

異臭のあった新築ビルの化学物質濃度

齋藤 育江*, 瀬戸 博*, 上村 尚**

Characteristic Chemicals in Indoor Air of a New Building Complained of a Foul Smell

Ikue SAITO*, Hiroshi SETO* and Hisashi KAMIMURA**

Keywords: 室内空気 indoor air, シックビルディング症候群 sick building syndrome, ホルムアルデヒド formaldehyde, 揮発性有機化合物 volatile organic compounds, トルエン toluene, キシレン xylene, ブタノール butanol

はじめに

新築あるいは改築した建物内で発生する化学物質によると考えられる異臭や不快な症状を訴えるケース、いわゆるシックハウスまたはシックビルディング症候群の発症が跡を絶たない。建築現場では様々な建材、塗料、接着剤等が使用されている。これらの材料の中には多種類の化学物質が含まれており、工事期間中に十分に蒸散しきれず、残留したホルムアルデヒドや揮発性有機化合物 (VOC) が竣工後も放散し続けることが原因と考えられる。

しかし、発症の原因となる化学物質が特定され、症状との因果関係が証明されたという報告は少ない。化学物質の種類が多いことと、症状の訴え自体が主観的である上、数量化しにくいこと等が解析を難しくしている理由であろう。ホルムアルデヒドやトルエンが高濃度に検出された千葉県での事例¹⁾のように、通常は、厚生労働省の設定した指針値を超えた物質が原因物質とみなされることが多い。逆に、指針値のない物質は見逃されることが懸念される。

本報では、竣工直後のビルに入館した多数の人が、異臭及び体調不良を訴えた事例に関して、室内空気濃度測定とボランティアによる臭気の官能試験を行い、臭気の原因物質について解析を試みたので報告する。

実験方法

1. 調査対象ビルの概要

調査対象ビルは鉄筋鉄骨コンクリート造り、地下2階、地上6階、総床面積10,023m²で竣工が1997年10月である。建物の使用目的は生物及び理化学系の試験研究施設 (職員数155名) である。空調はオールフレッシュ外気導入である。一般的な実験室の内装は床がビニル床シート (JIS A 5705) をビニル系接着剤で貼り付けたもの、壁は化粧せっこうボード (JIS A 6901)、天井はロックウール化粧吸音板 (JIS A 6301) で施工されていた。居室部分の床は、OAフロア (ネットワーク配線用二重床) でゴム底パイルカ

ーペット、壁・天井の材質は実験室とほぼ同様であった。階段部分は地下2階から地上6階まで約40mを垂直に貫き、各階に非常用扉があるが換気設備はなかった。床及び階段の歩行する部分はビニルシート貼り、階段の裏面及び手すりは塗装がなされ、壁には壁紙が貼られていた。

2. アンケート調査の方法

竣工直後の11月11日から施設見学会が3日間あり、その際、異臭や頭痛等を訴える職員が多数いたので、職員 (20~50歳台) を対象にアンケート調査 (表1) を行った。アンケートは無記名とし、退出時に回収した。

表1. アンケート質問表

新館に入室されたときのご気分についてお尋ねします。該当する箇所には○をつけてください。

- 見学したフロアは、
B2 B1 1F 2F 3F 4F 5F (複数回答可)
- 滞在時間は、合計 時間 分
- 新館滞在中に臭いや気分の変化を感じましたか
感じた 感じない
- 感じた方に気分の変化をお尋ねします (複数回答可)
A.喉がイガイガする・痛い B.鼻が刺激される C.
目がチカチカする D.気分が悪い・胸がむかむかする
E.吐き気がする F.頭が痛い G.じんましんがでる
H.身体がだるい I.意欲がなくなる J.その他 ()
性別 (男 女) 年齢 (歳)

3. 空气中化学物質濃度の測定

アンケート調査と平行して、館内の空气中化学物質濃度の測定を10ヶ所同時に行った。その後も、1ヶ月ごとに空气中化学物質濃度測定を行った。ホルムアルデヒドはパッ

* 東京都健康安全研究センター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

* Tokyo Metropolitan Institute of Public Health

3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073 Japan

** 東京都健康安全研究センター環境保健部

シブガスチューブ（柴田科学（株）製）を用い24時間サンプリングの後、既報²⁾により分析を行った。VOCの測定は、Tenax TA 200 mgを充てんしたステンレス製加熱脱着チューブ（パーキンエルマー社製）を用いて24時間パッシブサンプリングの後、ガスクロマトグラフ質量分析法により行った³⁾。VOCのアクティブサンプリングはORBO91Lチューブ（SUPELCO, シグマ-アルドリッチ社製）を用い毎分約100 mLの空気を吸引捕集し、既報⁴⁾により分析を行った。

