

## 新築住宅における室内空気汚染物質濃度の経時的変化について

ミナミ タマエ マツモト ヒロシ コンドウ フミオ ヤマダ セイジ  
 南 珠恵\* 松本 浩\* 近藤 文雄\* 山田 靖治\*  
 マツムラ トシロウ マツノリ ミヤザキ ユタカ  
 松村 年郎<sup>2\*</sup> 安藤 正典<sup>2\*</sup> 宮崎 豊\*

**目的** 平成9年1月に竣工した愛知県内の新築住宅1戸におけるホルムアルデヒドの室内、外気濃度、および個人曝露濃度調査、ならびに揮発性有機化合物および二酸化窒素濃度調査を行い、これら化学物質の室内濃度の経時的変化、室内濃度と個人曝露濃度との相関、それに室内濃度と室温、湿度との相関等についても検討を加えた。

**方法** ホルムアルデヒド濃度の調査を、平成9年4月、6月、8月、10月および平成10年2月に、また、揮発性有機化合物および二酸化窒素濃度の調査を、平成9年8月と平成10年2月の2回行った。

**成績** 平成9年4月に28日間連続（48時間サンプリングを計14回）して測定した「精密調査」では、ホルムアルデヒドの室内（居間、台所、寝室）濃度は、42回中34回（81.0%）の測定で厚生省が示した「室内濃度指針値」（0.08 ppm）を上回っていた。その後、平成9年6月、8月、10月および平成10年2月に実施した「経時的調査」では、6月および8月における各部屋7回、計21回の測定中20回が「室内濃度指針値」を超え、築7か月後まではホルムアルデヒドの室内濃度は高いレベルで推移していた。ホルムアルデヒドの個人曝露濃度も築7か月後まで高い値を示していたことから、今回の調査対象となった新築住宅の居住者は、この間高濃度のホルムアルデヒドに曝露されていたものと考えられた。一方、気温、湿度が高い6月から8月にかけては、室内（居間）のホルムアルデヒド濃度が増加し、「経時的調査」期間中における居間のホルムアルデヒド濃度と室温および相対湿度との間には、それぞれ有意な正の相関（ $P < 0.001$ ）が認められた。また、ホルムアルデヒドの室内濃度が高い場合には、窓の開放による換気により、その濃度を有効に減少させることが明らかとなった。

揮発性有機化合物のうち、トルエンの室内濃度は築7か月後にも外気濃度よりも高い値を示していたが、他の物質は外気とほぼ同じ値を示していた。また、築13か月後にはすべての物質の室内濃度が外気濃度とほぼ同じ値を示し、今回調査を行った揮発性有機化合物は、時間経過とともに速やかに減少することが示された。二酸化窒素濃度については、開放型暖房器具を使用していた2月の寝室の濃度が、大気中の環境基準である0.06 ppmを超える値を示した。

**結論** 今回の調査対象となった住宅の居住者は、高い濃度のホルムアルデヒドおよび二酸化窒素に曝露されていたと推測された。今後、ホルムアルデヒド等化学物質の放散量が少ない建材の使用や、適切な換気の励行および開放型暖房器具の使用をやめるなどの対策を施す必要があると考えられた。

**Key words** : 室内空気, ホルムアルデヒド, 揮発性有機化合物, 二酸化窒素

### I 緒 言

従来、我が国の住宅は、木材、土壁、畳等、通気性の良い建材を使用して建てられていたが、近年の住宅は、欧米化のライフスタイルが導入されたことにより、合板、ビニルクロス、フローリン

\* 愛知県衛生研究所

<sup>2\*</sup> 国立医薬品食品衛生研究所

連絡先：〒462-8576 名古屋市区辻町字流 7-6

愛知県衛生研究所 南 珠恵

グ等、高気密性を追及した建材を使用して建てられるようになった。しかし、夏には高温多湿になるという気候上、ダニ、カビなどのアレルギーによる室内空気汚染が問題となってきている<sup>1)</sup>。さらに最近では、化学物質が原因である新たな問題も出現し、「シックハウス症候群」や「化学物質過敏症」といった健康被害が社会的に注目されるようになった<sup>2)</sup>。これらの健康被害の原因物質として、建材から発生するホルムアルデヒドや揮発性有機化合物 (volatile organic compounds, VOC)、暖房器具から発散される窒素酸化物などが指摘されている。

これら住宅に使用される化学物質による健康問題が急激にクローズアップされたことに伴い、平成9年6月に厚生省の「快適で健康的な住宅に関する検討会議」は、ホルムアルデヒドの室内濃度指針値を世界保健機構 (WHO) の指針値と同じ「30分平均値で $0.1 \text{ mg/m}^3$  ( $0.08 \text{ ppm}$ )」という値 (以下、「室内濃度指針値」とする) を提案した<sup>3)</sup>。また、厚生省は平成12年6月にホルムアルデヒドに加えトルエン、*o*-, *m*-, *p*-キシレンおよびパラジクロロベンゼン、同年12月にエチルベンゼン、スチレン、クロルピリホスおよびフタル酸ジ-*n*-ブチルの室内濃度指針値を設定した<sup>4)</sup>。さらに、厚生労働省は平成13年7月に、テトラデカン、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル、ダイアジノンおよびノナール、同年10月にアセトアルデヒドおよびフェノブカルブの室内濃度指針値を設定した。

