

## 室内空気汚染発生源の推定 - 建材からのスチレン，ブタノールの発生量 -

瀬戸 博\*, 斎藤 育江\*, 大貫 文\*, 竹内 正博\*, 土屋 悦輝\*

### Presumption of the Source of Indoor Air Pollution - Amounts of Styrene and Butanol Generation from Construction Materials -

HIROSHI SETO\*, IKUE SAITO\*, AYA ONUKI\*, MASAHIRO TAKEUCHI\* and YOSHITERU TSUCHIYA\*

**Keywords:** 室内空気 indoor air, 揮発性有機化合物 volatile organic compound, 発生源 source, スチレン styrene, ブタノール butanol.

#### 緒 言

最近、新築時やリフォームした際に、居住者が「眼や喉の痛み」、「皮膚の発赤やかゆみ」、「頭痛」、「気分が悪い」等の症状（いわゆるシックハウス症候群）を訴えるケースが多くなっている。そのような住宅室内のホルムアルデヒドや揮発性有機化合物（以下VOCと略す）の濃度を測定すると、平均的な住宅に比べて異常に高い場合がある。低減化対策の必要性から、次に「発生源は何か?」という疑問が生じる。既に人が居住している住宅室内には、内装建材や家具・什器類、家庭用品、化粧品、防虫・殺虫剤さらには調理、暖房器具等化学物質の発生源が多い。これらの内、建材に由来する化学物質発生量は多くなる傾向があり、しかも発生そのものを抑制することが困難で、除去対策に多額の費用を要する。従って、健康被害を未然に防止するためには、建材からの化学物質の発生状況を明らかにすることが非常に重要である。今回、健康被害が発生したために居住者が転居した事例において、室内空気調査や建材の調査を行なう機会を得た。その結果、建材からのVOC、特にスチレンとブタノールの発生量についての知見が得られ、発生源を推定できたので報告する。

#### 対象住宅及び実験方法

**対象住宅の状況:** 対象住宅は、都区内の幹線道路の交差点から200メートルに立地する、鉄骨鉄筋コンクリート造り、地下1階地上13階建て、総戸数48戸の集合住宅の9階部分にあり、竣工は1998年2月である。床面積は66m<sup>2</sup>、6畳の和室以外はフローリングである。フロー

リング材にはJAS（日本農林規格）のF2が使用されていた。この住宅の平面図を図1に示した。

**経緯:** 当該住宅の居住者は、30歳代の夫婦で竣工間もない1998年4月に入居した。入居後、すぐに二人とも頭痛、めまい、倦怠感、吐き気、胸が苦しい等の症状を訴えた。症状が出る時期は5月以後の夏季が多いという。1999年7月、既に居住者は住める状況ではないとし、近くの別の住宅に仮住まいをしていたが、区保健所に当該住宅内のホルムアルデヒド調査を依頼した。前夜から閉めきった条件で測定したホルムアルデヒド濃度は、居間190-300 µg/m<sup>3</sup>、洋室A450 µg/m<sup>3</sup>（検知管による瞬間値又は30分間の平均値）と厚生省の指針値100 µg/m<sup>3</sup>を超えていたため、保健所は換気をするよう指導している。しかし、防音工事をした洋室Aのホルムアルデヒド濃度が最も高いのに症状が出ない等の疑問があり、数日後、当研究所に相談があった。居住者がホルムアルデヒド以外の物質についても測定を依頼したので、8月初旬にホルムアルデヒド及びVOCについて測定を行った。その後、床面からのVOC発生量測定や一部建材からの発生量測定実験を行った。

**室内空気中ホルムアルデヒド及びVOCの測定:** 室内空気中ホルムアルデヒド測定には、柴田科学製パッシブガスチューブを、またVOC測定にはパーキンエルマー社製ATDチューブ（Tenax TA 200mg）を使用した。居住者は既に別住宅に仮住まいをしており、時々点検と換気をするとのことであったが、採取時は前日から閉め切った状態であった。採取場所は和室中央部で、畳面から

