

新築住宅におけるホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物濃度の年次推移 -室内濃度指針値との関係-

大 貴 文*, 齋 藤 育 江*, 瀬 戸 博*, 上 原 眞 一*, 鈴 木 孝 人**

The annual changes of indoor concentrations of formaldehyde and volatile organic compounds sampled at new houses :
Relationship to the guidelines

Aya ONUKI*, Ikue SAITO*, Hiroshi SETO*, Shin-ichi UEHARA* and Takahito SUZUKI**

Keywords: ホルムアルデヒド formaldehyde, 揮発性有機化合物 volatile organic compounds, 年次推移 annual change, 新築住宅 new houses, 指針値 guideline value

緒 言

「シックハウス症候群」とは、住宅が原因で体の不調が引き起こされる疾病で、特に新築住宅での発生が多い。これは新築住宅では内装等が施工されて間もないため、その際に使用された化学物質が、高濃度に室内空気を汚染し、化学物質に起因する健康障害を引き起こすためと考えられている。厚生労働省は、シックハウス症候群を社会問題としてとらえ、その対策として、原因と考えられる化学物質の室内濃度指針値を示し、室内空気汚染の低減化を図った¹⁾。1997年6月にはホルムアルデヒド（以下HCHOと略す）、2000年6月にはトルエン、キシレン、パラジクロロベンゼン（以下*p*-DCBと略す）、2000年12月にはエチルベンゼン、スチレン、クロルピリホス、フタル酸ジ-*n*-ブチル、2001年7月にはテトラデカン、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル、ダイアジノン、2002年2月にはアセトアルデヒド、フェノバルブについての指針値が設定された。

そこで著者らは、指針値設定により住宅室内の化学物質濃度がどのように変化したかについて、調査を行い、その効果を検証することは、今後の室内環境対策を立てる上でも重要であると考え、本研究を行った。今回は新築住宅における、HCHOと揮発性有機化合物（以下VOCと略す）濃度の年次推移（1996～2002年）を調査した。

方 法

1. 調査対象

1996～2002年にかけて、東京都及び埼玉県内の新築住宅（戸建24軒、集合14軒）を対象に、各住宅1～2室（全55室）の室内空気を調査した。全ての住宅は築後月数0～6ヶ月以内である。なお0ヶ月は、完成直後の未入居住宅を表す。日常生活での濃度レベルを把握するため、測定時は通常の居室使用状況下で空気採取を行った。ただし、未入居住宅に

ついては、閉め切り状態で採取した。閉め切り状態では換気回数が居住住宅の1/2として、測定値の濃度を補正した。また、物質放散量は、温度（アルデヒド類は温湿度）の影響を受けるため、室温20（湿度50%）を基準として、濃度を補正した。

2. 測定物質

測定した物質は、HCHO（55室）、アセトアルデヒド（20室）、トルエン（51室）、エチルベンゼン（45室）、キシレン（45室）、スチレン（51室）、*p*-DCB（50室）、ナフタレン（29室）及びブタノール（43室）の9物質である。

3. アルデヒド類の測定

1) 採取および分析 ～ の方法の、いずれかを適時選択し、室内空気を採取した。

ホルムアルデヒド・二酸化窒素用パッシブガスチューブ（柴田科学）または DSD-DNPHサンプラー（SUPELCO）を用い、パッシブ法により24時間採取した。1996～2002年に採取したほとんどの住宅は、簡便な の方法を用い採取した。2001年以降は の方法も利用した。

Sep-Pack XpoSure アルデヒドサンプラー（Waters）を用い、アクティブ法により流量1 L/minで、30分間採取した（吸引空気量：30 L）。2001年以降に採取した未入居住宅の多くは、この方法を用いた。

Sep-Pack DNPH-silica カートリッジ（Short body, Waters）を用い、アクティブ法により流量300 mL/minで、日中に6～8時間採取した（吸引空気量：100～130 L）。この方法は1996年の一部の住宅で利用した。