室内空気汚染化学物質の住宅内濃度に関しては多くの調査報告がなされているが<sup>5)</sup>、特定の住宅に着目し、経時的に調査したものはそのうちごく一部に限られている<sup>6)</sup>。そこで今回、平成9年1月に竣工した愛知県内の新築住宅1戸におけるホルムアルデヒドの室内および外気濃度、その個人曝露濃度の調査を、同年4月、6月、8月、10月および平成10年2月に行った。また、同時にVOC濃度および二酸化窒素濃度調査を、平成9年8月と平成10年2月の2回行い、これら化学物質の室内濃度の経時変化、室内濃度と個人曝露濃度との相関、それに室内濃度と室温、湿度との相関等についても検討を加えたので、それらの結果を報告する。

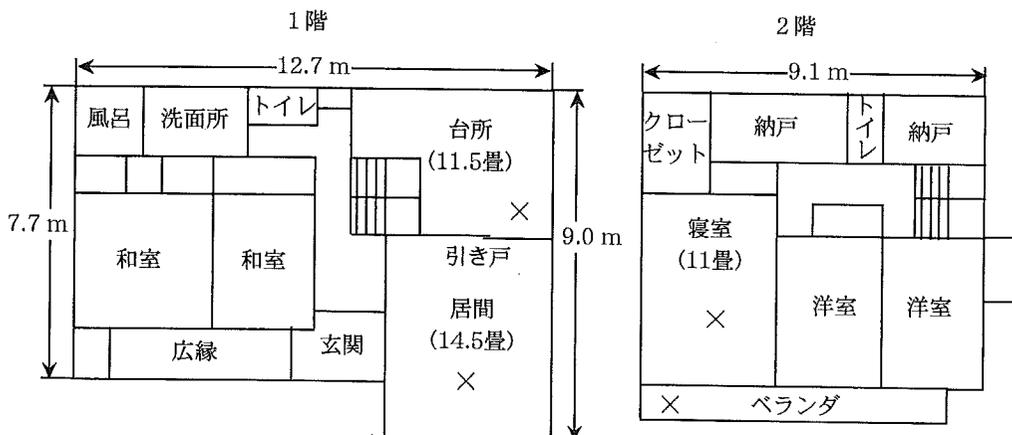
## II 研究方法

### 1. 調査対象、調査期間および室内空気汚染化学物質濃度、温・湿度等測定項目

平成9年1月に竣工した木造2階建ての新築住宅1戸を対象に、ホルムアルデヒド濃度については平成9年4月に28日間連続 (48時間サンプリングを計14回) で調査を行い、その後6月に4回、8月に3回、10月に4回、平成10年2月に4回の計29回調査を行った。VOC (ベンゼン、メチルイソブチルケトン、トルエン、*m*-, *p*-キシレン、*o*-キシレン)、二酸化窒素については、平成9年8月に3回と平成10年2月に4回行った。

居間の温度および相対湿度は、温湿度記録計

図1 調査対象住宅の平面図  
(×: 試料捕集場所)



(神栄株式会社製, 神戸) を用いて測定した。

## 2. アンケート調査

建物調査として, 調査対象住宅の間取り, 測定室内の広さ, 床張り, 壁の下地, 壁紙, 天井, 窓枠の種類・面積, 換気の方法, 新規家具の設置状況等を調査した。住宅の平面図を図1に, 建物調査の結果を表1に示した。各部屋の床張りはフローリング, 壁および天井の下地は合板, 壁および天井はビニルクロス張りであった。

健康状況調査として, 頭痛, めまい, 目や喉の痛み等の有無の聞き取り調査を行ったが, 家族(5人)の中で症状を訴える者はいなかった。

## 3. 試薬および材料

アセトニトリル, ベンゼン, メチルイソブチルケトン, トルエン, m, p-キシレン, o-キシレンは和光純薬工業製特級, スルファニルアミドは関東化学製特級, N-1-ナフチルエチレンジアミン二塩酸塩は和光純薬工業製窒素酸化物測定用, ホルムアルデヒド-2,4-ジニトロフェニルヒドラジン(HCHO-2,4-DNPH)は東京化成製, 二硫化炭素は和光純薬工業製作業環境測定用, 亜硝酸イオン標準液は和光純薬工業製を使用した。

ホルムアルデヒドの測定にはHCHO-2,4-DNPHを標準溶液として用い, HCHO-2,4-DNPH 0.0708 gをアセトニトリルに溶かし100 mlとし, そのうちの5 mlをさらにアセトニトリルで100 mlとして調製した(1 ml=5 μgホルムアルデヒド)。

VOCの測定にはベンゼン, メチルイソブチルケトン, トルエン, m, p-キシレン, o-キシレンを混合したものを標準溶液として用い, その混合物の濃度が1, 2, 5, 10 ppmとなるよう二硫化炭素で段階的に希釈した。

二酸化窒素標準溶液は, 亜硝酸イオン標準液を蒸留水で希釈して1 ppmとなるように調製した。なお, 反応に用いるスルファニルアミド溶液は, スルファニルアミド1 gに塩酸57 mlおよび蒸留水43 mlを加え, 温浴中で溶解させたもの, ナフチルエチレンジアミン溶液は, N-1-ナフチルエチレンジアミン二塩酸0.1 gに蒸留水100 mlを加えて溶解させたものを用いた。

ホルムアルデヒドの捕集には, Waters製DNPH含浸カートリッジ(Sep-Pak XpoSure™ Aldehyde Sampler)をパンプサンプラーとして