\* 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

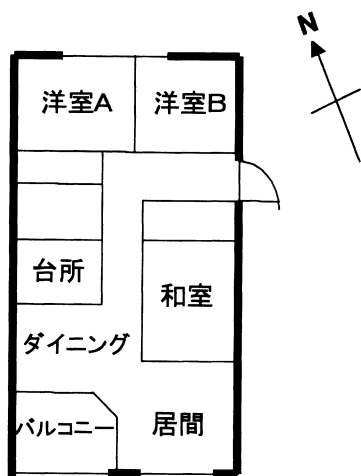


図1．住宅平面図

120cmの高さにサンプラーをセットし、24時間採取を行った。和室の襖は取り除かれており、居間と一体空間になっていた。分析はそれぞれ既報<sup>1,2)</sup>の条件で行った。

**床面付近のVOC濃度測定：**VOC発生源の推定をするため、簡易表面空間濃度測定法<sup>3)</sup>により床面付近のVOC濃度測定を行った。対象床面にATDチューブを水平方向に置き、上面を20x20cmのアルミ箔で覆い24時間パッシブサンプリングした。分析は既報<sup>2)</sup>の条件で行った。

**建材からのVOC発生量測定：**床材（エスコンポ・新日鐵化学(株)）は遮音性直貼木質複合床材で厚さ13.0から13.5mmである。表面はナラ単板，その下に合板，さらに不織布制振シート4～4.5mm厚の構造である。カタログ見本の一部を鋸及びカッターナイフで床面幅1cm，長さ3cmの大きさに切断し，試料とした。接着剤（ハイフレックス・日本化成(株)及びUミックス・宇部興産(株)各プライマー）はエチレン酢酸ビニル共重合体のエマルジョンタイプである。接着剤は容器から一部をアルミ箔に滴下し，秤量後発生量を測定した。エポキシ樹脂は二液混合タイプで硬化させたものを剥離して試料とした。

以上の建材は必ずしも当該住宅の施工に使用されたものではないが，ごく一般的に使用されているものである。

2000年5月9日に当該住宅現場にてスチロールシート及び補修材の一部を切り取り，又は剥離し，試料とした。

図2に示す装置により建材からのVOC発生量を測定した。乾燥空気を活性炭（C）（スペルコ社製）さらにATDチューブ（E）（Tenax TA 200 mg及びCarbopack B 100mg）を通して不純物を除去し，毎分50mlの速度で発生部（F）に導入した。発生部内に秤量した試料を入れ，発生したVOCをATDチューブ（G）（Tenax TA 200

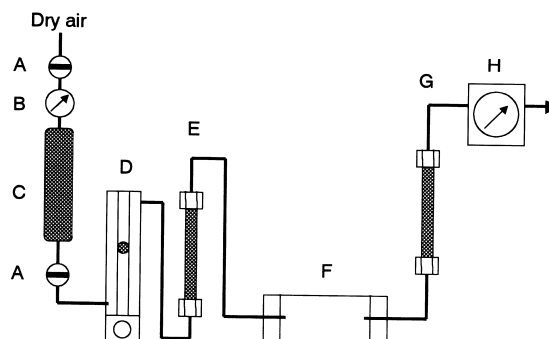


図2．VOC発生速度測定装置

A:ストップバルブ，B:レギュレータ，C:活性炭，D:流量計，E:ATDチューブ，F:発生部，G:ATDチューブ，H:ガスメータ。  
発生部：内径13mm，長さ110mmのガラス管，両端はシリコンゴム。

mg及びCarbopack B 100mg)により捕集した。空試験では試料を入れずに同様の操作を行った。分析は既報<sup>4)</sup>の条件で行った。VOC発生量は空試験値を差し引いて，発生速度（単位重量・単位時間当たりの発生量）を算出した。なお，VOC発生実験は室温（27～28℃）で行った。

## 結果及び考察

### 1．室内空气中ホルムアルデヒド及びVOC濃度

1999年8月2～3日にかけて，和室（居間と一体空間）の空气中ホルムアルデヒド及びVOC測定を行った結果について，表1に示した。ホルムアルデヒド濃度は124  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で厚生省の指針値（100  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）を超えていた。検知管による簡易測定は実際よりも高めの数値を与えることが多いので，区保健所の測定結果の数値をそのまま採用することは出来ないにしても，当該住宅のホルムアルデヒド濃度は相当高いことが確認された。本住宅にはホルムアルデヒドを含む建材（JAS, F2）が使用されているが，測定当時は気温，湿度が高く，さらに前日から閉め切った状態で測定を行ったことにより高濃度の測定値となったのであろう。しかし，居住者はホルムアルデヒド濃度が高かった「洋室Aでは症状がでない」と述べていることから，健康被害の原因としてホルムアルデヒド以外の化学物質が疑われた。従って，今回の調査ではホルムアルデヒドについては発生源の追求をしないこととした。

