

都内新築ビルにおける室内空気中の化学物質の実態調査

角田 徳子^a, 大貫 文^a, 大久保 智子^a, 斎藤 育江^a, 鈴木 俊也^a, 保坂 三継^b

未規制物質を含む化学物質による室内空気汚染の現状を把握するため、都内新築ビルにおいて、アルデヒド類、有機酸類及び揮発性有機化合物(VOC)77種を対象に空気質調査を行った。調査の結果、シックハウス症候群の原因物質とされるホルムアルデヒドをはじめ、厚生労働省から指針値が示された8物質はすべて検出されたが、いずれも低い数値で推移しており、調査期間中、指針値を超過する物質はなかった。この他に未規制物質が50種類検出され、その中でもアセトン、トルエン、酢酸、ギ酸の検出率は調査期間中100%であった。また未規制物質については、ヘキサンが4,280 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、2-ブタノンオキシムが3,570 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と、比較的高濃度で検出され、室内で用いられた建材が発生源であると推察された。多くの物質は夏季に濃度が上昇し、冬季に減少する傾向が見られたが、未規制物質の1種である2-エチル-1-ヘキサノールについては、冬季になっても明らかな濃度減少が見られなかった。

キーワード: 室内空気, 化学物質汚染, 揮発性有機化合物(VOC), ホルムアルデヒド, 未規制物質

はじめに

頭痛や皮膚粘膜への刺激及び呼吸器系の症状を引き起こすシックハウス症候群¹⁾の原因物質の一つとして、ホルムアルデヒドが挙げられる。ホルムアルデヒドは国際がん研究機関 (IARC) によりグループ1 (ヒトへの発がん性あり) に分類される物質であり、塗料や接着剤といった建材に含まれている。厚生労働省で室内濃度指針値が定められた物質の一つであり²⁾、建築基準法により、ホルムアルデヒドを含む建材の内装仕上げへの使用制限や、24時間機械換気設備の設置についての基準が設けられている。建築物衛生法では、新築特定建築物における空气中ホルムアルデヒドの測定について、「使用を開始した日以後最初に訪れる6月1日から9月30日までの間」に実施すると定められている。これに従うと、建築物の使用開始時期によっては、空气中ホルムアルデヒド濃度を把握するまでに時間を要し、長期間に亘り高濃度のホルムアルデヒドにばく露される可能性がある。ホルムアルデヒドを含む指針値物質の室内空気濃度は減少傾向にあるという報告もあるが³⁾、一方で、未規制の化学物質による健康被害も報告されており^{4,5)}、室内汚染状況を的確に把握し健康被害を防ぐには、指針値が設定された化学物質に加え、多くの化学物質をモニタリングする必要がある。このことから筆者らは、都内の新築ビルの室内を対象とし、新築当初 (築後4か月) から、室内空気の化学物質汚染の実態を把握するため、アルデヒド類、有機酸類及び揮発性有機化合物 (Volatile Organic Compounds, 以下VOCと略す) 計77種を対象に、定期的に空気質調査を行った。本報ではこの調査で検出した主な化学物質や、濃度の経時変化などの結果について報告する。

実験方法

1. 調査期間及び調査場所

都内新築ビルの使用目的や仕様が異なる7つの部屋 (部屋A~G) の空気をアクティブ法により30分間採取し分析した。空気の採取は築後4か月 (1月) から1年1か月 (翌年2月) まで、1~2か月に1回ずつ計8回行った。各室の内装材については、壁は化粧石膏ボード、天井はロックウール化粧吸音板で共通していたが、床材は異なっており、部屋A, B, C, Gがタイルカーペット、部屋D, Fがビニルシート、部屋Eが畳であった。また、空調と機械換気は、部屋A及びGについては常時作動していたが、他の部屋では使用時のみの作動であった。また、部屋A~部屋Cは2階、部屋D~部屋Gは3階に位置していた。