表1 調査家屋の状況

部屋の種類	居 間	台 所	寝 室
床の種類	フローリング	フローリング	フローリング
面積 (m <sup>2</sup> )	47.9	38.0	36.3
壁下地の種類	合板	合板	合板
面積 (m <sup>2</sup> )	47.5	28.0	28.0
壁紙の種類	ビニルクロス	ビニルクロス	ビニルクロス
面積 (m <sup>2</sup> )	47.5	28.0	28.0
天井下地の種類	合板	合板	合板
面積 (m <sup>2</sup> )	47.9	38.0	36.3
天井紙の種類	ビニルクロス	ビニルクロス	ビニルクロス
面積 (m <sup>2</sup> )	47.9	38.0	38.0
ベニア合板および化粧合板の総使用面積 (m <sup>2</sup> )	143	104	104
窓枠の種類	アルミ	アルミ	アルミ
面積 (m <sup>2</sup> )	8.6	3.2	5.0
換気の種類	自然換気	機械換気(換気扇)	自然換気
新規家具	本棚, ソファー	食卓	本棚, ベッド, クローゼット
暖房器具	石油温風ヒーター(強制給排気式)		石油温風ヒーター(開放型)

用いた。VOCおよび二酸化窒素の捕集には, 柴田科学器械工業製パンプサンプラーを使用した。

## 4. 試料捕集

捕集場所は, 室内(居間, 寝室, 台所)が部屋の中央付近の床上約1.2 m, 外気が2階ベランダの床上約1.8 mとした。ホルムアルデヒドの個人曝露濃度は, 測定対象となる居住者1人(世帯主である40歳台の会社員)の胸元にサンプラーを装着し, 睡眠時はサンプラーを枕元において捕集を行った。捕集時間はいずれも48時間とし, 捕集後は外気からの汚染を防ぐ為, チャック付複層袋(ポリエチレンテレフタレート/押し出しポリエチレン/アルミ箔/ポリエチレン, 生産日本社製, 東京)に入れ冷暗所(4°C)に保存し, 2週間以内に分析を行った。

また, 換気によるホルムアルデヒドの室内濃度の変化を調べるため, 寝室にある2つの窓のうち1つを実験的に常時開放(全開)あるいは締め切りにしてサンプリングを行い, その室内濃度を測定した。平成9年4月に行った14回の調査では意図的な窓の開閉を行わず, 6月は4回の内2回は

開放し、2回は締め切りにした。8月の3回はすべて開放し、10月は4回の内3回は開放し、1回は締め切った。(10月はすべて開放する予定であったが、4回目の調査時の気温が低く寒かったため、窓を締め切った。)また、平成10年2月の4回の調査では、すべて締め切ってサンプリングを行った。

#### (倫理面への配慮)

シックハウス症候群は、症状が多様で、症状発生の仕組みをはじめ未解明な部分も多く、また様々な複合要因が考えられる極めて新しい問題である。したがって、被験者に対して事前に調査の意義を十分に説明し、インフォームドコンセントを得た後、調査を実施した。さらに、4月の測定開始時点でホルムアルデヒドの室内濃度が指針値を超える高い値を示したため、その時点で被験者に対してその旨の通知を行った。さらにその後も、指針値を超える高い値が継続する可能性が高いことを被験者に対して十分に説明した上で、測定の継続に同意を得た後、調査を継続した。

### 5. 分析方法

#### 1) ホルムアルデヒド

ホルムアルデヒドの分析は、国立医薬品食品衛生研究所が提案した以下に示す方法を用いて行った。

捕集後のDNPHカートリッジからアセトニトリル3mlでHCHO-2,4-DNPHを溶出させ、分析用試料溶液とした。この試料溶液20 $\mu$ lを高速液体クロマトグラフ(high performance liquid chromatograph, HPLC)に注入し、分析を行った。ホルムアルデヒド濃度は、次式によって求めた。

$$C=W/0.0854/T$$

C:ホルムアルデヒド濃度(ppm)

W:検量線から求めたホルムアルデヒド量( $\mu$ g)

T:捕集時間(hr)

0.0854:比例定数( $\mu$ g/ppm.hr)

検量線は、HCHO-2,4-DNPH標準溶液10, 20, 30, 40, 50 $\mu$ lをDNPHカートリッジに添加後、上記と同様にしてHPLC分析を行い、ホルムアルデヒド量とピーク面積の関係をグラフにして作成した。

#### 2) VOC

VOCの分析は、柴田科学器械工業製バッシ

ューブに付属の測定マニュアル<sup>7)</sup>に従い、以下に示す方法で行った。捕集後のバッシブサンプラーから捕集剤を取り出し、二硫化炭素1mlを加えて密栓し、時々軽く振とうしながら2時間放置したものを試験液とした。試験液の1 $\mu$ lを水素炎イオン化検出器付ガスクロマトグラフ(gas chromatograph with a flame ionization detector, FID-GC)に注入し、分析を行った。測定は、ベンゼン、メチルイソブチルケトン、トルエン、m,p-キシレン、o-キシレンを対象に行った。VOC濃度は、次式によって求めた。

$$C=W \times 1000/K/T$$

C:VOC濃度(ppm)

W:検量線から求めたVOC量( $\mu$ g)

K:比例定数( $\mu$ g/ppm.min)

ベンゼン:0.178,メチルイソブチルケトン:0.184,トルエン:0.180,m,p-キシレン,o-キシレン:0.186

T:捕集時間(min)

検量線は、各濃度の混合標準溶液1 $\mu$ lをFID-GCに注入し、VOC量とピーク面積の関係をグラフにして作成した。

#### 3) 二酸化窒素

二酸化窒素の分析は、柴田科学器械工業製バッシブチューブに添付された測定マニュアル<sup>8)</sup>に従い、以下に示す方法で行った。捕集後のバッシブサンプラーから捕集剤を取り出し共栓付試験管に入れ、蒸留水10mlを加えた後、60 $^{\circ}$ C、10分間加温した。冷却後よく振とうし、3,000rpmで5分間遠心分離した。上澄液2mlを20mlの試験管に入れ、蒸留水6ml、スルファニルアミド溶液1mlを加えて混合し、室温で15分間放置した。次いで、ナフチルエチレンジアミン溶液1mlを加えて混合し、室温で30分間放置後、550nmで吸光度を測定した。