他のVOCについても表1に示したように東京近郊の一般住宅で得られた測定値（中央値）と比較してかなり高く，特にスチレンとブタノールが高濃度で，何らかの強い発生源が室内に存在していると考えられた。スチレンとブタノールはいずれも臭気が強く，健康被害の原因物質となるのではないかと疑われている<sup>5,7)</sup>。キシレンと

表1. 室内空気中のホルムアルデヒド及びVOC濃度

単位:  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 

	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	p-DCB	ブタノール
当該住宅(A)	124	31.8	15.2	48.5	28.5	12.7	119
統計値(B)	33.4	10.3	1.9	3.2	0.54	4.1	1.9
A/B	3.7	3.1	8.0	15	53	3.1	64

採取日: 1999年8月2~3日, 平均気温29.6, 平均相対湿度62%. 閉め切った状態で24時間採取した.

統計値は東京近郊住宅の中央値<sup>8)</sup>. p-DCB: パラジクロロベンゼン.

表2. 床面付近のVOC濃度

単位:  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 

測定場所	トルエン	エチルベンゼン	キシレン	スチレン	p-DCB	ブタノール
居間床上	46.6	4.3	10.0	9.8	1.9	279
和室補修材上	52.1	241	948	293	2.0	32.6

測定日: 2000年2月2~3日.

測定場所にATDチューブを置き, 上面を20×20cmのアルミ箔で覆い, 24時間採取した.

表3. 建材からのVOC発生速度

単位:  $\text{ng}/\text{g}/\text{min}$ 

建材名	採取量(g)	採取面積( $\text{cm}^2$ )	トルエン	エチルベンゼン	キシレン	スチレン	ブタノール
床材							
エスコポFF	1.490	3.0	0.1	<0.1	<0.1	0.2	<0.1
エスコポFF40	1.522	3.0	<0.1	<0.1	<0.1	0.1	<0.1
エスコポFF45	1.423	3.0	<0.1	<0.1	<0.1	0.5	<0.1
補修材材料							
セメント#10	0.543	-	2.0	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
セメント#20	0.502	-	0.5	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
セメント#30	0.542	-	0.3	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
ハイフレックス(接着剤)	0.037	-	1.4	0.4	1.3	0.2	80
Uミックス(接着剤)	0.038	-	4.5	7.8	3.4	0.8	114
エポキシ樹脂(硬化したもの)	0.250	-	96	1.8	3.3	<0.1	<0.1
現場にて採取した建材							
スチロールシート A	0.061	15.0	1.3	0.6	2.8	1.9	0.9
スチロールシート B	0.099	24.0	1.5	0.5	2.4	0.8	0.9
剥離した補修材	0.635	-	0.2	<0.1	<0.1	<0.1	0.4

室温(27~28)にて乾燥空気を50ml/minの速度で20分間通じ, 試料から気化したVOC成分をATDチューブで捕集した.

エチルベンゼンについてもやや高い濃度であった. パラジクロロベンゼンは衣料の防虫剤で居住者が持ち込んでいる可能性が高い.

## 2. 床面付近のVOC濃度

床面付近のVOC濃度測定結果を表2に示した. 居間のフローリング床上でブタノール濃度が極めて高いのが注目される. 一方, 和室補修材上ではキシレン, スチレン, エチルベンゼンが高かった. ブタノールも通常の空气中濃度に比べ相当高い結果であった. この結果から, ブタノールは主としてフローリング及び和室補修材から, また, スチレン, キシレン, エチルベンゼンは主として和室補修材から発生していると考えられた.

