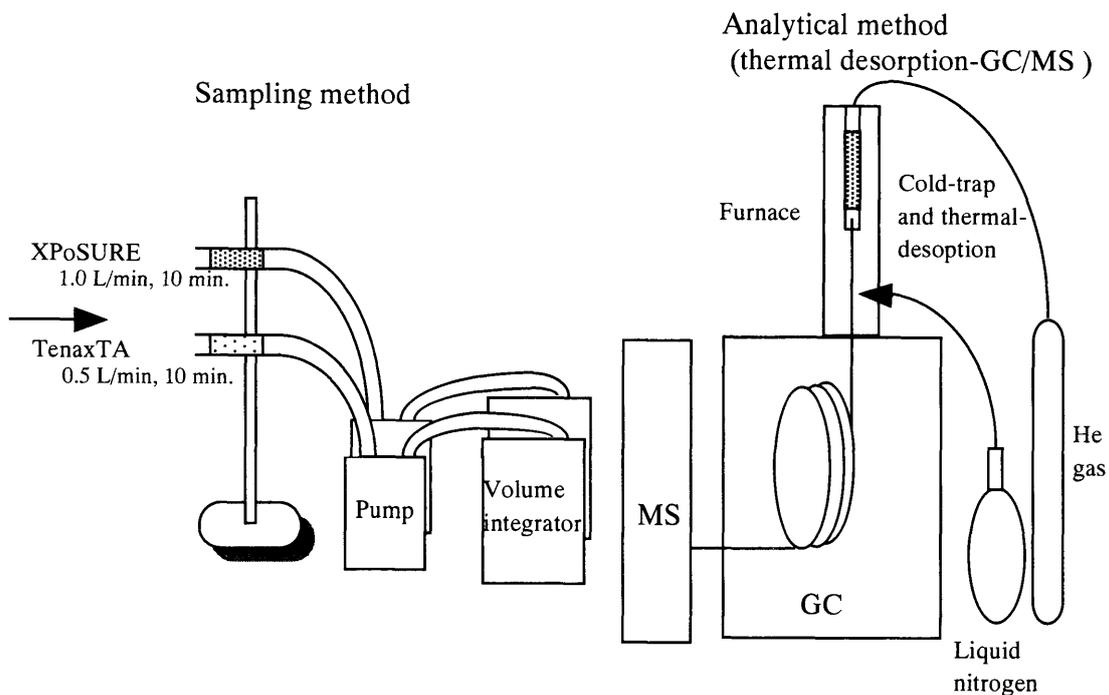


Fig. 2. Skeletal diagram of the spot sampling methods of formaldehyde and VOCs and the analytical method of VOCs.

結果、試料の濃度に比例した圧力変動、すなわち音が発生する現象を利用したものである。ホルムアルデヒドの測定では $3.6\mu\text{m}$ のフィルターを、トータル VOCs の測定では $3.4\mu\text{m}$ のフィルターを使用した。それぞれの定量下限は 0.3ppm 、 0.05ppm とされている。

なお、居室内換気率は、昇華した二酸化炭素濃度の変化を水酸化バリウム法⁷⁾で測定し、計算によって求めた。

2.3 測定時期

室内空気中のホルムアルデヒドおよび VOCs 濃度の測定は、煉瓦の外壁工事の終了時（6月6日）、内装の基礎部分が終了した時点（6月22日）、内装工事終了直後（7月18日）、内装工事終了の2ヶ月後（9月16日）、および内装工事終了の5ヶ月後（12月9日）に行った。

また、内装の基礎部分が終了した時点から約3ヶ月目、内装工事終了後の約2ヶ月目に当たる9月16日を含めて数度、窓を一旦開放後に再度閉めてから、室内空気中のホルムアルデヒドおよびトータル VOCs 濃度の24時間の経時変化を、光音響マルチガスモニタで連続的に測定した。

