

2-エチル-1-ヘキサノールによる室内空気汚染

室内濃度, 発生源, 自覚症状について

カミジマ 上島	ミチヒロ 通浩*	シバタ 柴田	エイジ 英治 ^{2*}	サカイ 酒井	キヨシ 潔 ^{3*}	オオノ 大野	ヒロユキ 浩之 ^{3*}
イシハラ 石原	シンヤ 伸哉 ^{4*}	ヤマダ 山田	テツヤ 哲也 ^{5*}	タケウチ 竹内	ヤスヒロ 康浩*	ナス 那須	タミエ 民江*

目的 2-エチル-1-ヘキサノール（以下、2E1H）は、我が国で室内空気汚染物質として注目されることがほとんどなかった揮発性有機化学物質（以下、VOC）である。本研究では、2E1Hによる著しい室内空気汚染がみられた大学建物において、濃度の推移、発生源、学生の自覚症状を調査した。

方法 1998年に竣工したAビルのVOC濃度を2001年3月から2002年9月にかけて測定した。対照建物として、築後30年以上経過したBビルのVOC濃度を2002年9月に調査した。空気中カルボニル化合物13種類はパッシブサンプラー捕集・高速液体クロマトグラフ法で、その他のVOC41種類は活性炭管捕集・ガスクロマトグラフ-質量分析(GC-MS)法で測定した。2002年8月に床からのVOC放散量を二重管式チャンバー法で、空気中フタル酸エステル濃度をろ過捕集・GC-MS法で測定した。講義室内での自覚症状は、2002年7月にAビル315名およびBビル275名の学生を対象として無記名質問票を用いて調査した。

結果 2E1Hだけで総揮発性有機化学物質濃度の暫定目標値(400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を超える場合があったAビルの2E1H濃度は冬季に低く、夏季に高い傾向があったが、経年的な低下傾向はみられなかった。フタル酸エステル濃度には2E1H濃度との関連はなかった。2E1H濃度は部屋によって大きく異なり、床からの2E1H放散量の多少に対応していた。床からの放散量が多かった部屋では床材がコンクリート下地に接していたが、放散量が少なかった部屋では接していなかった。講義室内での自覚症状に関して、2E1H濃度が低かったBビル在室学生に対するAビル在室学生のオッズ比の有意な上昇は認められなかったが、鼻・のど・下気道の症状を有する学生はAビルのみにもみられた。

結論 2E1H発生の機序として、床材の裏打ち材中などの2-エチル-1-ヘキシル基を持つ化合物とコンクリートとの接触による加水分解反応が推定された。両ビル間で学生の自覚症状に有意差はなかったが、標本が小さく検出力が十分でなかった可能性もあった。2E1H発生源対策とともに、高感受性者に注目した量反応関係の調査が必要である。

Key words : 2-エチル-1-ヘキサノール, 床, コンクリート, 加水分解, 室内空気汚染, シックビルディング症候群

1 緒 言

* 名古屋大学大学院医学系研究科社会生命科学講座
環境労働衛生学

^{2*} 愛知医科大学医学部衛生学講座

^{3*} 名古屋市衛生研究所

^{4*} 愛知教育大学養護教育講座

^{5*} 偕行会豊田共立クリニック

連絡先: 〒466-8550 名古屋市昭和区鶴舞町65
名古屋大学大学院医学系研究科社会生命科学講座
環境労働衛生学 上島通浩

建物の室内環境で生じる頭痛, 全身倦怠感, 眼やのどの刺激感などは欧米ではシックビルディング症候群と呼ばれ, 室内空気汚染や温湿度, 真菌類, 換気量などとの関連に注目して研究が行われている¹⁻³⁾。一方, わが国では住居家屋の新改築後に生じるこれらの症状はシックハウス症候群と呼ばれ⁴⁾, 建物の内外装や家具などから放散する