二酸化窒素濃度は、次式によって求めた。

$$C=W \times F/18.6/T$$

C:二酸化窒素濃度(ppm)

W:検量線から求めた二酸化窒素量( $\mu$ g)

F:希釈係数(試験液が2mlの場合は5)

18.6:比例定数( $\mu$ g/ppm.hr)

T:捕集時間(hr)

検量線は、亜硝酸イオン標準溶液0, 2, 4, 8mlを20mlの試験管に入れ、蒸留水で8mlとした

後、上記と同様の操作を行い、二酸化窒素量と吸光度の関係をグラフにして作成した。

### 6. 分析条件

#### 1) HPLC

ポンプ：島津製 LC-10AD  
 検出器：島津製 SPD-10A  
 記録計：島津製 C-R6A  
 カラム：島津製 Shim-pak CLC-ODS 6mm×150mm

移動相：アセトニトリル：水=58：42

流速：1 ml/min

検出：360 nm

#### 2) FID-GC

ガスクロマトグラフ：島津製 GC-14A

検出器：島津製 FID

記録計：島津製 C-R4A

カラム：DB-1301 (60m×0.25mm, 1.0μm)

カラム温度：60℃ (5min)→10℃/min→280℃

注入口温度：280℃

試料注入法：スプリット (スプリット比 1：10)

キャリアーガス：He

検出器温度：280℃

### 7. 測定結果の解析

測定値は少数点以下3桁まで表し、単位はすべて ppm で表わした。なお、検出限界(0.001 ppm)未満の値については、その1/2の0.0005 ppm が検出されたものと仮定して統計解析を行った。な

お、調査および測定結果の解析には、パソコン用統計解析ソフト SPSS を用いた。

## III 研究結果と考察

### 1. ホルムアルデヒドの室内、個人曝露および外気濃度の経時変化

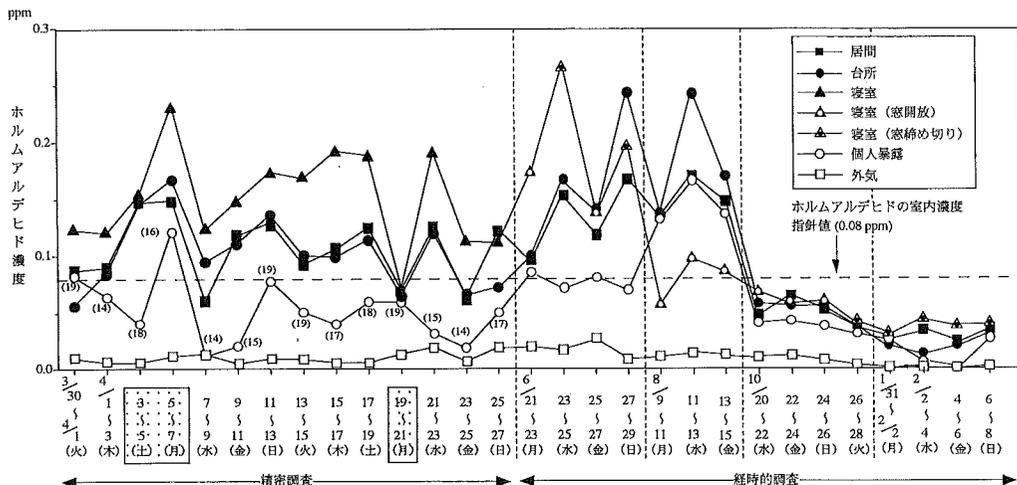
ホルムアルデヒドの室内、個人曝露および外気濃度の測定結果を図2に示した。なお、築3か月後の平成9年4月に28日間連続(48時間サンプリングを計14回)して実施した調査を「精密調査」、その後、同年6月から平成10年2月にかけて計15回実施した調査を「経時的調査」として、その結果を示した。

#### 1) 室内濃度調査

精密調査の期間中、ホルムアルデヒドの室内濃度を3部屋で各々14回(計42回)測定したが、42回中34回(81.0%) (居間：11回、台所：10回、寝室：13回)で厚生省の「室内濃度指針値」(30分平均値で0.08 ppm)を超えていた。各室内におけるホルムアルデヒド濃度は、28日間という短い期間内においても大きく変化し、それぞれの部屋における変動範囲は、居間では0.060 ppm~0.149 ppm、台所では0.059 ppm~0.167 ppm、寝室では0.072 ppm~0.232 ppmであった。最も変動範囲の大きかった寝室では、最大値は最小値の約3倍を示していた。

経時的調査の期間中、ホルムアルデヒドの室内

図2 ホルムアルデヒドの室内、個人曝露および外気濃度  
 個人曝露濃度(—○—)の上下に( )内で示した数字は、住宅内滞在時間。



濃度を3部屋で各々15回(計45回)測定したが、45回中20回(44.4%) (居間:7回, 台所:7回, 寝室:6回)で「室内濃度指針値」を超えていた。6月および8月の室内濃度は、各部屋7回(計21回)の測定中、寝室の1回(0.058 ppm)を除くすべてで「室内濃度指針値」を上回る高い値を示していた(0.096 ppm~0.242 ppm)。その後、すべての部屋の室内濃度は減少し、10月および2月に実施した計24回の調査では全測定値が「室内濃度指針値」を下回っていた(0.014 ppm~0.069 ppm)。