、 の分析は既報の方法にしたがって行った²⁾。 のDSD-DNPHサンプラーによる分析法については、以下に述べる。

2) DSD-DNPHサンプラーによる分析法 操作のフローシートを図1に示す。サンプラーを測定場所の空気に24時間暴露

* 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, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073 Japan

** 東京都立衛生研究所環境保健部

した後、保存用チューブと専用の袋に入れて密閉し、分析直前まで4 に保存した。採取後2週間以内にアセトニトリル（高速液体クロマトグラフ（以下HPLCと略す）用、関東化学）5 mLで1分以上かけて抽出した。抽出溶液はアセトニトリルで5 mLにメスアップし、HPLC用検液とした。空試験については未使用のサンプラーを用い、同様の抽出操作を行った。HPLCの分析条件を表1に示す。の分析についても、2001年以降は表1の条件で行った。

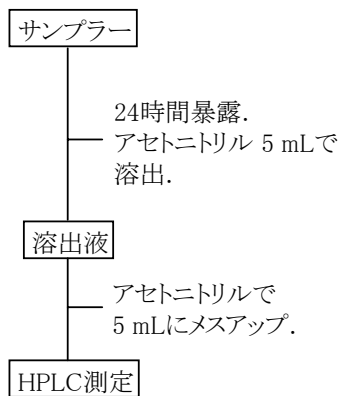


図1. DSD-DNPHサンプラーを用いた操作手順

表1. HPLCの条件

カラム	ZORBAX Bonus RP 4.6 mm i.d. × 25 cm 5 μm
カラム温度	40 °C
移動相	アセトニトリル/水/テトラヒドロフラン 60/40/0.1
流速	1.0 mL/min
注入量	20 μL
検出波長	360 nm

4. VOCの測定

～ の方法の、いずれかを適時選択し、室内空気を採取した。

TenaxTA (200 mg) を充填したステンレス製チューブ

(ATD400用、Perkin-Elmer) を用い、パッシブ法により24

時間採取、または アクティブ法により流量100 mL/minで、30分間採取した（吸引空気量：3 L）。1996～2002年に採取したほとんどの住宅は、簡便な の方法を用いた。2001年以降に採取した未入居住宅の多くは、 の方法を用いた。

Sep-Pack Plus PS-2 カートリッジ (Waters) を用い、アクティブ法により流量300 mL/minで、日中に6～8時間採取した（吸引空気量：90～120 L）。この方法は1996年の一部の住宅で利用した。いずれも、分析は既報の方法にしたがって行った^{3,4)}。

5. 統計処理

調査年と物質濃度との関係を解析するため、調査年、築後月数及び物質濃度を変数とし、偏相関分析を行い、相関係数を求めた。相関関係の有無については、無相関の検定を行った。統計処理は、エクセル統計（統計解析アドインソフト）を用いた。

結 果

1. 調査居室

表2に、各調査年の居室数及び各築後月の居室数を示した。各年2～20室、各築後月4～14室と、居室数に違いがあったが、調査年と築後月数との間に関連はなかった。

2. 統計値

各物質濃度の統計値（最大値、最小値、平均値、中央値）と、厚生労働省による室内濃度指針値を表3に示した。

HCHO、トルエンおよびp-DCBの最大値は、指針値を超えていた。特にトルエンの場合は指針値の約7倍（494/70）、p-DCBの場合も約5倍（207/40）と非常に高濃度であった。一方、最小値は各物質とも低く、エチルベンゼン、キシレン、ブタノール以外の6物質は、検出下限値以下であった。

中央値については、前回（1997～1998年）著者らが行った、一般住宅室内の化学物質濃度実態調査⁵⁾より算出した中央値と比較した。HCHOについては、今回が26.0 ppbであり、前回の調査値（32.6 ppb）より低かった。また、トルエン（11.5 ppb）、エチルベンゼン（2.3 ppb）、キシレン（3.4 ppb）及びスチレン（0.44 ppb）は、今回の方