3. 結果

3.1 6ヶ月間の変化

得られた測定結果の内、トータル VOCs、ホルムアルデヒド、トルエン、ベンゼンおよびキシレンについて、濃度の経時変化を Fig. 3 に示した（ベッドルーム3）。ピーク濃度として、内装工事終了直後（7月18日）で、トータル VOCs は $5,830\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、ホルムアルデヒドは $0.171\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.141ppm)であった。トータル VOCs、ホルムアルデヒド、今回定性したトルエン、およびキシレンは、ピーク濃度を示した時点からおおよそ指数関数的あるいは直線的に濃度減衰を示し、内装工事終了のほぼ5ヶ月で当初の内装工事以前のレベルに低減化した。

3.2 24時間の連続測定結果

ホルムアルデヒドおよびトータル VOCs の連続的な変化をみるため、内装の基礎部分が終了した時点から約3ヶ月目、内装工事終了後の約2ヶ月目に当たる9月16日から17日にかけて、窓を一旦開放後に再度閉めてからの濃度の24時間の経時変化を光音響マルチガスモニタで連続的に測定した。結果について、Fig. 4

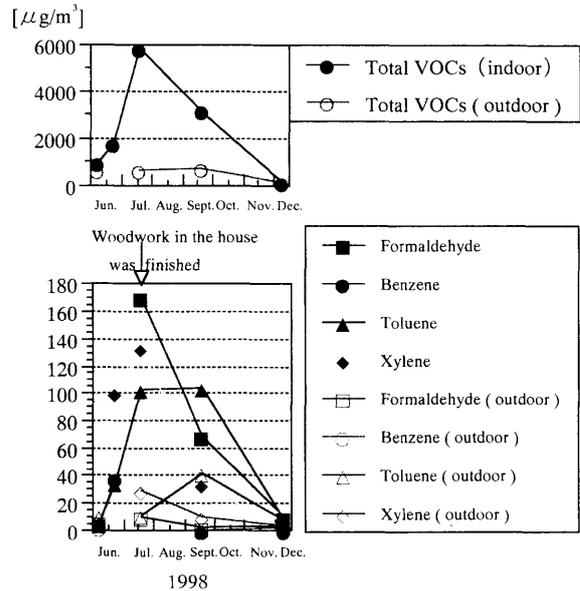
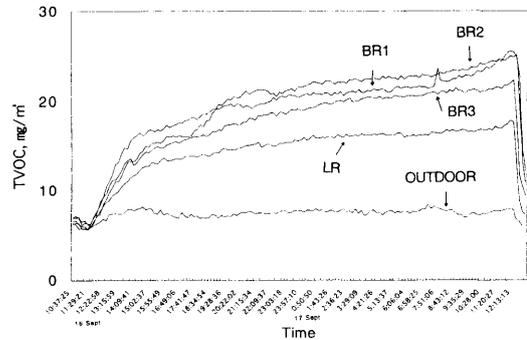


Fig. 3. Time series indoor concentrations of total-VOCs, formaldehyde, benzene and toluene and xylene in the third bedroom (BR3) and the outdoor. The day of finishing woodwork in the house: July 18th 1998.

Total VOCs (TVOC)



Formaldehyde (FA)

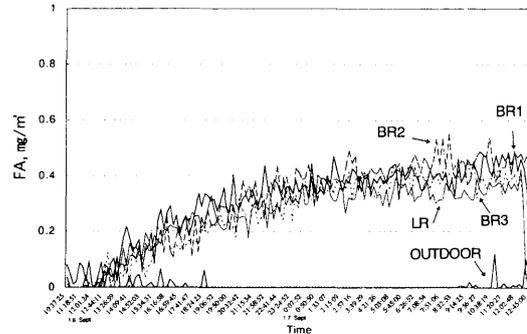


Fig. 4. Time series indoor concentrations of formaldehyde and total-VOCs in the bedrooms, living room and the outdoor measured by the multi-gas-monitor from September 16th to 17th, 1998 (BR1: bedroom1, BR2: bedroom2, BR3: bedroom3, LR: living room; The time of closing windows: 12:44:11 on September 16th, 1998).