以上、室内濃度は築7か月後(8月)まで、「室内濃度指針値」を上回る高いレベルで推移していた。室内空気中のホルムアルデヒド濃度の高値は、建材、接着剤および家具等からの放散が大きな要因と考えられており、今回の調査対象住宅では、ホルムアルデヒドの放散量が多い建材等が使用されていたことが示唆された。

## 2) 個人曝露濃度調査

精密調査の期間中、ホルムアルデヒドの個人曝露濃度は、14回の測定中2回(14.3%)で「室内濃度指針値」を超えていた。また、個人曝露濃度も室内濃度と同様に大きく変動し、その変動範囲は0.011 ppm~0.123 ppmと、最大値は最小値の約11倍を示していた。

経時的調査の期間中、ホルムアルデヒドの個人曝露濃度は、15回の測定中5回(33.3%)で「室内濃度指針値」を超えていた。6月の調査では4回とも「室内濃度指針値」とほぼ同じレベル(0.070 ppm~0.085 ppm)で推移したが、8月の調査時にはその濃度が上昇し、測定を行った3回すべてで「室内濃度指針値」を上回っていた(0.132 ppm~0.166 ppm)。その後、個人曝露濃度は減少し、10月および翌年2月に実施した8回の測定では、全測定値が「室内濃度指針値」を下回っていた(0.001 ppm~0.043 ppm)。

以上、個人曝露濃度も室内濃度と同様に、築7か月後まで高い値を示し、今回の調査対象となった新築住宅の居住者は、この間常時多量のホルムアルデヒドに曝露されていたものと考えられた。なお、築7か月後の8月までに行った21回の個人曝露濃度の平均値は $0.070 \pm 0.041$  ppmと、平成9年に国立医薬品食品衛生研究所が行った全国実態調査(以下「全国実態調査」と略す。)の結果

( $0.068 \pm 0.039$  ppm,  $n = 107$ , 築後6か月以内の新築住宅の居住者について実施)<sup>9)</sup>とほぼ同じレベルであった。

## 3) 外気濃度調査

精密調査の期間中、ホルムアルデヒドの外気濃度は0.005 ppm~0.019 ppmと、測定を行った14回すべてで「室内濃度指針値」を下回っていた。また、経時的調査の期間中も、ホルムアルデヒドの外気濃度はND (<0.001 ppm)~0.027 ppmと、測定を行った15回すべてで「室内濃度指針値」を下回っていた。

## 2. ホルムアルデヒドの室内濃度と個人曝露濃度の関係

精密調査期間中におけるホルムアルデヒドの室内濃度の変化と個人曝露濃度の変化は、しばしば乖離する現象がみられ(図3)、いずれも有意な相関は認められなかった(居間 vs. 個人曝露:  $r = 0.428$ ,  $P = 0.127$ ,  $n = 14$ ; 台所 vs. 個人曝露:  $r = 0.331$ ,  $P = 0.248$ ,  $n = 14$ ; 寝室 vs. 個人曝露:  $r = 0.366$ ,  $P = 0.199$ ,  $n = 14$ )。例えば、4月19日から21日にかけては、各部屋の室内濃度が減少したにも関わらず、個人曝露濃度は減少しなかった(図2)。この例で示されるようなホルムアルデヒド室内濃度と個人曝露濃度が乖離する要因の一つとして住宅内滞在時間の影響が考えられたため、精密調査期間中におけるその関係を調べた。その結果、4月19日から21日(週末)にかけては、被験者が通常よりも住宅内で長時間過ごしていたことが明らかとなった。しかしながら本調査期間中を通しての解析では、個人曝露濃度と住宅内滞在時間の間には有意な相関は認められなかった( $r = 0.425$ ,  $P = 0.249$ ,  $n = 14$ )。この結果は、「全国実態調査」の結果( $r = 0.089$ ,  $P = 0.122$ ,  $n = 305$ )と一致するものであった<sup>9)</sup>。なお、4月3日から7日にかけては、すべての部屋の室内濃度が急激に上昇したのに伴い(平均0.183 ppm)、個人曝露濃度も「室内濃度指針値」を超える高い値(0.123 ppm)を示し、個人曝露濃度が室内濃度の影響を強く受けていることを示唆する例も認められた(図2)。

経時的調査では、窓の開閉を実験的に行った寝室の濃度と個人曝露濃度との間には相関は認められなかったが( $r = 0.339$ ,  $P = 0.216$ ,  $n = 15$ )、居間および台所の濃度と個人曝露濃度との間には有