2. 測定方法

空気採取装置の概要を図1に示す。未規制物質を含む多種の化学物質測定に対応するため、各部屋において、DNPH誘導体化用のアルデヒド用サンプラー (Sep-Pak XPoSure, ウォーターズ製)、VOC測定用の吸着剤としてTenax TA, Carboxen1016 (ともにSUPELCO製)、有機酸の捕集用としてミリQ水10 mLを吸収液としたインピンジャー (SPCミゼットインピンジャー, 柴田科学製) の4種のサンプラーを用い、ミニポンプ (MP- Σ 30II, 柴田科学製) にそれぞれのサンプラーを接続し、流速はVOCが0.1 L/min, アルデヒドと有機酸が1.0 L/minで30分間空気を採取した。アルデヒド類については高速液体クロマトグラフィー (HPLC) (Infinity 1290, アジレント・テクノロジー製)、VOCは加熱脱着装置 (ATD400, パーキンエルマー製) 及びガスクロマトグラフ質量分析計 (GC-MS) (QP2010, 島津製作所製)、有機酸はイオンクロマ

^a 東京都健康安全研究センター薬事環境科学部環境衛生研究科
169-0073 東京都新宿区百人町3-24-1

^b 東京都健康安全研究センター薬事環境科学部

表 1 H PLC 分析条件

カラム	ZORBAX Bonus RP 250 mm×4.6 mm, 5 μm
カラム温度	40°C
移動相A	アセトニトリル50:水50:テトラヒドロフラン0.1
移動相B	アセトニトリル80:水20:テトラヒドロフラン0.1
グラジエント (%B)	25%(14 min)-25%/min-100%(9 min)
流速	1.0 mL/min
検出波長	360 nm(200-400 nm)

表 2 GC-MS 分析条件

脱着温度	250°C(Tenax TA) 280°C(Carboxen1016)
脱着時間	10 min
流速	30 mL/min
スプリット比	1:20
トランスファー温度	250°C
コールドトラップ温度	2°C-250°C
GC-MS	
カラム	DB-1 0.25 mm i.d.×30 m, 1 μm
キャリアガス	He, 50kPa
検出器温度	200°C
カラム温度	40°C(3 min) - 12°C/min - 220°C(2 min) - 20°C/min - 300°C(1 min)
検出モード	Scan(m/z 45 - 350)

表 3 イオンクロマトグラフィー分析条件

カラム	IonPac™ AG11-HC
移動相	KOH 2.5 mM(8 min)-4 min-40 mM(8 min)
カラム温度	35°C
流速	1.0 mL/min
検出器	電気伝導度 (サブレッサーAERS 500)
注入量	30 μL

表 4 指針値設定物質の最小・最大値及び中央値 (μg/m³)

化学物質	最小値	最大値	中央値	指針値
ホルムアルデヒド	ND	27.0	11.1	100
アセトアルデヒド	ND	17.8	5.5	48
トルエン	3.1	33.0	5.5	260
キシレン	ND	11.4	ND	870
パラジクロロベンゼン	ND	4.6	ND	240
エチルベンゼン	ND	4.5	ND	3,800
スチレン	ND	4.0	ND	220
テトラデカン	ND	3.5	ND	330

ND: 定量下限値 (2.5 μg/m³) 未満

トグラフィー (Dionex™ ICS-1000, サーモフィッシャー製) を用いて分析した。それぞれの分析条件を表1~3に示す。

結果

検出された化学物質の種類と濃度は部屋間で違いがあるが、指針値設定物質の8物質 (ホルムアルデヒド, アセトアルデヒド, トルエン, キシレン, パラジクロロベンゼン, エチルベンゼン, スチレン及びテトラデカン) については、すべてが室内から検出された。しかし、これ

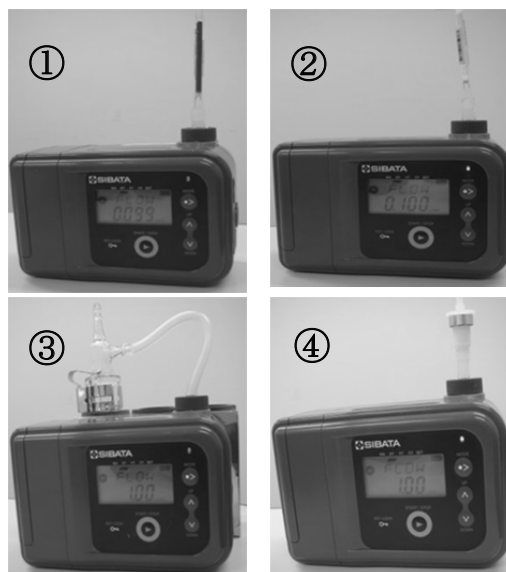


図 1 空気採取装置の概要

(いずれもミニポンプにサンプラーを接続)