4. 発生源調査

竣工3ヵ月後に実験室Aにおいて、発生源の調査を行った。ステンレス製バット（内寸15×21×5 cm）内にパッシブサンプラーを設置し、床、壁、天井、実験台等の表面を覆った。24時間後に同サンプラーを取り出し、捕集した化学物質を前述の方法で測定した。本法は発生源付近を箱状の容器で囲い込むことにより、内部の化学物質濃度が高まることを利用した方法で、容器の換気回数が分かれば発生速度を算出することができる（ボックス法）。調査の際は、室内の換気を良くしておくのが望ましいが、今回は換気設備の作動はせずに調査を行った。

5. 臭気官能試験

竣工4ヶ月後に空気中化学物質濃度測定を行った10ヶ所について6名のボランティアの嗅覚パネル（以下パネル）による臭気の官能試験を行った。臭気レベルは、0:臭わない、1:やや臭う、2:臭う、3:やや強く臭う、4:強く臭うの5段階評価とした。但し、中間点を記載した場合はそのまま採用した。また、移動順序は全員共通とし、滞在時間は臭気程度を評価するのに必要な最低限とした。

結果及び考察

1. アンケートの集計結果

アンケートの集計結果を表2に示した。入館者202名の内、120名から回答が得られた（回答率59.4%）。異臭や体調変化を訴えた職員は94名（78%）で特に女性では89%の高率であった。この傾向は1日ごとに集計しても同

様であった。体調変化の内訳では、回答が多かった順にB鼻が刺激される、C目がチカチカする、A喉がイガイガする・痛い、D気分が悪い・胸がむかむかする、F頭が痛い等の症状がみられた。滞在時間との関連はなかった。

2. 空気中化学物質濃度の測定

アンケートの結果から、何らかの化学物質が館内に充満しているために異臭がしていると考え、2階の実験室Bの空気採取と分析を行った。ホルムアルデヒドは25.3 µg/m³で特に高いというレベルではなかった。表3に示すようにVOCは40種類を調査したが、トルエン、エチルベンゼン、キシレン、ブタノールの濃度が際立って高かった。

3. 館内の空気中化学物質濃度比較

ホルムアルデヒド及び比較的高濃度であったVOCを選び館内10ヶ所においてパッシブサンプラーにより測定した結果を表4に示した。ホルムアルデヒド濃度は、実験室では25.3~40.0 µg/m³に対し、階段では12.8~13.6 µg/m³で実験室の方がやや高かった。VOCの中で最も濃度が高かったのは、すべての測定場所に共通してトルエンで、厚生労働省の指針値（260 µg/m³）を超過する場所もあった（当時は指針値未設定）。トルエン濃度は階段と実験室との間で明確な相違を認めなかったが、エチルベンゼン、キシレン、ブタノール濃度は実験室に比べ階段の方が低かった。

4. 空気中化学物質濃度の経時変化

館内10ヶ所においてパッシブサンプラーを用いて、1ヶ月毎に空気中濃度を測定した。1例として実験室Aで測定した結果を図1に示した。調査時の室温は、0, 1, 2, 3, 4ヶ月後に各々22.0, 16.0, 12.3, 10.0, 15.6℃であった。物質により減衰程度は異なるが3ヶ月で1/2から1/4に低下した。4ヶ月目で上昇に転じたが、これは室温が3ヶ月目から4ヶ月目にかけて10℃から15.6℃に上昇したために放散量が一時的に増加したためと考えられる。トルエン、エチルベンゼン、キシレンの減衰傾向は相似していた。一方、ブタノールは他のVOCに比べて初期の減衰が遅い傾向があった。

表2. 竣工後の入館者に対する臭気と症状の有無に関する調査結果

数値は人数、（ ）内は男女別回答総数に対する%

性別	人数	異臭を感じたり体調変化があった人（複数回答）										合計
		A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	
男	74	14	20	16	6	1	5	0	0	4	1	53 (72)
女	46	9	21	11	16	4	10	0	2	8	5	41 (89)
合計	120	23	41	27	22	5	15	0	0	12	6	94 (78)

入館者総数 202名、回答率 59.4%

A.喉がイガイガする・痛い B.鼻が刺激される C.目がチカチカする D.気分が悪い・胸がむかむかする E.吐き気がする F.頭が痛い G.じんましんがでる H.身体がだるい I.意欲がなくなる J.その他

