

室内空气中化学物質濃度と不快な症状に関する調査結果

齋藤育江*, 瀬戸博*, 竹内正博*, 土屋悦輝*

Survey on Indoor Air Chemicals and Related Health Complaints

IKUE SAITO*, HIROSHI SETO*, MASAHIRO TAKEUCHI* and YOSHITERU TSUCHIYA*

A survey was conducted to determine the relationship between concentrations of indoor air chemicals and health complaints in 49 houses in Tokyo.

Two kinds of diffusive samplers were used to collect air samples and they were both exposed to indoor air for 24 hours. Volatile organic compounds (VOCs) were collected in passive tubes containing Tenax TA. The tubes were then thermally desorbed and analyzed by GC/mass spectrometry. Ten VOCs were identified and measured. Formaldehyde was collected in passive-gas-tubes composed of poly (4-fluoroethylene)-tube filled with silica gel. Formaldehyde was extracted from the adsorbent with distilled water and measured by spectrophotometry. A standard questionnaire survey was conducted to investigate the nature and frequency of health complaints induced in occupants during their residence in these houses.

According to the result of the questionnaire, houses were divided into two groups, "complaint house" and "non-complaint house" group. The concentrations of the 6 chemicals, toluene, xylene, ethylbenzene, styrene, butanol and formaldehyde, were significantly higher in the "complaint house" group than those in the "non-complaint house" group. The frequency of complaints appeared significantly related to the levels of these 6 chemicals.

These results suggested that contamination of indoor air with these 6 chemicals may induce serious complaints.

Keywords: ホルムアルデヒド formaldehyde, 揮発性有機化合物 volatile organic compounds, 室内空気 indoor air, アンケート調査 questionnaire survey, 健康上の苦情 health complaints

緒言

「シックハウス症候群」という言葉は、数年前からマスコミでも取り上げられるようになり、急速に市民権を得てきた。「シックハウス」とは居住者に何らかの健康障害を引き起こす住宅を意味している。こうした事態を受けて、平成10年3月、学識経験者、関連業界団体、関連省庁（建設省、厚生省、通商産業省、林野庁）から成る「健康住宅研究会」は、室内空気汚染の低減のための「設計・施行ガイドライン」及び「ユーザーズ・マニュアル」^{1,2)}を作成した。また、厚生省は、同年8月、居住者の意識を高め、住まい手の工夫により被害を防止するため、「住まい手が快適で健康に暮らすための居住環境

のチェックリスト」³⁾を作成している。

「シックハウス症候群」は別名「新築病」と言われることから分かるように、住まいに関連する健康被害は新築住宅で起こる場合が多い。実際、新築住宅の室内では、建材に由来する化学物質濃度が高いケースがしばしば見受けられ、当研究科に持ち込まれる室内空気の検査依頼も、家を新築あるいはリフォームしたことが原因と考えられる健康被害に関連するものが大半を占めている。しかし、現在のところ、どの物質がどれくらいの濃度で健康被害を引き起こすかについては個人差の問題もあり、限られた物質を除いて、明らかになっていない点が多い。

* 東京都立衛生研究所環境保健部環境衛生研究科 169-0073 東京都新宿区百人町3-24-1

* The Tokyo Metropolitan Research Laboratory of Public Health
3-24-1, Hyakunincho, Shinjuku-ku, Tokyo, 169-0073 Japan

本報では、住宅49軒の室内濃度測定結果から、空気中化学物質濃度と不快な症状との関連について解析した結果を報告する。

実験材料及び方法

1. 調査方法

1997年7月～1999年6月に東京近郊の住宅49軒において、室内空気中ホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物（以下VOCと略す）10種の調査を行った。調査対象としたVOCは、通常室内で濃度的に高い物質あるいは前報⁴⁾で不快な症状との関連が疑われた物質の中から10種を選定した。また、測定と同時にアンケート調査を行った。アンケートでは、住宅の立地条件、建築構造、築年数等について質問するとともに、健康に関する質問項目を設け、室内に居て不快な症状が起きる者の有無、症状が起きる者がいる場合はその内容及び頻度について調査した。なお、症状の頻度については、たまに、時々、いつも、その他の4者からの選択式とした。

2. 測定方法

1) ホルムアルデヒド

パッシブAHMT法⁵⁾により測定した（24時間採取）。

2) VOC

調査物質：デカン，トルエン，エチルベンゼン，キシレン類（*m*-キシレン，*p*-キシレン，*o*-キシレンの合計），スチレン，*p*-ジクロロベンゼン，ナフタレン，酢酸エチル，メチルエチルケトン，*n*-ブタノール 以上10物質