ホルムアルデヒド、トルエンなどの揮発性有機化学物質 (VOC)⁵⁾が症状の主な原因として考えられている。VOC への曝露濃度と症状との関連を明らかにした報告はまだ少ないが、最近では国内で行われた調査研究報告も公表されるようになってきている^{6,7)}。厚生労働省はシックハウス症候群対策として、2002年までに13物質の室内濃度指針値⁸⁾と総揮発性有機化合物 (TVOC) の暫定目標値⁹⁾を設定し、新築住宅等で指針値策定物質を中心に VOC 濃度が測定されている。わが国でシックハウス対策の念頭に置かれている物質は、1997-98年に厚生省が住宅を対象に実施した全国調査¹⁰⁾で測定された約40物質とプラスチック可塑剤および防蟻剤が主であるが、これら以外にも健康影響に関して重要性の高い VOC の存在する可能性がある。

著者らは、室内濃度指針値が未設定でかつ測定されることがほとんどなかった2-エチル-1-ヘキサノール (以下、2E1H) に注目してきた。勤務先の建物の新築とともに、粘膜刺激症状および中枢神経系症状を主症状とする化学物質過敏症を発症した大学教員の症例を検討した際、症状が強く出現する部屋では1,000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える2E1H が検出され、その部屋を使用する、患者を含む複数の教職員に咳や目、鼻、咽頭の刺激感、悪心などの症状がみられることを明らかにした¹¹⁾。2E1H は、プラスチック可塑剤であるフタル酸ジエチルヘキシル (DEHP) の原料として知られ、DEHP の加水分解によって生じうるので、室内での発生源として内装材に含まれる DEHP との関連を疑った¹¹⁾。実際に欧米では、2E1H はカーペット、コンピューター、塩化ビニル製品を放散源とする室内空気汚染物質として認識され^{12~18)}、とくにスウェーデンでは、室内空気中に検出される2E1H を建物の高湿度状態を示す指標としてとらえるとともに、喘息症状¹⁹⁾や鼻・眼の症状²⁰⁾との関連が指摘されている。しかし、これらの報告中の2E1H 建物内濃度はおおむね30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 未満で、Follin が示した約150件のアパートの最大値86 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ¹⁴⁾も、著者が経験した事例の建物ではむしろ空気環境の良い部屋の濃度に相当することから、欧米での研究結果をそのままあてはめて考えて良いかは疑問である。

したがって本研究では、わが国における2E1H

による室内空気汚染の実態および症状との関係が明らかでないことをふまえ、1) 2E1H による著しい室内空気汚染がみられた大学校舎ビルでの室内空气中2E1H 濃度の推移、2) 発生源、3) この建物を使用する学生の自覚症状について調査した。

II 研究方法

1. 揮発性有機化学物質 (VOC) ・フタル酸エステル類の測定および2-エチル-1-ヘキサノール (2E1H) 発生源の推定

1) 調査場所および調査内容

(1) Aビル

1998年に竣工した鉄筋コンクリート造7階建の大学教育研究棟ビルにある、会議室 (1階、床面積約149 m^2 、天井高さ3 m)、講義室 (2階)、情報処理実習室 (以下、実習室、4階、床面積約79 m^2)、セミナー室 (6階、床面積約22 m^2 、天井高さ2.4 m)、教員研究室 (以下、研究室、7階、緒言で述べた症例が使用)、ベランダ (以下、外気、2階) で測定を行った。会議室、講義室、セミナー室、研究室は、非使用時に空調換気装置が停止すると密閉状態となる。会議室は2週間に1回程度使用される以外に人の出入りはほとんどなく、最も多くの教職員が中枢神経系症状や粘膜刺激症状を訴えている¹¹⁾。この会議室以外に同規格の部屋はビル内にない。講義室は2階および3階に計7室、セミナー室は5~7階に計34室あり、2001年7月に教職員に対して行った自覚症状調査¹¹⁾で症状の訴えのあった部屋のうち、初回の測定時に授業で使用されていない部屋を各1室選んだ。実習室は、緒言で述べた症例がビル内で自覚症状を最も感じない部屋で、同様の部屋が同じ階にもう1室ある。多数設置されているコンピューターが放熱するため、空調換気が24時間行われている。研究室は同様の部屋が3~7階に計60室ある。床材として、会議室ではタイルカーペットが、セミナー室および講義室、研究室では塩化ビニル製長尺シートが、コンクリート下地に直接敷かれていた。一方、実習室では会議室と同じタイルカーペットが使用されていたが、床下に配線スペースを確保したアクセスフロア構造のため、カーペットはコンクリート下地に接していなかった。2001年3月から2002年9月にかけて VOC 濃度を上記6か所で、2002年8月に1)フタル酸エス