その他の回答は、男性では胃が痛い、女性では息苦しい、食欲低下等であった。

滞在時間は15分から5時間の範囲で症状との関連はみられなかった。

表3. 実験室Bの空气中VOC濃度

No.	化合物名	濃度 (µg/m ³)	No.	化合物名	濃度 (µg/m ³)
1	Hexane	8.6	21	1,2,3-Trimethylbenzene	1.1
2	Heptane	1.2	22	1,2,4,5-Tetramethylbenzene	0.16
3	Octane	0.62	23	α-Pinene	2.1
4	Nonane	2.7	24	Limonene	0.47
5	iso-Octane	0.13	25	Trichloroethylene	4.8
6	Decane	6.6	26	Tetrachloroethylene	3.7
7	Undecane	3.4	27	Chloroform	1.6
8	Dodecane	4	28	1,1,1-Trichloroethane	0.84
9	Tridecane	6.3	29	1,2-Dichloroethane	0.09
10	Tetradecane	10.4	30	1,2-Dichloropropane	0.6
11	Pentadecane	2.4	31	p-Dichlorobenzene	1.7
12	Hexadecane	5.9	32	Carbon tetrachloride	0.37
13	2,4-Dimethylpentane	0.32	33	Chlorodibromomethane	<0.15
14	Benzene	4	34	Ethyl acetate	10
15	Toluene	205	35	Butyl acetate	7.2
16	Ethylbenzene	75	36	Methylethylketone	8.7
17	Xylene	110	37	Methyl-iso-butylketone	2.6
18	Styrene	0.9	38	Butanol	75
19	1,3,5-Trimethylbenzene	1.5	39	Nonanal	5.9
20	1,2,4-Trimethylbenzene	4.5	40	Decanal	<1.9
				合計	580.4

ORBO91Lによるアクティブサンプリング(24時間)

Xyleneは*o*-, *m*-, *p*- 異性体の総和

表4. 竣工直後の館内10ヵ所の室内空气中濃度

(µg/m³)

場所	階	区分	Formaldehyde	Toluene	Ethylbenzene	Xylene	Styrene	Butanol	TVOC ²⁾
A	1F	実験室	34.9	621	185	279	6.8	320	1,410
B	2F	実験室	25.3	215	76.1	119	3.1	63.1	476
C	3F	実験室	31.6	382	83.5	136	3.8	102	707
D	3F	実験室	36.7	295	97.3	159	5.9	115	672
E	3F	実験室	25.3	302	86.5	139	4.9	157	689
F	4F	実験室	40.0	343	97.3	155	6.5	144	746
G	5F	実験室	30.1	428	136	214	6.4	89.4	873
H	5F	居室	37.6	459	152	231	6.7	141	1,000
I	1-2F	階段 ¹⁾	12.8	390	58.1	84.8	3.0	53.9	590
J	3-4F	階段 ¹⁾	13.6	399	57.2	79.3	3.1	57.2	596
O	-	外気	5.8	20.0	4.3	8.7	0.30	0.49	33.8

*1: 地下2階から地上6階まで垂直方向の高さ約40 m, 各階に非常用扉付き, 換気なし

*2: TVOCはToluene, Ethylbenzene, Xylene, Styrene, Butanol の総和

5. 発生源

ボックス法による発生源調査の結果を表5に示した。トルエン, エチルベンゼン, キシレン, ブタノールは主として床から発生していることが判明した。トルエンは壁からも発生していた。床は塩化ビニルシートを接着剤で貼り合わせたもので, VOCの発生源はこの接着剤と考えられた。なお, 天井は無機系のロックウール化粧吸音板でVOCの放散はほとんどないことが確認されている。

表5. 発生源調査結果

(µg/m³)

採取箇所	床	壁	実験台天板
Toluene	2,490	970	112
Ethylbenzene	960	41.7	22.5
Xylene	1,540	75.5	33.9
Styrene	2.9	7.6	0.99
Butanol	150	104	76.4

調査場所: 実験室 A 数値はボックス内濃度

6. 臭気官能試験結果

竣工 4 ヶ月後に館内 10 ヶ所でパネルによる臭気官能試験と空气中化学物質濃度測定を行った。結果を表 6 に示した。パネルは徒歩により表に示す順序で移動した。VOC 濃度は大幅に減少していたが、臭気はまだ残っており、場所によって臭気レベルは異なっていた。どのような化学物質が臭気レベルに関係しているのかを知るため、化学物質濃度を自然対数に変換した上、臭気レベルとの相関分析を行った。その結果、臭気レベルと最も相関が高かったのはキシレン (r=0.536) であったが有意ではなかった。臭気感度の変動を判断するため、総 VOC (TVOC) 濃度 (対数) に対する臭気レベル比を計算すると、実験室 A, B, C, D, E では 0.51~0.56 の範囲であったが、移動順序が後になった実験室・居室 F, G, H では順に 0.42, 0.36, 0.28 に低下していた。