図3 ホルムアルデヒドの室内濃度と個人曝露濃度の関係

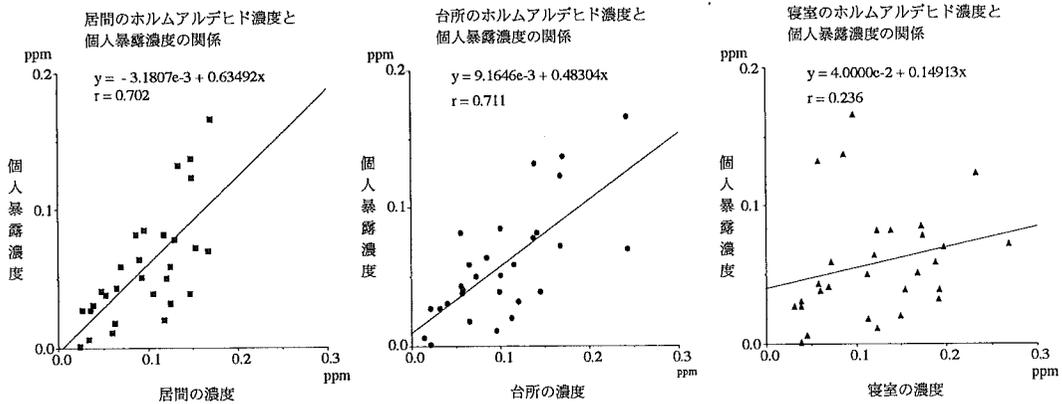
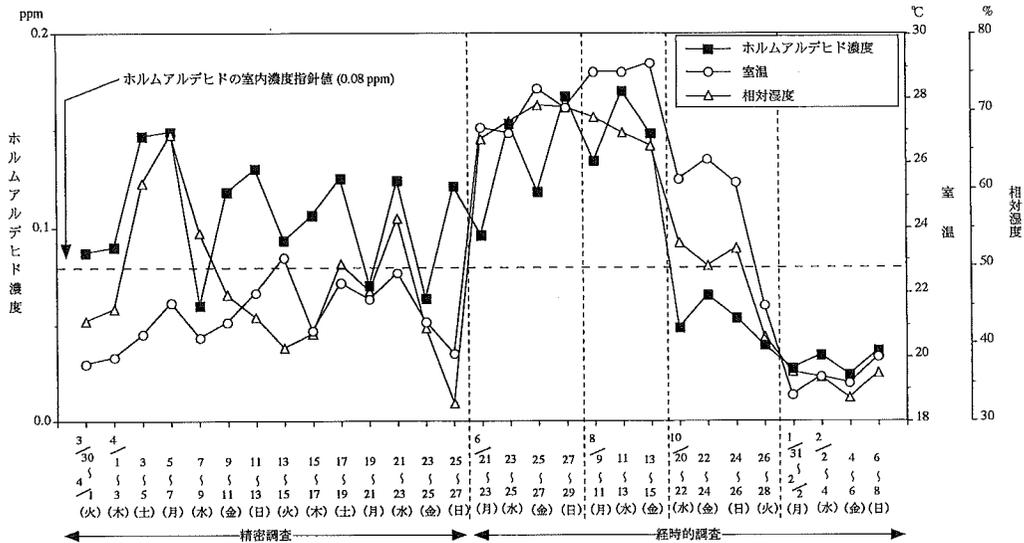


図4 居間のホルムアルデヒド濃度と室温、相対湿度との関係



意な正の相関が認められた (居間 vs. 個人曝露:  $r = 0.858$ ,  $P < 0.001$ ,  $n = 15$ ; 台所 vs. 個人曝露:  $r = 0.823$ ,  $P < 0.001$ ,  $n = 15$ )。なお、精密調査期間と経時的調査期間を合わせた全調査期間では経時的調査と同様に、寝室の濃度と個人曝露濃度との間には相関は認められなかった ( $r = 0.236$ ,  $P = 0.218$ ,  $n = 29$ )、居間および台所の濃度と個人曝露濃度との間には有意な正の相関 (居間 vs. 個人曝露:  $r = 0.702$ ,  $P < 0.001$ ,  $n = 29$ ; 台所 vs. 個人曝露:  $r = 0.711$ ,  $P < 0.001$ ,  $n = 29$ ) が認められた。

### 3. ホルムアルデヒドの室内濃度に対する温度・湿度の影響

精密調査期間中の居間におけるホルムアルデヒド濃度の変化と室温および相対湿度の変化は、しばしば乖離する現象がみられた (図4)。それらの関係を調べたところ、いずれも有意な相関は認められなかった (居間の濃度 vs. 室温:  $r = 0.210$ ,  $P = 0.480$ ,  $n = 14$ ; 居間の濃度 vs. 相対湿度:  $r = 0.411$ ,  $P = 0.148$ ,  $n = 14$ )。居間の室温とホルムアルデヒド濃度が相関しなかった原因としては、この調査期間中における室温の変動範囲が  $3^{\circ}\text{C}$  と小

さいことから、室温の上昇に伴う建材等からのホルムアルデヒド放散量が少なく、室内濃度の上昇が認められなかったことによると考えられた。平成9年2月から4月という比較的短期間に行われた「全国実態調査」でも、室内濃度と室温の間には有意な相関は認められなかった ( $r=0.159$ ,  $P=0.018$ ,  $n=220$ ) ことが報告されているが<sup>9)</sup>、今回の我々の結果と同様に室温の変動が小さかったことがその原因と推測されている。一方、相対湿度とホルムアルデヒド濃度の相関については、4月3日から7日のように、相対湿度の上昇と共に居間のホルムアルデヒド濃度が上昇するなど、正の相関を示す例も一部では認められた。

経時的調査では、居間のホルムアルデヒド濃度と室温および相対湿度は極めて類似した変動を示した。また、これらの間には有意な正の相関が認められた (居間の濃度 vs. 室温:  $r=0.859$ ,  $P<0.001$ ,  $n=15$ ; 居間の濃度 vs. 相対湿度:  $r=0.915$ ,  $P<0.001$ ,  $n=15$ )。建材からのホルムアルデヒドの放散量は温度および湿度の上昇により多くなることから、ホルムアルデヒドの室内濃度も当然温度および湿度の影響を受けると考えられている<sup>10,11)</sup>。今回の調査からも、気温、湿度が上昇する6月から8月にかけて居間のホルムアルデヒド濃度は増加することが実際に確認された。

なお、精密調査期間と経時的調査期間を合わせた全調査期間における居間のホルムアルデヒド濃度と室温および相対湿度の間には、それぞれ有意な正の相関が認められ (居間の濃度 vs. 室温:  $r=0.518$ ,  $P<0.01$ ,  $n=29$ ; 居間の濃度 vs. 相対湿度:  $r=0.693$ ,  $P<0.001$ ,  $n=29$ )、ホルムアルデヒドの室内濃度は温度、湿度の上昇と共に上昇することが示された。