テル濃度を会議室、セミナー室、研究室および実習室で、2)床材からのVOC放散量を会議室、セミナー室および実習室で、3)内装材表面での2E1Hおよびフタル酸エステルの確認をセミナー室、実習室で行った。

(2) Bビル

対照建物として、築後30年以上経過した教育研究棟ビルの講義室、研究室、1階渡り廊下で、VOC濃度を2002年9月に測定した。講義室は3階に2室、研究室は1~3階に計19室あり、代表的と思われる部屋を選択した。

2) 測定方法

(1) 空気中濃度

① VOC

脂肪族炭化水素13物質、芳香族炭化水素9物質、テルペン類2物質、塩素化炭化水素9物質、エステル類2物質、アルコール類2物質、ケトン類3物質、アルデヒド類14物質の合計43物質を定量した。このうち、カルボニル化合物13物質はパッシブサンプラー(DSD-DNPHサンプラー、スペルコ)で24時間サンプリングし、生成したヒドラゾン誘導体を既報²¹⁾に準じ高速液体クロマトグラフを用いて定量した。これ以外のVOC41物質は、活性炭チューブ(ジャンボ型、柴田科学)を用いて流速1.0L/分で24時間サンプリングした後、既報²²⁾の分析条件でガスクロマトグラフ-質量分析計(GC-MS)により定量した。標準物質は、2E1H(特級、和光純薬)、TO-11/IP-6Aアルデヒド/ケトンDNPH Mix(スペルコ)、VOCs混合標準原液(室内環境測定用、関東化学)を使用した。

試料空気のサンプリングは、住宅に対する標準的測定方法⁸⁾に準じ、最低5時間以上部屋を密閉した後、床上1.2~1.5mの高さで24時間かけて行った。実習室および研究室は通常どおり使用しながら測定したが、それ以外の部屋は使用せず密閉状態を維持した。Aビル研究室については測定前に部屋を密閉すると使用者に気道刺激症状が生じるため、2001年11月以降の測定では、通常の使用時同様に24時間換気下にサンプリングした。Bビル研究室も換気下に測定を実施した。2002年夏季にはAビル会議室、セミナー室、講義室について、通常の使用時と同様に空調換気装置の運転下でもサンプリングを行った。

②フタル酸エステル類

フタル酸エステル化合物11物質については斎藤らの報告²³⁾にしたがい、前段に石英フィルター(東京ダイレック)、後段にODSフィルター(3M)を取り付けたろ紙ホルダーにより流速10L/分で24時間空気をサンプリングした後、GC-MSを用いて分析した。

(2) 発生源の推定

①床材からのVOC放散量

床に設置した建材表面部位別サンプリングシステム(以下、二重管式チャンバー法、ジーエルサイエンス)を用いて、床表面から発生するVOCを活性炭充填チューブに捕集し、2)(1)①の方法で分析した。放散量は田中らが示した計算式²⁴⁾により求めた。