ステンレス加熱脱着チューブ（Tenax TA 200mg）を用いたパッシブ法により24時間採取し、GC/MSにより分析した⁶⁾。なお、各物質のUp（Uptake Rate：ng・ppm⁻¹・min⁻¹）は、トルエン1.66，エチルベンゼン2.04，*m*-キシレン1.99，*p*-キシレン1.99，*o*-キシレン2.10，スチレン1.82，*p*-ジクロロベンゼン2.17，ナフタレン2.38，ブタノール1.54，メチルエチルケトン1.61，酢酸エチル1.54，デカン2.91とした。

3. 統計処理

測定と同時に行ったアンケート調査より、室内に居て何らかの不快な症状が起きる者がいると回答した住宅を「症状あり家屋」群、いないと回答した住宅を「症状なし家屋」群の2群に分けて解析を行った。49軒のうち「症状あり家屋」群は19軒、「症状なし家屋」は30軒であった。なお、各物質濃度のヒストグラムは対数正規分布に近似されたため、検定及び解析には自然対数変換した値を用いた。

結 果

1. 分布の比較

各物質濃度及び住宅の築後年数のヒストグラムをFig.1に示す。「症状あり家屋」群と「症状なし家屋」群との濃度分布を比較すると、ホルムアルデヒド，トルエン，エチルベンゼン，キシレン，スチレン及びブタノールにおいては「症状あり家屋」群の方が高濃度側に分布する傾向が見られた。*p*-ジクロロベンゼンとナフタレンの2物質については「症状なし家屋」群の方が若干高濃度側に分布していた。その他の物質（メチルエチルケトン，酢酸エチル及びデカン）については両群の間に明らかな差は見られなかった。

住宅の築後年数については、「症状あり家屋」群の方が「症状なし家屋」群よりも年数の短い側に多く分布していた。「症状あり家屋」群に属する住宅の内訳をみると、築後3年未満のものが約70%を占め、築後3年以上の住宅は1軒を除き、すべてリフォーム後1年以内であった。これに対して「症状なし家屋」群では築後3年未満の住宅が占める割合は20%で、リフォーム後1年以内の住宅は含まれていなかった。

また、測定結果を、現在示されているガイドライン値に照らして評価すると、ホルムアルデヒドの80ppb⁷⁾を超えていた住宅は全体で5軒（「症状あり家屋」4軒，「症状なし家屋」1軒），トルエンの70ppb⁸⁾を超えていた住宅は8軒（「症状あり家屋」群7軒，「症状なし家屋」群1軒），キシレンの200ppb⁸⁾を超えていた住宅は1軒（「症状あり家屋」群1軒），*p*-ジクロロベンゼンの40ppb⁸⁾を超えていた住宅は5軒（「症状なし家屋」群5軒）であった。

2. 濃度の比較

測定結果の最大値，最小値，中央値及び幾何平均値をTable 1に示す。各物質濃度について「症状あり家屋」群と「症状なし家屋」群との間でt-検定を行ったところ、ホルムアルデヒド（ $p<0.01$ ），トルエン（ $p<0.01$ ），エチルベンゼン（ $p<0.01$ ），キシレン（ $p<0.01$ ），スチレン（ $p<0.01$ ）及びブタノール（ $p<0.01$ ）の6物質については、「症状あり家屋」群が「症状なし家屋」群に比べて有意に高濃度であり，*p*-ジクロロベンゼン（ $p<0.01$ ）濃度については、「症状なし家屋」群の方が有意に高かった。また、総VOCを反映する値としてVOC10種合計値について同様の検定を行ったところ、有意差は見られなかった。