## 3. 建材からのVOC発生速度

建材からのVOC発生速度を測定し, その結果を表3に示した. 床材そのものからのVOC発生は比較的少な

かった. しかし, フローリング施工では, コンクリート面を補修材で覆い, 平準化した後, さらに床剤固定用接着剤を塗り, その上に床材を敷き詰めるという工法がとられており, 接着剤からのVOCの放散が問題である. 当該住宅の施工にどのような接着剤が使用されたかは不明だが, エチレン酢酸ビニル系の接着剤であるハイフレックス及びUミックスプライマーからは多量のブタノールが発生していた. 表2で居間のフローリング床上のブタノール濃度が高かったのは下層の接着剤に由来することを強く示唆している. セメントからのVOC発生はほとんど認められなかった. エポキシ樹脂からは多量のトルエンが発生していた.

一方, 当該住宅の現場にて採取した建材からのVOC発生速度の測定結果をみると, スチロールシートからは主としてキシレン, スチレン, ブタノールが, また剥離

した補修材からはブタノールが発生していた。

表2に示すように和室補修材上付近のVOC濃度測定実験では、スチレン、キシレン、エチルベンゼン濃度が高かったが、剥離した補修材ではこれらの物質の発生量は低いという矛盾した結果であった。これは補修材を剥離する際、粉体となるのが避けられず、発生速度測定実験までの約1ヶ月間に揮散しやすいスチレン、キシレン、エチルベンゼンが消失したためと考えられる。また、和室補修材上で捕集されたスチレンは補修材に元々含まれていたものもあるが、大部分はスチロールシートから移動したものと推察される。

補修材とは、コンクリートが固まった時点で接着剤とセメント、水を混合し、コンクリート面を薄く覆うものである。マンション等で和室を施工する場合、以前はコンクリートが十分に乾燥するのを待ってから畳を敷いていたが、工期が長くかかるため補修材を使うようになった。現在では、補修材の上にスチロールシートを敷き、その上に畳を敷き詰めるという工法が一般的となっている。補修材の養生期間は約2週間である。

施工後2年以上経過した補修材やスチロールシートから、このようにVOCの発生が認められることに留意する必要がある。ところでスチロールシートにスチレンが含まれているのは原料であることから推察できるが、ブタノールやキシレンが本来高濃度に含まれているかどうかは疑問である。未使用のスチロールシートのVOC発生を調べる実験を行っていないので確定したことは言えないが、ブタノールやキシレンについては、下層の補修材から移動し、スチロールシート内に拡散した可能性がある。

また、当該住宅で使用されていた畳は、発泡スチロー

ル等のスタイロフォームを芯材にした、いわゆる「スタイロ畳」であるため、芯材からもスチレンが発生すると考えられる。

### ま と め

健康被害のあった住宅の室内空气中化学物質濃度を測定したところ、ホルムアルデヒド及びスチレン、ブタノール等が高濃度であった。床表面付近のVOC測定の結果、ブタノールはフローリング床上及び畳下の補修材上で、また、スチレンは補修材上で極めて高濃度であった。建材からのVOC発生の測定実験から、ブタノールは主として接着剤から、スチレンは主としてスチロールシート及びスタイロ畳から発生していることが推定された。

### 文 献

- 1) 斎藤育江, 瀬戸 博, 多田宇宏他: 東京衛研年報, 48, 250-254, 1997.
- 2) 瀬戸 博, 斎藤育江, 竹内正博他: 東京衛研年報, 50, 240-244, 1999.
- 3) 瀬戸 博, 斎藤育江, 大貫 文他: 東京都立衛生研究所プロジェクト研究報告書, 50-54, 2000.
- 4) 大貫 文, 斎藤育江, 瀬戸 博他: 東京衛研年報, 51, \*\*\*\*\*, 2000.
- 5) 瀬戸 博, 斎藤育江, 竹内正博: 第39回大気環境学会講演要旨集, 440p, 1998.
- 6) 斎藤育江, 瀬戸 博, 竹内正博: 東京衛研年報, 49, 225-231, 1998.
- 7) 斎藤育江, 瀬戸 博, 大貫 文他: 第40回大気環境学会講演要旨集, 249p, 1999.
- 8) 瀬戸 博, 斎藤育江, 大貫 文他; 東京衛研年報, 51, \*\*\*\*\*, 2000.