に示した。光音響マルチガスモニタによるホルムアルデヒドの測定は空气中的水分濃度が影響する。水分補正を行ったところ結果の一部はマイナスの値を示し除外して図示した。図に示したように、ホルムアルデヒドおよびトータル VOCs の濃度は徐々に上昇した。室内のホルムアルデヒドおよびトータル VOCs 濃度は、最終的にそれぞれ約 $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $25,000 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、外気と比較してそれぞれ約 $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $15,000 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 高くなった。なお、室内温度は 28°C 、外気は 30°C であった。また、窓を閉め切った状態での室内換気率は 0.9 回/hであった。

3.3 個体捕集・機器分析法および光音響マルチガスモニタ法の比較

本調査では、ホルムアルデヒドおよびトータル VOCs 測定に2種類の方法を用いた。両法の3日間同時測定結果の比較を Fig. 5 に示した。本調査においては、両者間には強い相関関係が認められた（相関係数 $r=0.90$ 以上（それぞれ $n=25$ ），いずれも $p < 0.01$ ）。しかし、両者の示す濃度レベルには、差異が認められた。

4. 考察

今回、空気循環式の新築住宅で、ヒトが居住せずヒトの生活活動の影響を抑えた条件下で、新規の内装材・家具類から放散された室内空气中的ホルムアルデヒドおよび VOCs 濃度の経時的な変化を調査した。長期的変化をみるため、内装および室内家具が搬入される前の時点からおおよそ6ヶ月間に数度の測定を行った。今回の調査では、おおよそ5ヶ月間でホルムアルデヒドおよび VOCs 濃度は施工前のレベルになった。トータル VOCs では、Molhave³¹ が提唱しているヒトへの刺激および不快感がほとんどないといわれる $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下に低減化し、繰り返しの短期間の窓・ドアの開放による換気の実施と自然な空気循環および夏期の高温による影響と考えられる。また、ホルムアルデヒドに関しても同様の変化が認められたが、夏期に再上昇することも考えられ、継続的な調査が必要なものと考えられる。新築住宅内のホルムアルデヒドおよび VOCs 濃度の経時的変化に関する知見は、ヒト健康リスク対策を検討する際に必要であり、引き続き関連した追加の調査が必要なものと考えられる。