住宅の築後年数については、対数変換しない実数を用いて同様の検定を行い、「症状あり家屋」群で算術平均

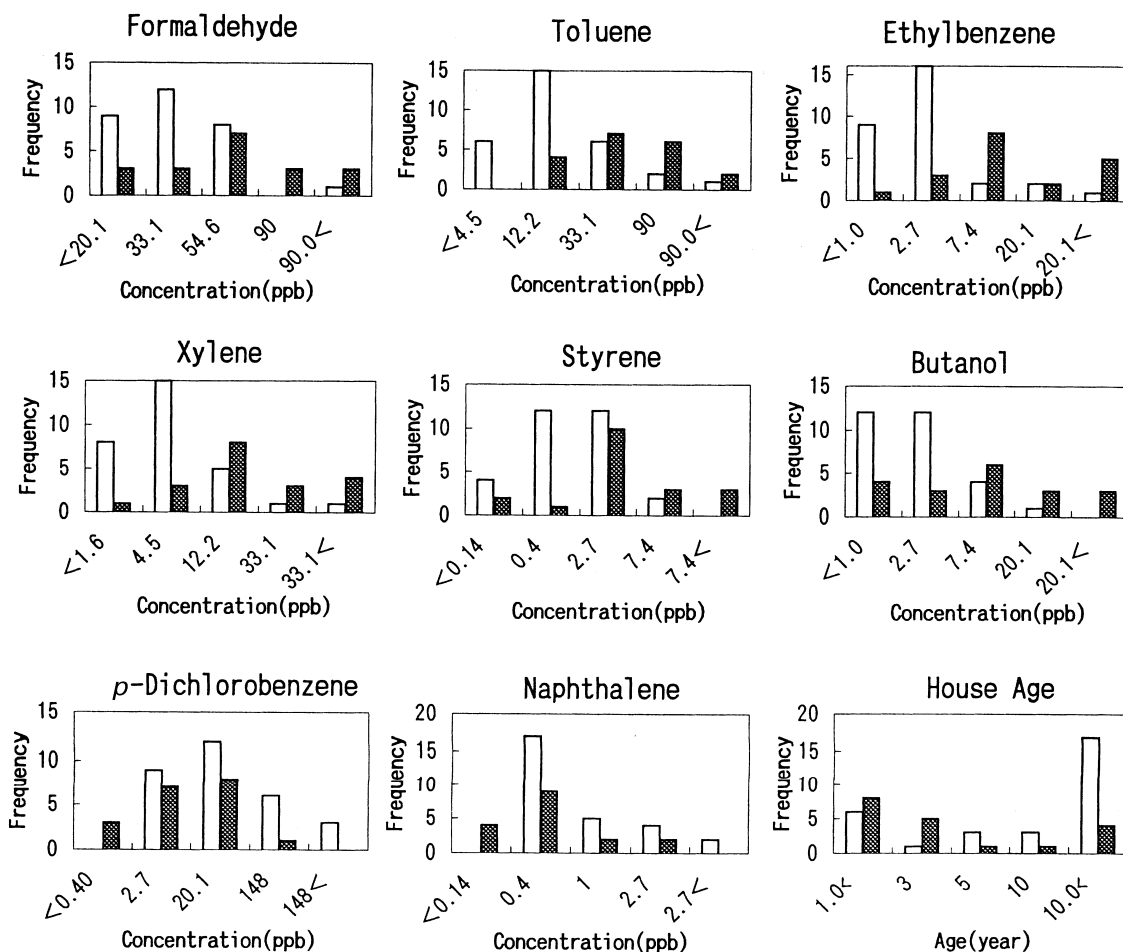


Fig.1 Histogram of Indoor Air Chemical Levels and Age of Houses

: Complaint House Group
 : Non-Complaint House Group

Table 1. Concentrations of Indoor air Chemicals and Age of Houses

Chemicals(ppb)	Complaint house group (n=19)				Non-Complaint house group (n=30)			
	Max.	Min.	Median	G.M.	Max.	Min.	Median	G.M.
Formaldehyde	261	10.9	44.8	43.4**	93.8	12.6	27.1	26.9
Toluene	494	4.6	28.1	33.6**	409	1.7	9.4	9.9
Ethylbenzene	207	0.82	4.9	7.7**	93.1	0.32	1.3	1.6
Xylene	317	1.4	8.7	12.0**	143	0.74	2.5	2.9
Styrene	17.2	0.08	0.97	1.1**	4.1	0.08	0.34	0.41
p-Dichlorobenzene	21.7	0.28	2.1	2.0	1516	0.50	8.5	10.6**
Naphthalene	2.0	0.10	0.23	0.28	28.9	0.14	1.3	0.50
Butanol	51.8	0.43	3.4	4.7**	8.5	0.44	1.3	1.4
Methyl Ethyl Ketone	16.6	0.29	1.9	2.1	5.4	0.22	2.3	1.9
Ethyl Acetate	24.2	0.48	3.5	4.0	74.4	0.74	2.4	2.7
Decane	34.5	0.04	0.51	0.71	7.6	0.04	0.62	0.65
Sum of 10 VOCs	1088	22.5	77.4	93.4	1535	8.5	49.0	60.4
House Age (year)	Max. 30	Min. 0.1	Median 2.0	A.M. 5.9	Max. 35	Min. 0.04	Median 11.5	A.M. 12.1**