- ① VOC 捕集用サンプラー (Carboxen 1016)
- ② VOC 捕集用サンプラー (Tenax TA)
- ③ 有機酸捕集用サンプラー (SPC ミゼットインピンジャー)
- ④ アルデヒド用サンプラー (Sep-Pak XPoSure)

らの濃度は低い値で推移し、調査期間中に指針値を超過することはなかった。指針値設定8物質の濃度の最小値、最大値及び中央値を表4に示す。それ以外の未規制物質については、今回の測定方法では50物質が検出された。

室内から検出された物質の内、トルエン、アセトン、酢酸及びギ酸の4物質については、調査期間中すべての室内で検出された (検出率100%)。また、総揮発性有機化合物 (Total Volatile Organic Compounds, 以下TVOCと略す) については、厚生労働省から暫定目標値として400 μg/m³という数値が提示されているが、ヘキサンが4,280 μg/m³, 2-ブタノンオキシムが3,570 μg/m³と、1物質で400 μg/m³を超過する検出例があった。主な検出物質について、以下に部屋別の傾向及び経時変化を示す。

1. 部屋別の検出物質の傾向

図2に、各部屋の主な検出物質とその割合を示す。なお数値は一年間の平均総濃度を100%とし、各物質の濃度を割合で表したものである。部屋Aはエタノールが最も多く、36%を占めた。部屋B及びDは2-エチル-1-ヘキサノールが最も多かった。部屋Cは化学物質の総濃度平均が全部屋中最も低かったが、ホルムアルデヒドが占める割合が他の部屋に比較して大きかった。部屋E及びGは約50%前後をそれぞれヘキサン、2-ブタノンオキシムが占めていた。部屋Fはアセトンとエタノールがそれぞれ20%前後検出された。