が2～6倍高かった。このことは、前回の調査は、東京近郊の一般住宅を対象に、通常居室使用状況下で行ったもので

表2. 調査居室数

築後月数 (ヶ月)	調査年							計
	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	
0(未入居)	1	—	—	—	1	10	2	14
1	—	2	—	—	—	2	—	4
2	1	4	2	—	2	2	—	11
3	2	2	—	1	2	2	—	9
4	2	1	—	1	2	—	—	6
5	—	—	—	—	2	4	—	6
6	—	1	2	—	—	—	2	5
計	6	10	4	2	9	20	4	55

—: 未調査

表3. 各物質濃度の統計値と室内濃度指針値

調査年	HCHO	アセトアルデヒド	トルエン	エチルベンゼン	キシレン	スチレン	p-DCB	ナフタレン	ブタノール
最大値	141	18.4	494	39.4	61.1	22.0	207	2.9	27.8
最小値	1.7	3.9	0.56	0.69	0.95	0.08	0.12	0.13	0.50
平均値	37.7	6.6	74.4	6.6	10.8	4.4	20.4	0.56	4.5
中央値	26.0	6.1	28.1	4.6	7.2	2.7	1.6	0.26	1.8
指針値	80	30	70	880	200	50	40	—	—

単位:ppb

指針値:厚生労働省による化学物質室内濃度指針値

表4. 各調査年の平均濃度

調査年	HCHO	アセトアルデヒド	トルエン	エチルベンゼン	キシレン	スチレン	p-DCB	ナフタレン	ブタノール
1996	54.9	7.2	11.5	—	—	1.8	0.51	—	—
1997	69.9	—	143	10.9	15.5	6.1	16.8	0.37	7.7
1998	59.3	—	27.2	4.9	8.0	5.6	1.3	0.21	26.3
1999	21.9	—	18.2	12.4	32.1	2.3	32.4	0.43	15.2
2000	21.1	6.7	30.2	3.2	4.9	6.0	52.7	1.1	1.8
2001	24.8	6.8	102	6.3	10.7	4.5	21.0	0.55	3.3
2002	19.3	4.2	24.6	4.2	5.5	1.3	6.0	0.13	1.0

単位:ppb

—:未調査

あり (n=99 ~ 345), 新築住宅に限定して行ったものではないためと考えられ, 建材や内装材等から揮発する住宅由来のVOCは, 新築住宅で高くなることが示唆された。

3. 調査年と物質濃度

各調査年の平均濃度を表4に示した。HCHOの平均濃度は1998年までは約60 ppb前後だったが, 1999年を境に約20 ppbと、1/3程度に低下した。その濃度分布は, 1998年までは居室間でのばらつきが大きく, 指針値 (80 ppb) 以上の居室が6室みられた。しかし1999年以降は, 低濃度に集中しており, 指針値以上の居室はみられなかった。

VOC各物質については, 各調査年で約2 ~ 3倍, トルエンでは12倍 (143/11.5), p-DCBについては, 100倍 (52.7/0.51) 近い差がみられた。また調査年間でばらついており, HCHOのような年次の傾向はみられなかった。指針値以上の濃度を示した居室は, トルエンでは10室 (1997年及び2000 ~