G.M. : Geometric mean , A.M. : Arithmetical mean * : p<0.05 , ** : p<0.01

値が5.9年だったのに対し、「症状なし家屋」群では12.1年と約2倍の開きがあり、有意差がみられた。

3. 症状の頻度と濃度との関連

居住者が室内で感じた症状の頻度により、「症状なし家屋」群を「なし (n=30)」、「症状あり家屋」群を「たまに (n=3)」、「ときどき (n=10)」、「いつも (n=6)」の計4グループに分けて、各物質濃度と症状の頻度との関連について解析を行った。症状の頻度別に各物質濃度の平均値を求めた結果をFig.2に示す。いずれの物質も濃度にばらつきがみられたが、「症状あり家屋」群で有意に濃度が高かった6物質(ホルムアルデヒド、トルエン、エチルベンゼン、キシレン、スチレン及びブタノール)については、濃度が上昇するに従って症状の頻度が高くなる傾向が見られた。p-ジクロロベンゼン及びナフタレンについては、「なし」グループにおける濃度が最も高かった。

次にこれらの濃度と症状の頻度について無相関の検定

を行った結果をTable 2に示す。前述の6物質については、いずれも症状の頻度と濃度との間に有意な正の相関がみられ、不快な症状との関連が疑われた。p-ジクロロベンゼンについては、有意な負の相関がみられ、濃度が高いほど症状の頻度が低いという結果が得られた。その他の物質及びVOC10種合計値については、濃度と症状の頻度との間に有意な差は見られなかった。

なお、「症状あり家屋」群の居住者に主にみられた不快な症状の内容は、目の痛みが最も多く47%、続いて喉の痛み、鼻の痛み、咳、頭痛がそれぞれ26%、倦怠感、皮膚のかゆみ、悪心がそれぞれ11%であった。なお、数値は19軒に占めるそれぞれの症状がみられた住宅数の割合(%)を表す(複数回答可)。