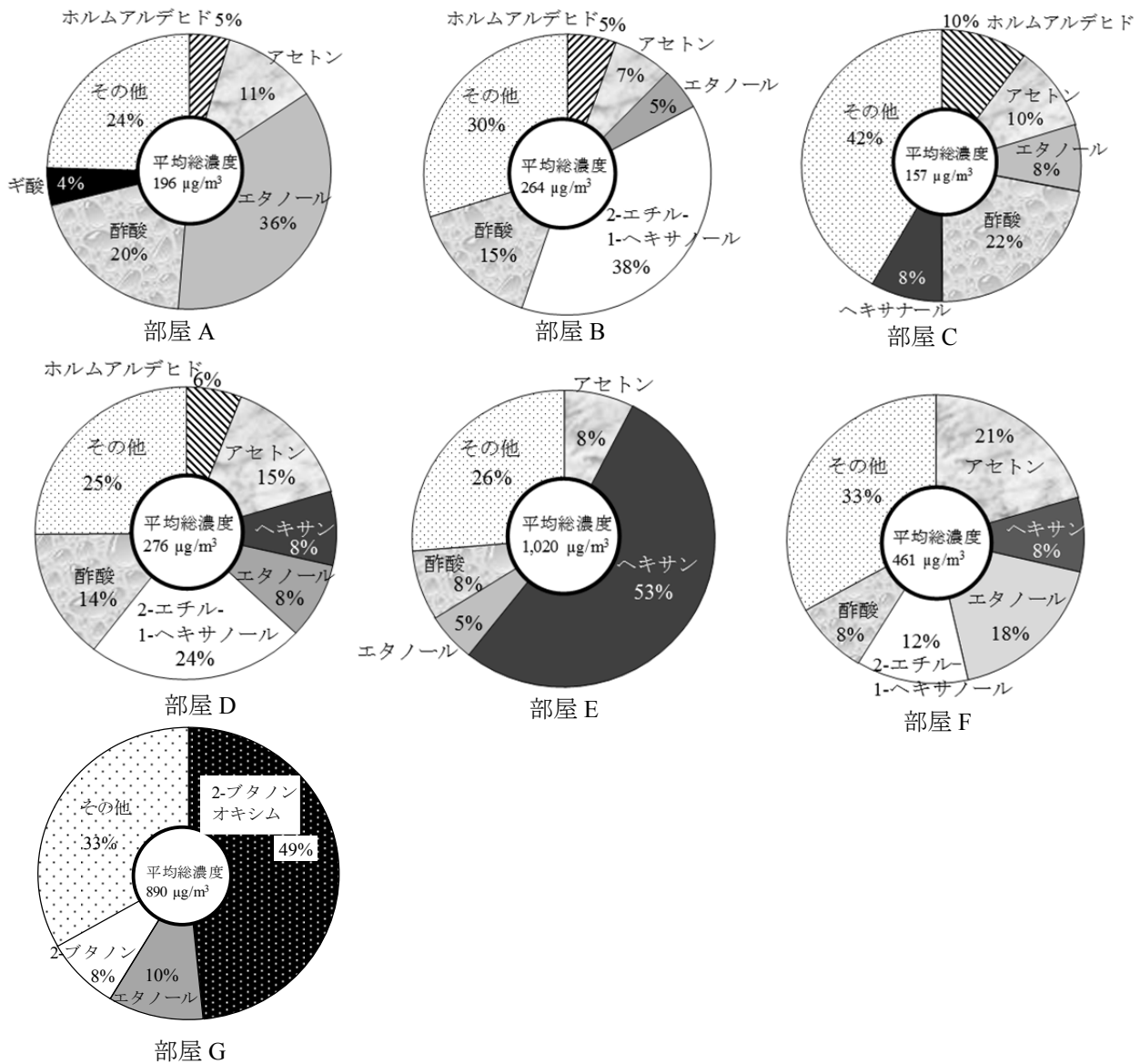


図 2 新築ビルにおける各室内の空气中化学物質の検出割合

2. 主な検出物質濃度の経時変化

以下に、今回の調査において検出率が高かった物質、及び高濃度で検出された物質について示す。

1) ホルムアルデヒド

各部屋の濃度を図3に示す。現在は建材への使用が規制されているが、依然として、家具等からのホルムアルデヒドの放散の可能性は充分にある⁶⁾。今回の調査においても、調査初回月に部屋A及び部屋Fで定量下限値 ($2.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 未満であった以外、すべての調査回及びすべての部屋で検出された (検出率96%)。しかし指針値である $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過することはなく、調査期間中の最高値は部屋Bで $27 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (8月) であった。多くの部屋で、冬季より夏季に濃度が上昇する傾向が見られた。

2) トルエン

各部屋の濃度を図4に示す。塗料や接着剤に含まれており、またヒトへの影響として、 $332 \text{ mg}/\text{m}^3$ の濃度でのばく露で、神経行動変化が起こることが報告されている⁷⁾。調

査期間中に指針値である $260 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過することはない、調査期間中の最高値は部屋Gで $33 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (2月) であった。季節変動は見られなかったが、調査期間を通じて2階の部屋 (A~C) よりも3階の部屋 (D~G) の方が濃度が高い傾向にあった。

3) アセトン

各部屋の濃度を図5に示す。アセトンはネイルリムーバーや建材用合板やカーペットの裏張り、清掃用のワックスや光沢剤にも含まれている。他の工業的な化学物質と比較し、毒性は低いとされるが、約 $560 \text{ mg}/\text{m}^3$ の濃度での4時間ばく露で神経行動試験の行動変化⁸⁾や目への刺激や体重減少⁹⁾などといった人体への影響も報告されている。

調査開始から5か月間は約 $6 \sim 40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で推移していたが、8月に部屋D, E, Fにてそれぞれ $130 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $110 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $290 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と、それまでの各部屋での最高値を大きく上回る濃度で検出された。部屋Eでは10月に更に上昇し、 $320 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と調査期間中での最高値となった。部屋D