内装の基礎部分が終了した時点から約3ヶ月目、内装工事終了後の約2ヶ月目に当たる日に、窓を一旦開

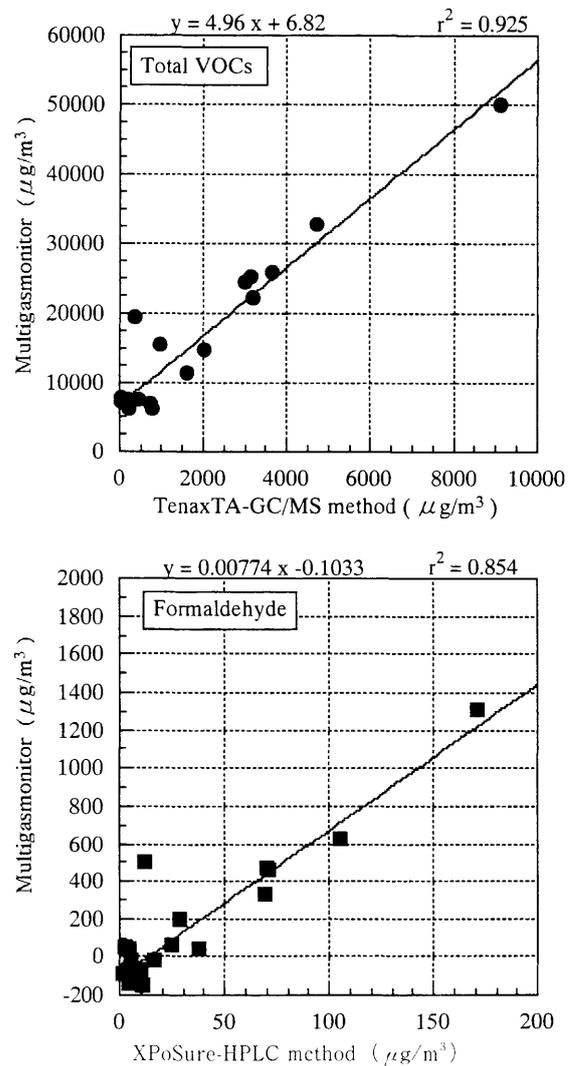


Fig. 5. Relation between the values obtained by spot sampling and analytical methods (VOCs: TenaxTA-GC/MS, formaldehyde: XPoSure-HPLC) and those by the multi-gas-monitor.

放後に再度閉めてからのホルムアルデヒドおよびトータル VOCs 濃度を連続的に測定したところ、外気と比較して明らかに内部の濃度が高く、また、濃度が平衡状態に達する挙動も示し、何らかの内部発生源があることを示唆する結果が得られた。この結果も、少なくとも新築したり改装した場合には数ヶ月間は換気に気をつける必要性を示唆するものである。

本調査においては、スポットサンプリング・分析方法およびマルチガスモニタ法の測定値の間には強い相関関係が認められた。しかし、両者の測定値のレベルには相違が認められた。トータル VOCs では、Fig. 5 中の回帰線の y 軸切片が TenaxTA 管に捕集されない VOCs の存在を示唆している。すなわち、おおよそ

沸点が80~200℃のVOCs用に適用されるTenaxTA捕集方法⁹⁾では、気中に含まれるメタンなど炭素数3ないしは4以下のVOCsの捕集が困難であることの影響と考えられる。また一方、光音響マルチガスモニタでは数 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ レベルのホルムアルデヒドは測定が困難であり、何らかの補正が必要と思われる。近年、これら光音響マルチガスモニタによる方法やスポット的な吸気管捕集-機器分析法が用いられるようになっているが、両者のデータを利用する際には、その特性・差異を踏まえることの重要性が示唆された。なお、その差異を明確にするため、今回調査した煉瓦造住宅とは条件が異なる他の新築住宅あるいは新築ビル内での測定による比較検討の追加が必要と考えられる。

謝 辞

本研究は、日本科学技術振興事業団のCREST (Core Research for Evolutional Science and Technology) の支援、一部平成10年度・11年度文部省科学研究費(基礎研究(C)(2) No.10670332)の補助、および一部平成10年度厚生科学研究補助金(生活安全総合研究事業、研究課題:室内揮発性化合物の実態と健康影響に関する研究)を受けた。

文 献

- 1) T. Godish (小林剛:訳注者):シックビルディングー診断と対策ー, 第1版, オーム社, 1-62, (1998).
- 2) 石川哲, 宮田幹夫, 難波龍人, 西本浩之:化学物質過敏症診断基準について, 日本医事新報, No.3857, 25-29, (1998).
- 3) 安藤正典:連載/室内空気汚染と化学物質 第4回:室内空気中に存在する化学物質一覧, 資源環境対策, 33(8), 737-744, (1997).
- 4) 健康住宅研究会:設計・施行ガイドライン, (1998).
- 5) 松村年郎, 松村学, 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(7), 303-308, (1983).
- 6) 田辺新一:室内化学汚染 シックハウスの常識と対策 (講談社現代新書), 第1版, 講談社, 106-125, (1998).
- 7) 日本薬学会編:衛生試験法・注解, 金原出版, 1305-1308, (1990).
- 8) L. Molhave: Indoor climate, air pollution, and human comfort, *J. Expo. Anal. Environ. Epidemiol.*, 1(1), 63-81, (1991).
- 9) U. S. Environmental Protection Agency: Compendium of Methods for the Determination of Toxic Organic Compounds in Ambient Air Second Edition Compendium Method TO-1, (1997).