4. ガイドライン値と有症家屋率

これまでの結果より、ホルムアルデヒド、トルエン、エチルベンゼン、キシレン、スチレン及びブタノールの6物質については、症状との関連が示唆された。これら

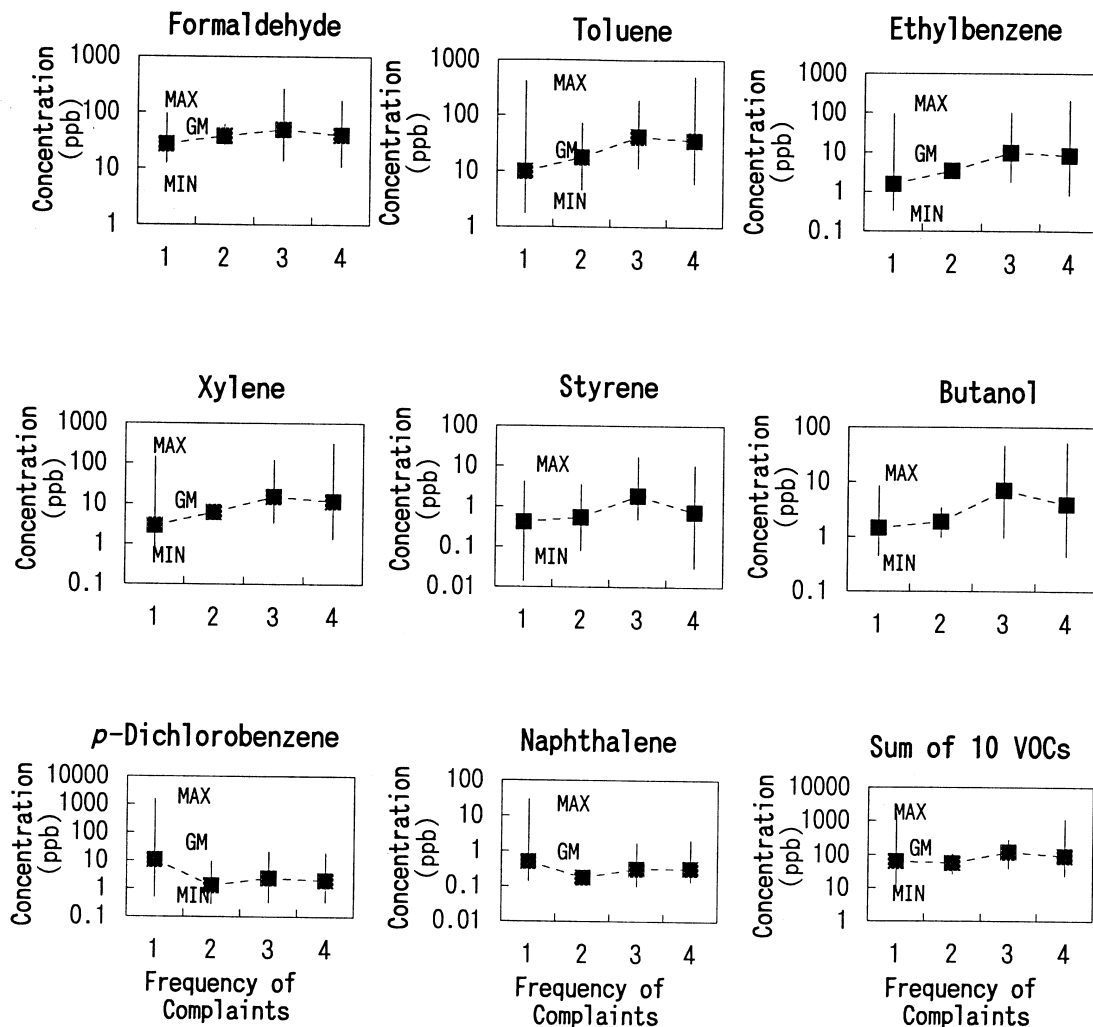


Fig. 2 Concentrations of Indoor Air Chemicals Classified by Frequency of Health Complaints

1: never, 2: occasionally, 3: sometime, 4: always

MAX: maximum, GM: geometric mean, MIN: minimum

Table 2. Correlation between Concentrations of Indoor Air Chemicals and Frequency of Health Complaints

Chemicals	Correlation Coefficients
Formaldehyde	0.328*
Toluene	0.485**
Ethylbenzene	0.542**
Xylene	0.498**
Styrene	0.317*
<i>p</i> -Dichlorobenzene	-0.381**
Naphthalene	-0.188
Butanol	0.496**
Methyl Ethyl Ketone	-0.040
Ethyl Acetate	0.115
Decane	-0.091
Sum of 10 VOCs	0.194

* : $p < 0.05$, ** : $p < 0.01$

6物質のうち、現在、室内濃度のガイドライン値が示されているのは3物質（ホルムアルデヒド、トルエン及びキシレン）のみである。また、これらの値は動物実験の毒性データから求められたものであり、症状との関係は必ずしも明らかではない。そこで、これら3物質がガイドライン値程度の濃度であった場合、どれくらいの住宅で不快な症状が起きるかについて試算した。ただし求められた数値は、実際の住宅における測定値から類推したものであり、各物質を単独で暴露した場合の結果を表すものではない。

前述の濃度のヒストグラムより、各濃度区分毎に「症状なし家屋」群及び「症状あり家屋」群の度数を合計し、その合計に占める「症状あり家屋」群の度数割合を有症家屋率（%）とした。結果をFig.3に示す。多少の上下動はあるが、各物質とも濃度が高くなるにしたがって、有症家屋率も高くなる傾向がみられた。

ガイドライン値をこれらの濃度区分に照らしてみると、ホルムアルデヒドについては指針値の80ppbを含む区分では100%の住宅が有症であり、同様にトルエン

（指針値70ppb）では75%、キシレン（指針値200ppb）では80%と、いずれも高率で症状が見られることが推測された。

考 察

今回の調査で*p*-ジクロロベンゼン及びナフタレンについては、室内濃度が高いほど居住者の訴える症状の頻度が少ないという傾向がみられたが、これは、高濃度になるほど症状を感じなくなるということではなく、症状の頻度が高い住宅ほどこれらの濃度が低いことを表していると考えられた。*p*-ジクロロベンゼン及びナフタレンは、衣類の防虫剤として使用される比較的刺激性の少ない物質である。しかし「症状あり家屋」群では、居住者が室内の化学物質による不快な症状を感じており、化学物質に対する感受性が高いため、意識的にこれら防虫剤の使用量を押さえていることが推察された。これに対し、「症状なし家屋」群では化学物質に対する感受性が比較的低く、においや症状を感じにくいいため、防虫剤を多量に使用することにより、気付かないうちに室内が高濃度に汚染されるケースがあると考えられた。実際、今回の調査では、*p*-ジクロロベンゼン濃度がガイドライン値を超えていた住宅はすべて「症状なし家屋」群に属していた。