② 会議室の椅子からのVOC放散量

会議室のみで使用される皮革張りの椅子を屋外に置いて座面にガラス製ろ過鐘(内容積:約850mL)をのせ、ろ過鐘内部の空気をろ過鐘周辺外気とともに流速1.0L/分で24時間サンプリングした。サンプリングした活性炭充填チューブは、(1)①で述べた方法で分析した。椅子表面からの放散量を下記の計算式により求めた。

$$M = \{(C1 - C2) \times V\} \times A / S \times 10^{-3}$$

M: 椅子1脚からの1日当たりの2E1H放散量 (mg/日・脚)

C1: ろ過鐘内部の空気中2E1H濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

C2: ろ過鐘周辺外気中2E1H濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

V: ろ過鐘内部の椅子表面を通過した空気量 (毎分1.0Lで24時間サンプリングした場合: 1.44 m³)

A: 椅子1脚の表面積 (1.16 m²)

S: ろ過鐘(直径8.5cm)の底面積 (0.0057 m²)

③室内内装材表面における2E1Hおよびフタル酸エステルの検出

セミナー室の床(塩化ビニル樹脂)、壁(塗装コンクリート)、天井(石膏ボード)の各表面ならびに実習室の床金属板表面接着剤付着部とその上に敷かれていたタイルカーペットの裏側表面の各100 cm²をアセトン(残留農薬・PCB試験用、和光純薬)含浸脱脂綿で拭き取り、脱脂綿をアセ

トンで抽出して GC-MS により定性分析した。

2. 講義室における学生の自覚症状調査

1) 対象

A ビルを使用する学生 1~2 年生315人および B ビルを使用する学生 1~4 年生275人。両者は異なる集団に属する。

2) 方法

2002年7月、大学における在室時間が最も長いと思われる講義室での自覚症状の有無、喫煙および飲酒の状況、アレルギー疾患および偏頭痛の既往について、無記名の自記式質問票を必修科目の授業時間中（講義室内とは限らない）に配布してその場で記入後提出用封筒に入れるよう依頼し、A ビルでは286人(91%)、B ビルでは217人(79%)から回収した。自覚症状に関しては、「今の季節に講義室にいと（いたあとに）、何か症状がおこりますか？」と質問し、「講義室に行くことがない」、「症状なし」、「症状あり」のいずれかに○印をつけさせた。症状のある場合は、部屋番号など具体的な場所とともに表1の症状番号を選択記入させ、該当する症状が表にない場合は文字で記載するよう求めた。「講義室に行くことがない」

に○印をつけるか無回答であった学生を除いた A ビル271人（男性60人、女性211人）、B ビル209人（男性28人、女性177人、性別不明4人）を解析対象とした。両ビル間では、性、年齢（A ビル19.1 ± 1.4 歳、B ビル 20.1 ± 1.1 歳、t 検定で $P < 0.05$ ）、女性の喫煙経験者数（A ビル2人、B ビル11人）、花粉症（A ビル74人、B ビル81人）および「アトピー性皮膚炎・花粉症・気管支喘息を除くアレルギー歴」（A ビル14人、B ビル24人）の有病率の差が有意（Fisher の直接確率法または χ^2 乗検定で $P < 0.05$ ）であった。有症状者が少なかったため、訴えのある症状を中枢および自律神経系症状、疲労感、鼻・のど・下気道の症状、関節痛・筋肉痛、ペンキや接着剤のにおいに分類し、男女を合計して B ビル学生に対する A ビル学生が有する自覚症状のオッズ比を算出した。ビルの違いおよび各背景要因による影響の有無は、ロジスティック単回帰分析により検定し、症状の合計についてのみ、両ビル間で有意差のあった背景要因をビルの違いとともに変数に加えたロジスティック重回帰分析も行った。

III 研究結果

1. 空気中 VOC 濃度測定および 2E1H 発生源の推定

1) 室内空気中 VOC およびフタル酸エステル濃度

2002年夏季における A ビルの会議室およびセミナー室、講義室の 2E1H 濃度はホルムアルデヒドを含む他の VOC 濃度に比べ著明に高く、その突出ぶりは B ビルと比較すると顕著であった（表2）。今回の分析条件でのトータルイオンクロマトグラム上には、定量された物質以外に目立ったピークは検出されなかった。