このことから、館内に滞在する間に臭気に慣れ、パネルの感覚が鈍ったのではないかと推察されたので、最初の 7 ヶ所に限って同様に相関分析を行うと、ブタノール、

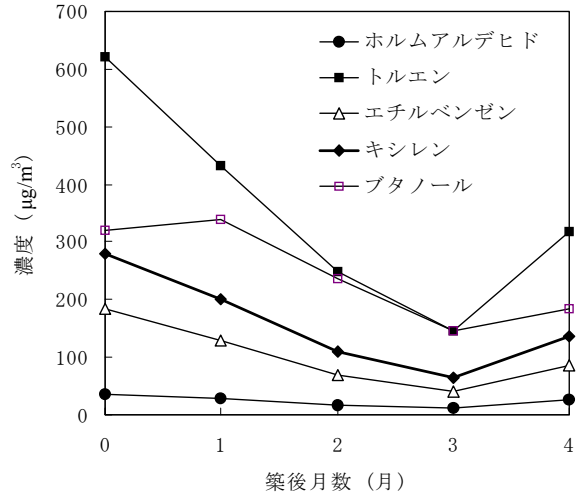


図 1. 室内空气中ホルムアルデヒド及びVOC濃度の経時的変化

表 6. 4 ヶ月後の館内10カ所の室内空气中濃度と臭気官能試験結果 (濃度はµg/m³)

順序 ¹⁾	場所	階	区分	Formaldehyde	Toluene	Ethylbenzene	Xylene	Styrene	Butanol	臭気 ²⁾
1	A	1F	実験室	27.0	317	86.9	137	4.0	183	3.7
2	I	1-2F	階段 ³⁾	17.8	146	17.2	29.8	1.6	28.6	1.5
3	B	2F	実験室	35.3	89	22.8	40.3	1.3	49.4	2.8
4	C	3F	実験室	28.7	86	19.3	32.6	0.8	42.3	2.7
5	D	3F	実験室	42.3	103	26.2	42.4	2.9	64.9	2.8
6	E	3F	実験室	31.8	109	30.7	49.6	2.3	71.7	3.1
7	J	3-4F	階段 ³⁾	12.0	158	16.1	25.9	1.3	30.7	2.0
8	F	4F	実験室	20.4	107	28.2	42.9	2.8	82.7	2.3
9	G	5F	実験室	39.0	254	60.0	88.0	5.3	126	2.3
10	H	5F	居室	30.7	146	43.8	59.9	5.9	111	1.7

*1: パネルが移動した順序

*2: 臭気は6名のパネルの平均臭気レベル

*3: 地下2階から地上6階まで垂直方向の高さ約40 m, 各階に非常用扉付き, 換気なし

表 7. 移動にともなう化学物質濃度の対数差及び臭気レベル差の単相関分析表

	Formaldehyde	Toluene	Ethylbenzene	Xylene	Styrene	Butanol	臭気 ¹⁾
Formaldehyde	1.000						
Toluene	0.079	1.000					
Ethylbenzene	0.746*	0.498	1.000				
Xylene	0.763*	0.497	0.999**	1.000			
Styrene	0.662	0.372	0.738*	0.729*	1.000		
Butanol	0.762*	0.268	0.962**	0.956**	0.736*	1.000	
臭気	0.706	0.153	0.851**	0.858**	0.470	0.899**	1.000

*1: 臭気は6名のパネルの平均臭気レベル, *: p ≤ 0.05, **: p ≤ 0.01

エチルベンゼン, キシレンとの相関係数が高く, それぞれ 0.919, 0.838, 0.835 で有意であった.

そこで, パネルの移動にともなう生ずる化学物質の濃度の対数差とパネルの臭気レベル差に着目し, 10ヶ所すべてのデータを用いて同様に相関分析を行った. その結果, を表7に示した. 臭気レベルはブタノール, キシレン, エチルベンゼンとの相関が高く, それぞれ相関係数は 0.899, 0.858, 0.851 で1%以下の危険率で有意であった. 一方, 測定した化学物質の中で最も高濃度であったトルエンと臭気レベルとの相関は低かった($r=0.153$). VOC間では, キシレン, エチルベンゼン, ブタノール相互の相関が高かったが, トルエンはどのVOCとも有意な相関が認められなかった.