現在、数種の化学物質について室内空气中濃度の指針値が提示され、法的規制が徐々に進行しつつある。また、将来的には総量規制が導入される予定で、こうした法的措置により、室内空气中化学物質による健康被害状況の改善が期待される。しかし、規制対象物質の使用を抑えた代替品が開発された場合、それらに含まれる規制対象外の物質が低濃度で刺激性を有するものであれば、基準をクリアした住宅であっても健康被害を引き起こす可能性を否定することはできない。したがって今後とも、事例研究を積み重ね、室内空气中化学物質濃度と健康被害の現状について情報を提供していくことは、快適で健康的な居住環境を確保する上で重要と考えられた。

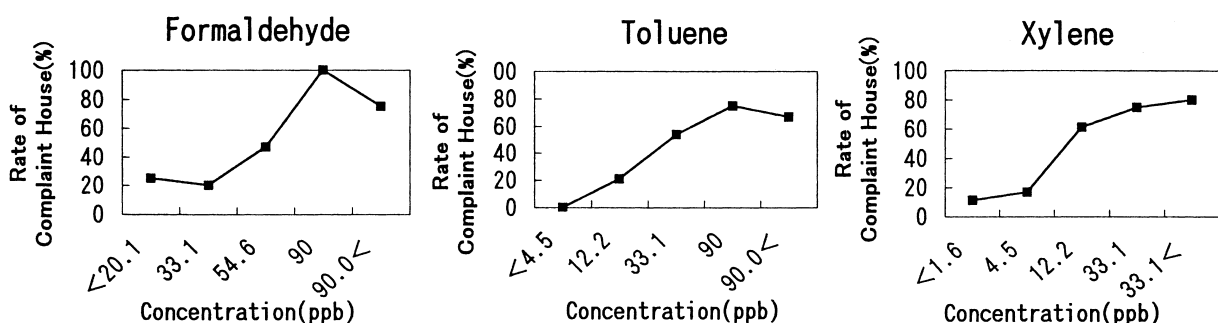


Fig.3 Relationship between Indoor Air Chemical Levels and Rate of Complaint House

ま と め

1997年7月～1999年6月に東京近郊の住宅49軒において、室内空気中ホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物10種の調査を行った。また、測定と同時に健康に関するアンケートを行い、室内に居て起こる不快な症状とその頻度について調べた。調査の結果、室内で起こる不快な症状の有無により「症状あり家屋」群(n=19)と「症状なし家屋」群(n=30)の2群に分けて解析を行った。各物質濃度についてt-検定を行ったところ、ホルムアルデヒド、トルエン、エチルベンゼン、キシレン、スチレン及びブタノールの6物質は、「症状あり家屋」群の方が「症状なし家屋」群に比べて有意に高濃度であり、濃度と症状の頻度との間にも有意な相関がみられ、症状との関連が示唆された。しかし、*p*-ジクロロベンゼンを含めた10種のVOC合計濃度と症状との関連性は認められなかった。

文 献

- 1) 健康住宅研究会：室内空気汚染の低減のためのユーザーズ・マニュアル，平成10年3月．
- 2) 健康住宅研究会：室内空気汚染の低減のための設計施工ガイドライン，平成10年3月．
- 3) 厚生省生活衛生局企画課生活化学安全対策室：快適で健康的な住宅に関する検討会議報告書，1998年8月．
- 4) 斎藤育江，瀬戸博，竹内正博：東京衛研年報，49，225 - 231，1998．
- 6) 瀬戸博，斎藤育江，竹内正博他：東京衛研年報，50，240 - 244，1999．
- 7) 厚生省生活衛生局企画課生活化学安全対策室：快適で健康的な住宅に関する検討会議 健康住宅関連基準策定専門部会化学物質小委員会報告書，1997年6月．
- 8) 厚生省生活衛生局企画課生活化学安全対策室：室内空気汚染にかかるガイドライン(案)，平成12年5月．