2E1H 濃度は A ビルの実習室以外の室内では夏季に上昇し、冬季に低下する傾向にあったが、時間経過による濃度低下はみられなかった（表3）。換気装置を稼働した通常の使用状況下では、A ビル会議室、セミナー室、講義室の 2E1H 濃度はそれぞれ密閉時の28%、16%、28%に減少したが、会議室の濃度は依然として密閉状態での講義室の濃度を上回っていた（表4）。

フタル酸エステルは A ビル室内空気から 6 物質検出され、フタル酸ジブチルおよび DEHP は

表1 調査を行った自覚症状

1. 頭が重い	20. 鼻水がでる
2. 頭が痛む	21. くしゃみがでる
3. 頭がボーッとする	22. ペンキや接着剤のにおいがする
4. 吐き気がする	23. においがわかりにくい
5. 顔がほてる	24. せきがよくでる
6. 酔った感じがする	25. 息苦しく感じる
7. いやな夢ばかり見る	26. ぜいぜいする
8. 夜ぐっすり眠れない	27. たんがよくでる
9. 勉強や仕事に集中できない	28. のどが痛い
10. 耳鳴りがする	29. のどがつまる
11. ひきつけを起こした	30. 変な味がする
12. 立ち上がるとクラクラする	31. 皮膚がある
13. 体がだるい/疲れやすい	32. 皮膚がかゆくなる
14. 微熱がでる	33. じんましんがでる
15. 眼がいたい	34. 手足などがしびれる
16. 眼がかすむ	35. 関節や体の節々が痛む
17. 目の前が暗くなる	36. 筋肉痛や筋肉の不快感がある
18. 眼がかゆくなる	
19. 鼻が刺激される	

表2 2002年夏季におけるAビルおよびBビルの揮発性有機化合物質の室内濃度

	空気中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)								
	A ビル						B ビル		
	実習室	研究室	外気	会議室	セミナー室	講義室	講義室	研究室	外気
トルエン	7.4	13.3	4.8	58.2	21.0	15.2	14.0	12.6	12.6
<i>p</i> -ジクロロベンゼン	<0.2	1.3	<0.2	2.9	1.5	1.4	53.2	8.7	0.7
酢酸エチル	2.6	48.9	2.0	5.9	8.6	9.3	5.5	5.2	5.1
<i>n</i> -ブチルアルコール	4.0	7.6	<0.2	33.3	19.4	2.9	4.4	9.5	<0.1
2-エチル-1-ヘキサノール	25.0	77.1	<0.1	1,182.9	565.1	231.9	4.8	6.2	<0.2
アセトン	8.8	15.5	4.4	14.0*	10.8*	5.5*	17.4	16.4	16.6
ホルムアルデヒド	26.6	37.3	8.5	50.6*	38.3*	58.9*	43.9	48.4	**
アセトアルデヒド	5.1	12.5	0.9	8.3*	5.1*	2.6*	5.1	7.6	1.8
平均気温 ($^{\circ}\text{C}$)	30.9	28.2	25.1	25.7	26.4	25.3	30.8	29.8	26.2
平均湿度 (%)	33	45	42	68	60	65	54	58	75
調査年月	2002年8月			2002年9月			2002年9月		

いずれかの測定場所で $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の濃度で検出された物質のみ示した

*: 2002年8月に測定 ** : 直前のピークのテーリングのために測定不能であった

表3 Aビルにおける2-エチル-1-ヘキサノール濃度の経時推移

調査年月	空気中2-エチル-1-ヘキサノール濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) (気温 $^{\circ}\text{C}$, 湿度%)					
	会議室	セミナー室	講義室	研究室	実習室	外気
2001年3月	405(22.0, 36)	—	—	85.3(23.0, 40)	—	—
8月	408(24.6, 75)	1,086	198	222	65.5	0.9(26.7, 73)
11月	112(22.6, 44)	205	52.0	52.4	4.5	0.6(15.0, 46)
2002年2月	212(20.9, 38)	165	53.2	35.7	27.9	0.3(9.3, 50)
8月	—	—	—	77.1(28.2, 45)	25.0(30.9, 33)	<0.1(25.1, 42)
9月	1,183(25.6, 68)	565(26.4, 60)	232(25.3, 65)	—	—	—