7. 異臭の原因物質について

トルエン, エチルベンゼンの臭覚閾値⁵⁾ (表8)は表6の測定値よりもはるかに高く, これらは臭気の原因物質とは考えにくい. キシレンの異性体の中では *m*-キシレンは存在比が高く (今回の調査ではキシレン全体の約2分の1) 臭覚閾値も低いので重要である. しかし, 表6のキシレン濃度の半値が *m*-キシレン濃度とすると表8の臭覚閾値濃度以下である. 一方, ブタノールはこれらの物質の中で最も臭覚閾値が低く, 異臭との関連性が疑われた. 辰市ら⁶⁾によれば, オルファクトメーターを用いる欧州規格では, 臭覚パネルの選定条件として, ブタノール臭覚閾値範囲を 20~80 ppb (60~240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)としているが, 下限濃度以下の閾値を有するがために不合格となるパネルが3分の1もあり, 彼らの最低閾値濃度は 21 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった. すなわち, 表6に示すブタノール単独の濃度でも臭気を感じることは十分あり得ると考えられる. 但し, 竣工直後には VOC 濃度が高かったため, キシレンの寄与もあった可能性は否定できない. また, 臭気以外にも様々な症状が訴えられたが, 数量化が困難で評価はできなかった.

におい測定では, 欧州規格のオルファクトメーター法でも日本の3点比較式臭袋法でも臭覚パネルの選定試験と簡単な訓練が行われている. これは法規制により悪臭防止を図る上で, 測定が客観的に実施されるために必要なことである. しかし, 今回は規制のための試験ではなく, また, すべての人が健康被害を受ける可能性があるとの視点から, 臭覚パネルは, ボランティアとし, 事前の試験や訓練は一切行わなかった.

ま と め

竣工直後のビルに入館した多数の職員が, 異臭及び体調

表8. 臭覚閾値濃度⁵⁾と室内空气中濃度指針値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

化合物名	臭覚閾値濃度	指針値
Toluene	1,240	260
Ethylbenzene	730	3,800
<i>o</i> -Xylene	1,600	
<i>m</i> -Xylene	180	870*
<i>p</i> -Xylene	250	
Butanol	120	—

臭覚閾値濃度は3点比較式臭袋法による.

原典は ppm (V/V) 表示だが, 25°C, 1気圧で換算した.

*: キシレンの指針値は異性体の総和としての濃度.

不良を訴えた事例に関して, 室内空気濃度測定と臭覚パネルによる官能試験を行い, 臭気の原因物質について解析を試みた. 臭気と症状に関するアンケート調査では入館者202名の職員のうち120名から回答が得られた. 異臭や体調不良を訴えたのは94名(78%)で女性では89%の高率であった. 主な症状は, 鼻が刺激される, 目がチカチカする, 喉がイガイガする, 気分が悪い・胸がむかむかする等であった. 館内の化学物質濃度を測定したところトルエン, エチルベンゼン, キシレン, ブタノールが高濃度で検出され, 発生源は床材のビニルシートを貼り付けるのに使用された接着剤と推定された. 館内10ヶ所の化学物質濃度と臭覚パネルによる官能試験を実施し, 両者の関連性をみたところ, ブタノール, キシレン, エチルベンゼンと臭気レベルとの相関が高かった. これらの物質の臭覚閾値を考慮するとブタノールが異臭の原因物質と推定された.

文 献

- 1) 高梨嘉光, 竹田敏晴, 大道正義: 大規模施設の化学物質汚染の実態と対応, 54-61, 2001, 田中正敏著 室内化学物質汚染—シックハウスの実態と対応—, 松香堂, 京都.
- 2) 斎藤育江, 瀬戸博, 多田宇宏, 他: 東京衛研年報, **48**, 250-254, 1997.
- 3) 瀬戸博, 斎藤育江, 竹内正博, 他: 東京衛研年報, **50**, 240-244, 1999.
- 4) 斎藤育江, 瀬戸博, 竹内正博: 東京衛研年報, **49**, 225-231, 1998.
- 5) 環境省 臭気測定レビュー,
http://www.env.go.jp/en/air/odor/measure/02_3_2.pdf
- 6) 辰市祐久, 樋口雅人, 上野広行, 他: 東京都環境科学研究所年報, 80-84, 2004.