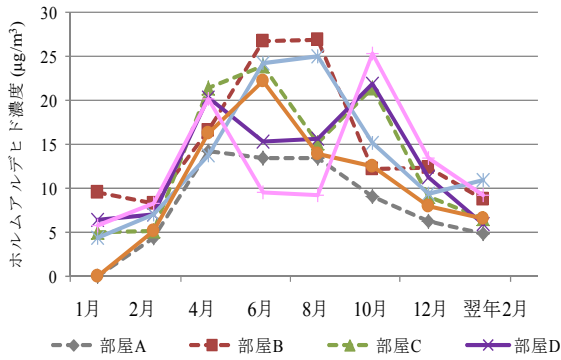


図 3 新築ビル室内空气中のホルムアルデヒド濃度の経時変化

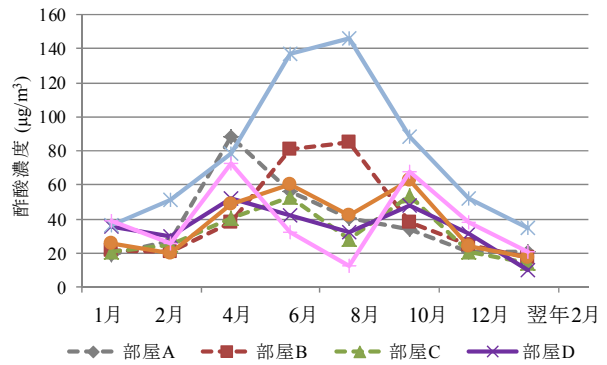


図 6 新築ビル室内空气中の酢酸濃度の経時変化

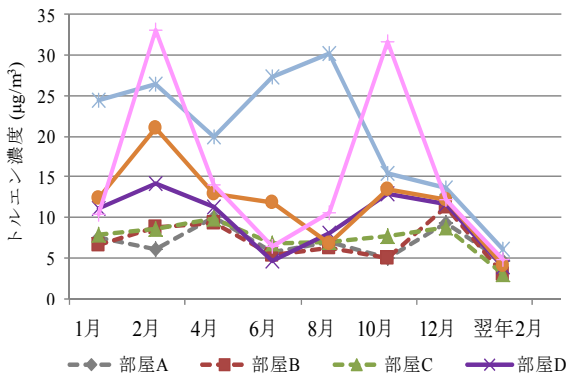


図 4 新築ビル室内空气中のトルエン濃度の経時変化

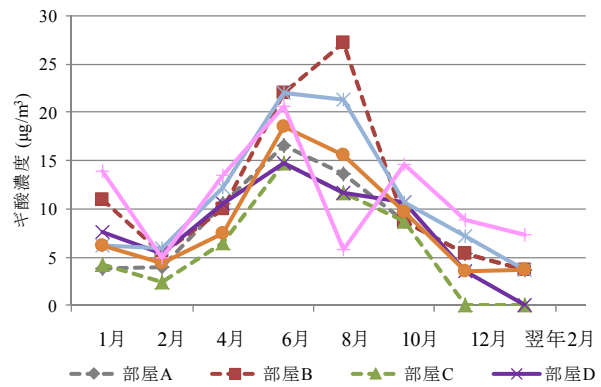


図 7 新築ビル室内空气中のギ酸濃度の経時変化

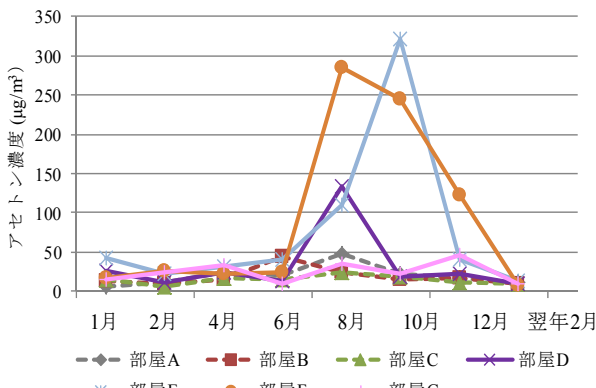


図 5 新築ビル室内空气中のアセトン濃度の経時変化

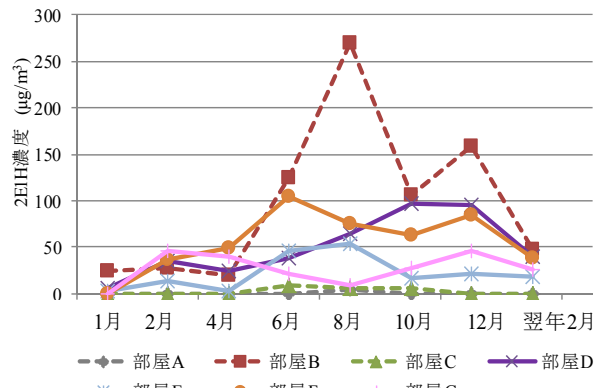


図 8 新築ビル室内空气中の2-エチル-1-ヘキサノール濃度の経時変化

とEにおいては2か月後までには減少したが、部屋Fにおいては6か月間で徐々に減少した。

4) 酢酸及びギ酸

各部屋の濃度を図6及び7に示す。酢酸とギ酸のヒトへの影響は、酢酸では25 mg/m³の濃度でのばく露で、鼻への刺激と臭気¹⁰⁾、ギ酸では3 mg/m³のばく露で眼や気道に対する障害が報告されている¹¹⁾。

酢酸の濃度は部屋E、ギ酸の濃度は部屋Bで他の部屋より高く、それぞれ調査期間中最高値は150 µg/m³ (8月)、27 µg/m³ (8月)であった。

5) 2-エチル-1-ヘキサノール

各部屋の濃度を図8に示す。2-エチル-1-ヘキサノールによる頭痛や吐き気といった自覚症状の出現の閾値は、65.5~336 µg/m³の間にあるという報告がある¹⁵⁾。発生機序は、厚労省の指針値設定物質の1つであるフタル酸ジエチルヘキシル(DEHP)が可塑剤として使用されている床仕上げ剤において、強アルカリ下でのDEHPの加水分解の進行で放散されると指摘されている¹⁶⁾。他の化学物質の挙動と異なり、夏季を過ぎて冬季へ向かって明らかな濃度減少が見られず、8月より12月の方が濃度が高い部屋が複数存在した。調査期間中の最高値は部屋Bでに270

$\mu\text{g}/\text{m}^3$ (8月)であり、その後も増減を繰り返しながら放散が続いているが、部屋AとCでは調査期間を通じほぼ検出されなかった。

6) ヘキサン