—: 欠測

表4 Aビルにおける換気の有無による揮発性有機化合物質の室内濃度 (2002年9月)

	空気中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)					
	会議室		セミナー室		講義室	
	換気無	換気有	換気無	換気有	換気無	換気有
トルエン	58.2	14.9	21.0	28.1	15.2	3.0
<i>n</i> -ブチルアルコール	33.3	5.6	19.4	3.9	2.9	4.0
2-エチル-1-ヘキサノール	1,183	336	565	92.4	232	65.5
アセトン*	14.0	9.6	10.8	11.4	5.5	—
ホルムアルデヒド*	50.6	38.1	38.3	28.6	58.9	—
平均気温 ($^{\circ}\text{C}$)	25.7	26.4	26.4	26.7	25.3	24.3
平均湿度 (%)	68	44	60	38	65	43

いずれかの測定で $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の濃度で検出された物質のみ示した

—: 欠測 * : 2002年8月に測定

他のフタル酸エステルと比較して高濃度であった。2E1H濃度が高かった会議室とセミナー室のDEHP濃度は、研究室と実習室より高い傾向にあったが、その濃度差は0.6~1.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度と小さかった(表5)。

2) Aビルにおける2E1Hの発生源に関する検討

(1) 床材からの単位面積あたりVOC放散量

Aビルの床からは2E1H, ブチルアルコール, メチルエチルケトンが放散量の定量下限値を超えて検出され, 単位時間面積あたり2E1H放散量は, 会議室, セミナー室がほぼ同じで実習室の40倍強に達し, 各部屋の室内濃度の高低とほぼ対応

していた(表6)。

(2) 会議室の椅子からのVOC放散量

2E1Hは外気からは検出されなかったが, 椅子の座面表面を通過した空气中2E1H濃度は14.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で, 椅子からの放散が示された。椅子1脚からの1日当たり2E1H放散量は4.1 mg, 会議室の椅子全体(61脚)からの1日当たり2E1H放散量は250 mgと推定され, 床からの1日当たり2E1H放散量(2,217 mg)の約11%に相当していた。

(3) 内装材表面における2E1Hおよびフタル酸エステルの検出

2E1Hは調査した内装材いずれの表面からも検出されなかったのに対して, DEHPはセミナー

表5 Aビルにおける空气中フタル酸エステル濃度(2002年8月)

化合物名	空气中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)			
	会議室	セミナー室	研究室	実習室
フタル酸ジメチル	<0.02	0.05	0.03	<0.02
フタル酸ジエチル	<0.01	0.03	0.21	<0.01
フタル酸ジイソブチル	0.03	0.09	0.33	0.04
フタル酸ジブチル	2.92	4.14	4.06	6.41
フタル酸ブチルベンジル	0.03	0.04	0.02	0.02
フタル酸ジエチルヘキシル	1.44	1.44	0.31	0.86

フタル酸ジイソプロピル, フタル酸ジプロピル, フタル酸ジペンチル, フタル酸ジヘキシル, フタル酸シクロヘキシルは検出限界以下

表6 Aビルにおける床からの揮発性有機化合物質放散量(2002年8月調査)

化合物名	放散量 ($\mu\text{g}/\text{時間} \cdot \text{m}^2$)		
	会議室	セミナー室	実習室
2-エチル-1-ヘキサノール	620	623	14.3
ブチルアルコール	43.0	46.2	28.7
メチルエチルケトン	22.3	20.7	8.0
床面温度 ($^{\circ}\text{C}$)	26.9	29.8	30.6