2001年), p-DCBでは8室 (1997年及び1999 ~ 2001年) あり, 各年に渡って検出された。

4. 物質濃度の推移

物質濃度の年次推移を図2 ~ 4に示した。またHCHOの偏相関分析の結果を表5に, トルエンの偏相関分析の結果を表6に示した。

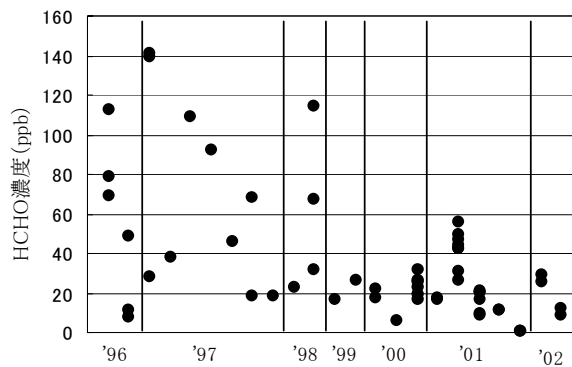


図2. HCHO濃度の年次推移

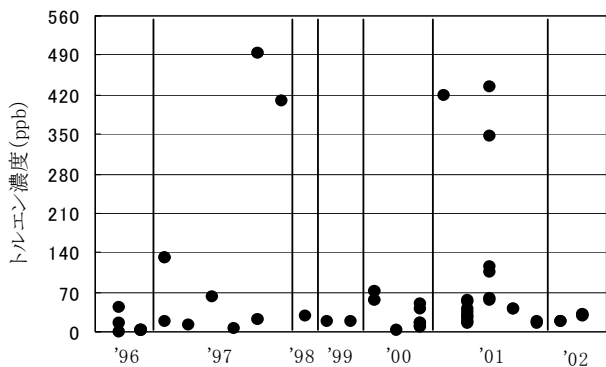


図3. トルエン濃度の年次推移

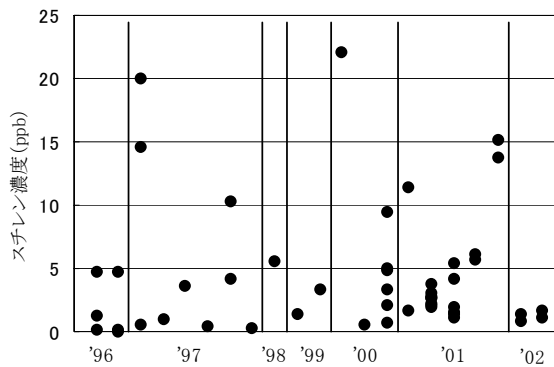


図4. スチレン濃度の年次推移

年次推移をみると、HCHOについては、1996年から2002年にかけて徐々に低濃度に推移してきたのが観察できた（図2）。しかし、トルエンやエチルベンゼン、キシレン、*p*-DCBは図3のように、調査年に関係なく稀に高濃度を示した。またその他のスチレンやナフタレン、ブタノール、アセトアルデヒドは、図4のように毎年同じような濃度を示した。

散布図でみられた傾向は、偏相関分析でより明らかにでき、HCHOでは、調査年と濃度との間に、有意水準1%で負の相関（-0.524）が認められ（表5）、調査した期間においては、近年ほど低濃度になっていることが分かった。その他の物質については、濃度と調査年との間に偏相関は認められなかった（表6）。

表5. HCHOの偏相関係数

偏相関	調査年	築後月数	HCHO濃度
調査年	1.000		
築後月数	0.039	1.000	
HCHO濃度	-0.524**	0.179	1.000

**有意水準1%で有意である

表6. トルエンの偏相関係数

偏相関	調査年	築後月数	トルエン濃度
調査年	1.000		
築後月数	-0.070	1.000	
トルエン濃度	-0.024	-0.331*	1.000

*有意水準5%で有意である

考 察

新築住宅におけるHCHO濃度の年次推移を見ると、1998年に境に低くなり、1999年以降は低濃度に集中していた。これは1997年に設定された指針値の効果が現れたためと思われる。

厚生労働省による室内濃度指針値の設定は、国によるシックハウス対策の一つであり、同時に国土交通省、経済産業省、農林水産省、文部科学省及び環境省で、空気汚染の原因分析や防止対策などが進められている。経済産業省や農林水産省を中心とする建材関係は、指針値設定以前に、日本工業規格や日本農林規格による合板や複合フローリング等のHCHO放出量の規格を規定した。その規格の生産シェアは、指針値が設定された1997年を境に、放出量の多いE2やFc2（放出量：5.0 mg/L以下）から、放出量の少ないE0やFc0（放出量：0.5 mg/L以下）へとシフトしてきた⁶⁾。例えば複合フローリングのFc0のシェア率は、33%（1997年）から、88%（2000年）に増加した。これは、室内濃度の指針値やシックハウスに関する情報が広く知られるようになり、住宅メーカーや施主がE0やFc0の合板等を選択するようになったため、シェア率が変化したと考えられる。

現在、HCHO低減のための製品としては、低HCHOの合板やパーティクルボード等、あるいはノンホルマリンの接着剤や壁紙が普及している。壁紙についてはSV（0.05 ppm以下）やISM（0.01 ppm以下）の安全規格が規定され、低HCHOの壁