ヒトへの影響については、約3,500~8,900 mg/m^3 の濃度でのばく露により、多発性神経炎を起こすという報告がある¹²⁾。1月に部屋Eで4,280 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と比較的高濃度で検出され、翌月には6.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と急激に減少し、その後は10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度で推移した。

7) 2-ブタノンオキシム

2-ブタノンオキシムは、マウス及びラットでの動物実験において、約1,330 mg/m^3 の濃度でのばく露で、肝細胞の癌化が指摘されており¹³⁾、また培養肝細胞への終濃度5 mMのばく露で、グルタチオンの低下を引き起こすと報告されている¹⁴⁾。2月に部屋Gで3,570 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と比較的高濃度で検出されたが、4月には2.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と濃度が低下し、それ以降は定量下限値未満であった。

また、ヘキサンと2-ブタノンオキシムについては、比較的高濃度での検出が1度のみ且つ1部屋のみであり、それ以外の調査では低濃度もしくは定量下限値未満であったことからグラフは示していない。

考 察

今回、調査した新築ビルの室内から多くの化学物質が検出されたが、その大半にあたる50物質が厚生労働省による指針値の設定がなされていない未規制物質であった。TVOCの暫定指針値である400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を1物質で超過したヘキサンと2-ブタノンオキシムも未規制物質である。部屋Eにおけるヘキサンの検出は、室内の板張りの部分へのヘキサンを含むベンジン（ヘキサン含有率60%以上）等の洗浄剤を用いた清掃に起因する可能性が考えられる。当該板張り部分が存在するのは部屋Eのみであった。また部屋Gにおける2-ブタノンオキシムの検出については、発生源調査の結果、空気採取前日の室内工事で使用されていたシリコンシーラントが発生源であることがわかった¹⁷⁾。

多くの化学物質の濃度は夏季に上昇し冬季に低下する傾向にあったが、これは夏季の温湿度により建材からの放散が促されたためと考えられる。各部屋間で検出された化学物質の種類や濃度には違いがあるが、これは室内で用いられている床材及び壁材といった建材等が異なる