#### 4. ホルムアルデヒドの室内濃度に対する換気の影響

窓の開閉による換気が室内ホルムアルデヒド濃度に及ぼす影響を調べるために、経時的調査の期間中、寝室の窓を常時開放あるいは締め切った状態で測定を行った (図2)。まず、6月に4回行った調査のうち、2回は開放し、2回は締め切ったところ、窓を開放した時の濃度の平均値は  $0.155 \pm 0.024$  ppm と、締め切っていた時 ( $0.233 \pm 0.050$  ppm) に比べ約3割程度減少していた。また、8月の調査で窓の開閉を実験的に実施しなかつた居間および台所の濃度が、6月 (0.096 ppm ~ 0.243 ppm) に引き続き「室内濃度指針値」を上回る高い値 (0.134 ppm ~ 0.242 ppm) を示していたのに対し、3回とも窓を開放した寝室の濃度は「室内濃度指針値」程度まで減少したことから (0.058 ppm ~ 0.097 ppm)、室内濃度が高い時には、その低減化法として換気が有効な手段であることが明らかとなった。

また、居間および台所の室内濃度は8月までは増加傾向にあったのに対し、寝室の室内濃度は窓の開閉によって上下するものの、全体としては減少傾向にあったことから、ホルムアルデヒド濃度が「室内濃度指針値」を上回る高い値を示す場合には、その絶対量の減少ばかりでなく、減少速度を速める効果もあるものと考えられた。

5. VOC および二酸化窒素濃度

VOC および二酸化窒素濃度の測定月別の結果を表2に示した。なお、すべての測定において検出限界値未満であったベンゼンと、検出率 (17.9%) および測定値 (ND ~ 0.002 ppm) とともに低かったメチルイソブチルケトンについては、値がほとんど0.001 ppm となってしまうため表中には示さず、本文中での記載のみとした。

トルエン濃度については、築7か月後である平成9年8月の室内濃度の中央値が外気濃度 (0.002 ppm) に比べて、寝室で14倍 (0.027 ppm)、居間で8倍 (0.015 ppm)、台所で5倍 (0.010 ppm) の値を示していた。しかし、築13か月後の平成10年2月には外気濃度 (0.003 ppm) とほぼ同じ値 (寝室: 0.004 ppm, 居間: 0.003 ppm, 台所: 0.003 ppm) にまで減少していた。また、トルエン以外のVOCについては、8月の調査時点ですでに外気とほぼ同じ値を示しており、翌年2月における測定でも外気とほぼ同様の値を示していた。VOC濃度は築後3~4か月で平衡に達するという報告例もあり、今回の我々の調査からもVOC濃度は時間経過とともに速やかに減少するものと考えられた。

二酸化窒素濃度についてその中央値をみると、8月の室内濃度はいずれの測定場所も外気濃度とほとんど同じ値を示していた。一方、2月の測定では居間 (0.023 ppm) と台所 (0.016 ppm) の二酸化窒素濃度は外気濃度 (0.013 ppm) とほぼ同じ値を示したのに対して、寝室の濃度 (0.123

表2 揮発性有機化合物および二酸化窒素濃度 (中央値 (最大値~最小値))

項目	月	検体数	居間	台所	寝室	外気
揮発性有機化合物	トルエン	8月 3	0.015 (0.033~0.015)	0.010 (0.022~0.007)	0.027 (0.032~0.019)	0.002 (0.003~0.001)
		2月 4	0.003 (0.004~0.002)	0.003 (0.004~0.001)	0.004 (0.006~0.003)	0.003 (0.004~0.002)
	m, p-キシレン	8月 3	0.004 (0.005~0.003)	0.003 (0.005~0.002)	0.005 (0.005~0.003)	0.001 (0.002~0.001)
		2月 4	0.006 (0.007~0.005)	0.004 (0.004~0.003)	0.008 (0.012~0.005)	0.003 (0.003~0.003)
	o-キシレン	8月 3	0.003 (0.004~0.002)	0.002 (0.004~0.002)	0.003 (0.004~0.003)	0.001 (0.001~0.001)
		2月 4	0.002 (0.002~0.002)	0.002 (0.002~0.001)	0.002 (0.003~0.002)	0.001 (0.001~0.001)
二酸化窒素	8月 3	0.004 (0.007~0.003)	0.005 (0.005~0.003)	0.005 (0.006~0.002)	0.009 (0.009~0.035)	
	2月 4	0.023 (0.027~0.015)	0.016 (0.022~0.012)	0.123 (0.141~0.093)	0.013 (0.025~0.006)	

ppm) は外気濃度の約10倍という高い値を示し、大気中の環境基準である0.06 ppmを超えていた。その原因として二酸化窒素の主たる発生源とされている開放型暖房器具の使用が考えられたため、その使用状況を調べた。その結果、寝室では石油温風ヒーター (ファンヒーター) を使用していたことが明らかとなり、観測された寝室における高濃度の二酸化窒素は、開放型暖房器具の使用によるものと考えられた。特に、石油温風ヒーターは、他の開放型暖房器具に比べて窒素酸化物の発生量が多く、二酸化窒素の室内濃度を高める大きな要因であるとの報告がなされていることから<sup>12)</sup>、その使用にあたっては換気に十分留意する必要があると考えられた。なお、居間では強制給排気式の石油温風ヒーターを使用していたこと、また、台所では暖房器具を使用していなかったことから、これら2室では外気濃度とほぼ同じ程度の低い値であったものと考えられた。