紙を選択する事ができるようになった。その他にも、HCHOを除去するための吸収シートや空気清浄器などが製品化されている⁷⁾。これら製品からの発生量、あるいは除去能については様々であるが、建材メーカーの他、家電メーカーなど様々な業種で、室内汚染を低減させる取組みが進んでいるといえる。上記のような対策及びメーカーや施主の意識の向上などにより、新築住宅室内のHCHO濃度が低下したと考えられる。

また、対策の一環として、ホルマリン系接着剤の改良も重要であった。ホルマリン系接着剤は、合板等の製造から壁紙の接着まで、幅広く使用されていたが、HCHOを多量に発生するため、ノンホルマリン系接着剤の開発が必要であった。指針値が設定された当時、HCHOの代替物質として、類似した化学物質であるアセトアルデヒドの使用と増加が懸念されていた⁸⁾。しかし今回の調査結果をみると、1996年（7.2 ppb）と2000年以降（約6 ppb）のアセトアルデヒド平均濃度に変動は見られず、HCHOの代わりに利用されたという実態は観察できなかった。実際には、メーカーの広告等から、ノンホルマリン系接着剤には酢酸ビニル樹脂やビニルウレタン系が使われていることが確認できたので、このことから、HCHOが減少して一方で、これらの化学物質が増加していると推察される。

一方VOCでは、HCHOのような年次的な濃度減少が見られなかったのは、VOC各種の指針値設定が2000年以降で日が浅いため、低減化対策が徹底していないことが一因と思われる。VOC類は、木材保存剤や塗料、ニス、接着剤などの溶剤として、非常に多用されており、なかでも接着剤は使用量及び用途が多い。VOC類をほとんど含まないエマルジョン系接着剤を用いることで、その発生量を少なくできるが、接着剤が低下するため、湿度の高い箇所等には不向きである。したがって、有機溶剤を含む接着剤が、引き続き使用されていると思われる。調査結果からは、特にトルエンの室内濃度が高くなることが観察でき、指針値以上の室内が10室みられた。そのうち9室は築後2ヶ月以内であり、また築後月数と濃度との間に、有意水準5%の負の相関（-0.331）が認められたことから、新築住宅の中でも、新しいほどトルエン濃度が高くなることが確認できた。このことから、トルエン等の有機溶剤を含む接着剤や塗料等を使用する場合は、施工後数ヶ月間は入居せず換気を行うなどの対策を取るべきであろう。

ま と め

今回の調査で、1997年に指針値が設定されたHCHOの新築住宅室内濃度が、近年になって低減してきた事が確認できた。これはHCHOを含まない合板等や接着剤などの製品が、指針値設定を機に、広く使用されるようになったためと考えられた。しかし、現在市場に多く出回っているノンホルマリン製品には、HCHO以外の化学物質が代替物質として使用されていることがあり、それらの化学物質濃度が増加している可能性がある。したがって、HCHO以外の化学物質に

よる室内空気汚染に対し、今まで以上に注意しておく必要がある。

付 記

(本研究の概要は、平成13年度室内環境学会研究発表会2000年12月で発表した。)

文 献

- 1) 室内空気中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定法等について：厚生労働省，2002年2月。
- 2) 齋藤育江，瀬戸博，多田宇宏，他：東京衛研年報，48，250-254，1997。
- 3) 瀬戸博，齋藤育江，竹内正博，他：東京衛研年報，50，240-244，1999。
- 4) 齋藤育江，瀬戸博，多田宇宏，他：東京衛研年報，48，255-260，1997。
- 5) 居住環境の安全性に関する研究：東京都立衛生研究所，2000年3月。
- 6) 小林秀幸：シックハウス対策の現状，空気清浄，39(6)，352-359，2002。
- 7) 小峯裕己：設備機器・生活用品に関わる室内化学物質空気汚染防止対策，第12回健康住宅セミナー(東京)，33-49，2001年6月。
- 8) 第1回シックハウス(室内空気汚染)問題に関する検討会議事録：厚生省(旧)，2000年4月。