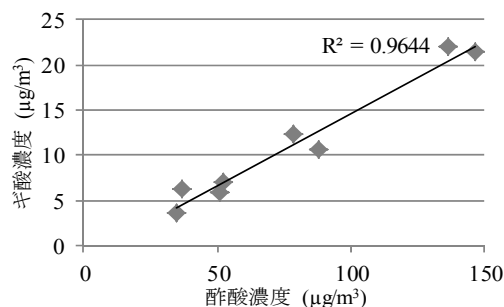


図 9 部屋 E における酢酸濃度とギ酸濃度

ためであると考えられる。

部屋D, E及びFについては、8月から一時的にアセトンの濃度が上昇した。この3部屋は同じフロアに存在し、共通の廊下に面していたことから、空気採取の前にこの廊下でアセトンを含む床のワックスがけや洗剤を用いた清掃が行われた可能性が考えられる。

部屋Eにおいては酢酸が他の部屋よりも高濃度で検出された。酢酸とギ酸の間に相関が高いという報告¹⁸⁾から、部屋Eにおける相関を確認したところ、酢酸とギ酸の濃度間の決定係数は $R^2=0.96$ を示し、同一発生源からの放散が示唆された(図9)。また部屋Eは今回空気を採取した部屋の中で唯一畳を使用しており、酢酸とギ酸は畳の下の構造合板に使用されているビニル樹脂系接着剤からの放散の可能性が考えられる。

エタノールが他の部屋より高い割合で検出された部屋AとFは人の出入りが多く、主に冬季におけるエタノールを含む手指の消毒剤の使用に起因すると考えられる。

2-エチル-1-ヘキサノールについては経時的な濃度上昇が見られたが、高濃度で検出された部屋Bについては、ビルの中で最も北側に位置する部屋であることから、コンクリートの含水率が高いことが予想され、床材がアルカリの影響をより強く受けたため、他の部屋よりも可塑剤中DEHPの加水分解が進行したと推察される。

未規制物質によるシックハウス症候群の惹起は報告があり^{4,5)}、未規制物質が高濃度で検出されている実態は看過できるものではない。高濃度で化学物質が検出された際の原因の特定が困難である場合も多いが、家具類の持ち込みや工事など、化学物質の発生源は日常にも多く存在し得る¹⁹⁾。健康被害を引き起こすという報告が現在までになされていない化学物質でも、多種類の化学物質に長期間ばく露されることで、今後健康被害につながる可能性も十分にあり、室内での化学物質濃度の挙動には注視が必要であると考えられる。一方で、個人により感受性、症状及び原因物質がそれぞれ異なるため、化学物質が原因である健康障害かどうかは判断が難しい一面もある。

建築物衛生法でのホルムアルデヒドの調査期間は6月から9月とされているが、今回の調査では、ホルムアルデヒドがその期間以外で最大濃度となった部屋も複数存在した。一例として、部屋Gにおいては、6月に9.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、8月に9.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であったのに対し、10月は25.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と6月及び8月の約2.8倍であった等、部屋DとGにおいては夏季にホルムアルデヒドの濃度が低下していた。これは夏季に室内で空調が入り換気されていた可能性が考えられるが、明確な理由は不明であった。

今回の結果から、汚染実態の把握とシックハウス症候群の軽減のためには、時期や化学物質の種類に関わらない継続的な調査が必要であることが示唆される。こうした情報が、未規制物質による汚染改善のための行政指導に結びつくことが期待される。

ま と め

都内新築ビルで、室内空気中の化学物質の測定を築後4か月から1年5か月後まで行った。その結果、厚労省から指針値が示されている8物質はすべての室内から検出されたが、指針値を超過することはなかった。指針値物質以外の未規制物質は50物質が検出され、またその中でもヘキサシアンが4,280 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、2-ブタノンオキシムが3,570 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と、単独で1,000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過する事例も見られた。指針値物質に加え多くの未規制物質が室内に存在している実態が判明し、多種の化学物質に長期間に亘りばく露されることで、健康障害につながる可能性もある。室内の状況や使用建材によって放散される化学物質の種類や濃度は異なり、ホルムアルデヒドを含む多くの化学物質濃度は、夏季に高く冬季に低い季節変動が見られたが、未規制物質の1種である2-エチル-1-ヘキサノールは、冬季になっても明らかな濃度減少が見られないなど、化学物質によりその挙動に差があった。室内空気の化学物質汚染実態の把握とシックハウス症候群の軽減につなげるためには、調査時期や調査対象物質に関わらない継続的な調査が必要であると考えられる。