#### IV 結 語

今回、平成9年1月に竣工した新築個人住宅1戸におけるホルムアルデヒドの室内・外気濃度、および個人曝露濃度調査、ならびに揮発性有機化合物および二酸化窒素濃度調査を竣工3か月後から11か月間実施した。その結果、築7か月後まではホルムアルデヒドの室内濃度は厚生省が示した

「室内濃度指針値」(0.08 ppm) を上回る高いレベルで推移していた。さらに、個人曝露濃度も築7か月後まで高い値を示し、今回の調査対象となった新築住宅の居住者は、この間高濃度のホルムアルデヒドに曝露されていたと考えられた。また、高濃度の室内ホルムアルデヒド濃度の絶対量減少および減少速度を速めるためには、換気が有効な手段の一つであることが確認された。一方、冬期に開放型暖房器具を使用していた寝室の二酸化窒素濃度は大気中の環境基準を超える高い値を示していた。したがって今後は、ホルムアルデヒド等化学物質の放散量が少ない建材の使用や、適切な換気の実施および開放型暖房器具の使用中止等を含めた対策の実施が室内空気汚染化学物質軽減の観点からは必要であると考えられた。

(受付 2000. 9. 4)  
(採用 2001.12.25)

#### 文 献

- 1) 池田耕一. アレルギー問題に対する建築的対応. 公衆衛生研究 1998; 47(1): 24-28.
- 2) 松木秀明. 化学物質による室内汚染. 大気環境学会誌 1998; 33: A19-A30.
- 3) 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. 平成9年6月.
- 4) 厚生省通知. 平成12年6月30日付け生衛発第1093

- 号「室内空气中化学物質の室内濃度指針値および標準的測定方法について」. 平成12年12月22日付け生衛発第1852号「室内空气中化学物質の室内濃度指針値および総揮発性有機化合物の室内濃度暫定目標値等について」.
- 5) 市川 勇, 松村年郎. 室内空気環境基準の現状. 衛生化学 1997; 43(3): 162-173.
  - 6) 宮崎竹二. 住宅内ホルムアルデヒド濃度. 生活衛生 1996; 40(6): 353-361.
  - 7) パッシブガスチューブ取扱説明書. 柴田科学器械工業株式会社.
  - 8) パッシブガスチューブ (HCHO・NO<sub>2</sub>用) 取扱説明書. 柴田科学器械工業株式会社.
  - 9) 平成8年度暴露評価研究—ホルムアルデヒドの個人暴露および室内濃度の全国実態調査結果〈中間報告〉短報. 国立医薬品食品衛生研究所. 平成10年.
  - 10) 松村年郎. 化学物質による室内空気汚染—VOCとホルムアルデヒドについて—. 大気環境学会誌 1996; 31(6): A154-A164.
  - 11) 桂 英二, 堀 義宏, 入江雄司, 他. ホルムアルデヒドによる室内空気汚染に対する温度の影響. 北海道立衛生研究所報 1999; 49: 68-71.
  - 12) 呼吸器系調査報告書. 愛知県. 平成10年3月.
  - 13) 宮田幹夫, 大野晃司. 化学物質過敏症—歴史, 定義, 患者数他—. アレルギー・免疫 1999; 6(7): 970-975.
-

## VARIATION IN INDOOR AIR POLLUTANT CONCENTRATIONS WITH TIME IN A NEWLY CONSTRUCTED PRIVATE HOUSE

Tamae MINAMI\*, Hiroshi MATSUMOTO\*, Fumio KONDO\*, Seiji YAMADA\*,  
Toshiro MATSUMURA<sup>2\*</sup>, Masanori ANDO<sup>2\*</sup>, and Yutaka MIYAZAKI\*

**Key words :** Indoor air, Formaldehyde, Volatile organic compounds, Nitrogen dioxide

An indoor air quality research project was conducted in a new private house built in January 1997 to investigate time course changes in formaldehyde concentrations during an 11-month period from April 1997 to February 1998. Indoor and outdoor concentrations of volatile organic compounds (VOCs) and nitrogen dioxide were also measured in August 1997 and February 1998.

Indoor formaldehyde concentrations were measured 14 times (48 hrs sampling for each measurement) for 28 days in the living room, a bedroom and the kitchen in April '97. The concentrations exceeded the Japanese Government's guideline value of 0.08 ppm in 34 of the 42 (81.0%). Day to day variation in the formaldehyde concentration was found to be substantial, the range being between 0.073 and 0.232 ppm for the bedroom, for example. In June and August '97, values for 20 of 21 measurements exceeded the guideline, the results suggesting that indoor formaldehyde concentrations remain high until 7 months after the completion of construction. There were positive correlations between the formaldehyde concentrations in the living room and the kitchen and personal exposure levels to formaldehyde, the result indicating a direct influence of the home environment. The formaldehyde concentration in the living room also exhibited a positive correlation with the room temperature. Natural ventilation by opening windows was found to be effective for decreasing the concentration of formaldehyde in the indoor air. Indoor VOC concentrations decreased rapidly after the completion of construction except for that of toluene, which was higher than the outdoor concentration even after 7 months. Indoor concentrations of all of the VOCs were, however, found to be almost the same as those outdoor at the 13 month time point. Indoor nitrogen dioxide concentrations measured in the bedroom in winter (February '98) exceeded the Environmental Air Quality Standard in Japan, this result being considered due to use of an oil fan heater.

These data suggest that personal exposure levels to formaldehyde and nitrogen dioxide are high in newly constructed private homes in Japan. In order to avoid prolonged exposure to high concentrations of indoor air pollutants, it is considered very important to take measures such as of use building materials with low formaldehyde emissions and to discontinue the use of oil fan heaters.

---

\* Aichi Prefectural Institute of Public Health

<sup>2\*</sup> National Institute of Health Sciences