文 献

- 1) Norbäck, D., Micheal, I., Widström, J.: *Scand J Work Environ Health*, 16, 121-128, 1990.
- 2) 厚生労働省, 医薬発第0207002号: 室内空気中化学物質の室内濃度指針及び標準的測定方法等について, 2002.
- 3) 松村年郎, 神野透人, 清水美希, 他: 室内環境学会誌, **15**(2), 163-172, 2012.
- 4) 小林 智, 武内伸治, 小島弘幸, 他: 室内環境学会誌, **13**(1), 39-54, 2010.
- 5) 斎藤育江, 大貫 文, 戸高恵美子, 他: 日本リスク研究学会誌, **21**(2), 91-100, 2011.
- 6) 原 邦夫, 伊藤昭好, 原田幸一, 他: 室内環境学会誌, **3**(1), 45-50, 2000.
- 7) Foo, S. C., Jeyaratnam, J., Koh, D.: *British journal of industrial medicine*, **47**(7) 480-484, 1990.
- 8) Dick, R.B., Setzer, J.V., Taylor, B.J., et al.: *British journal of industrial medicine*, **46**(2), 111-121, 1989.
- 9) Satoh, T., Omae, K., Nakashima, H., et al.: *International Archives of Occupational and Environmental Health*, **68**(3), 147-153, 1996.
- 10) Ernstgård, L., Iregren, A., Sjögren, B., et al.: *Toxicology letters*, **165**(1), 22-30, 2006.
- 11) 安藤正典: 室内空気汚染と化学物質, 化学工業日報社, 584-587, 2002.
- 12) 山田信也: 産業医学, **9**(8), 1967.
- 13) Paul, E.N., William, L.W., Henry, F.B., et al.: *Inhalation Toxicology*, **13**, 1093-1116, 2001.
- 14) Nicole, G., Chris, T.: *Arch Toxicol*, **72**, 270-276, 1998.
- 15) 上島通浩, 柴田英治, 酒井 潔, 他: 日本公衆衛生雑誌, **52**(12), 1021-1031, 2005.
- 16) 千葉聡子, 加藤信介, 徐 長厚, 他: 日本建築学会環境系論文集, **74**(636), 185-191, 2009.
- 17) 角田徳子, 大貫文, 大久保智子, 他: 平成27年度地方衛生研究所全国協議会関東甲信静支部要旨集, 73-74, 2016.
- 18) 呂 俊民, 古田嶋智子, 佐野千恵: 保存科学, **53**, 205-213, 2014.
- 19) 神野透人, 香川(田中) 聡子, 古田光子, 他: 国立医薬品食品衛生研究所報告, **129**, 86-92, 2011.

Survey of Chemicals in Indoor Air in Newly Constructed Building

Tokuko TSUNODA^a, Aya ONUKI^a, Tomoko OKUBO^a, Ikue SAITO^a, Toshinari SUZUKI^a, and Mitsugu HOSAKA^a

Monitoring of chemical substances presented in indoor air in a newly constructed building was conducted. Seventeen types of aldehydes and 60 types of volatile organic compounds were detected in indoor air. Eight types of compounds regulated by the Ministry of Health, Labor and Welfare of Japan, including formaldehyde, one cause of Sick House Syndrome (SHS), were detected in indoor air, but these concentrations were low level. Fifty types of non-regulated substances were detected in indoor air. Above all, the detection rates of acetone, toluene, acetic acid, and formic acid were 100% throughout the investigation period. We detected n-hexane and 2-butanone oxime at maximum concentrations of 4,280 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and 3,570 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. Their emission sources were considered to the building materials used in the building. The concentrations of many chemicals had a tendency to increase in summer and to decrease in winter. However, the concentration of 2-ethyl-1-hexanol, one type of non-regulated compound, did not decrease in winter.

Keywords: indoor air, pollution, volatile organic compounds, formaldehyde, non-regulated substance

^a Tokyo Metropolitan Institute of Public Health,
3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073, Japan