上記3種類の揮発性有機化合物以外はいずれも定量下限値未満

表7 両ビルの講義室における学生の自覚症状

	Aビル (n=271)	Bビル (n=209)	オッズ比 ^a (95%信頼区間)
何らかの症状を有する者	13	7	1.5 ^b (0.6-3.7) 1.1 ^c (0.4-3.3)
何らかの症状を有する者(「寒い」との訴えを除く)	9	7	1.0 ^b (0.4-2.7) 0.7 ^c (0.2-2.4)
中枢神経系症状	2	4	0.4 ^b (0.1-2.1)
自律神経系症状	2	2	0.8 ^b (0.1-5.5)
疲労感	1	2	0.4 ^b (0.0-4.3)
鼻・のど・下気道の症状	4	0	—
関節痛・筋肉痛	2	0	—
ペンキや接着剤のにおいがする	1	0	—
寒い	6	0	—

(いずれかのビルで訴えの見られた症状のみ記した)

^a Bビルにおける自覚症状のオッズを1とした。

^b 背景要因を未調整のオッズ比。

^c 性, 年齢, 喫煙経験, 花粉症, アトピー性皮膚炎・花粉症・気管支喘息以外のアレルギー歴を調整後のオッズ比。「鼻・のど・下気道の症状」, 「関節痛・筋肉痛」, 「ペンキや接着剤のにおいがする」, 「寒い」については, Bビルの有症率が0のためオッズ比を計算できない。

室の床と壁、実習室の床の金属板表面およびタイルカーペット裏面から大量に検出された。フタル酸ジブチルも調査したすべての内装材表面から微量ではあったが検出された。この2物質以外のフタル酸エステルは検出されなかった。

2. 講義室における学生の自覚症状

Aビル講義室では空調の効き過ぎによる「寒い」という訴えが6人に認められたが、この訴えを除く何らかの症状を有する学生は、Aビル9人(3.3%)、Bビル7人(3.3%)で、中枢および自律神経系症状、疲労感も含めて、Bビル学生に対するAビル学生のオッズ比に有意な上昇はみられなかった。鼻・のど・下気道の症状、関節痛・筋肉痛、ペンキや接着剤のにおいがするとの訴えは、Aビルのみで1~4人にみられた(表7)。喫煙者で症状を訴えた者はなく、年齢、飲酒習慣、アレルギー疾患や偏頭痛の既往のいずれも症状との間に有意な関連は認められなかった。

IV 考 察

1. 2E1H室内濃度とその経時変化

2E1Hは竣工後4年以上経過したAビルの調査した全部屋で検出され、夏季には一部でTVOC濃度の暫定目標値(400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)⁹⁾を超えていた。時間経過による濃度低下傾向の認められなかった点がホルムアルデヒドやトルエンなどの場合^{25,26)}と明らかに異なるため、室内における2E1Hの継続的な発生・放散が推測された。築後30年以上を経たBビルの2E1H濃度はAビルと比較すると著しく低かったが外気濃度よりは高く、古い建物でも室内に発生源のあることが示唆された。その他のVOCについては、2002年夏季のホルムアルデヒド濃度がAビル、Bビルともに名古屋市の住宅での室内濃度²⁷⁾(台所で14.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、寝室で16.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)に比べやや高いものの、ほぼ一般的な濃度であった。

今回測定したVOCは、とくに記した場合を除き部屋を密閉後にサンプリングしているので、その部屋に立ち入る学生・教職員が曝露されうる最高濃度に近いと考えられる。Aビル会議室、セミナー室は使用時以外は密閉状態となるが、使用する際には換気を行う場合が多い。また講義室は、空調が行われる授業期間中には換気量が多くなる。したがって、これらの部屋で在室者が実際に

曝露されるVOC濃度は、夏季においては表3に示された濃度よりは表4の「換気有」の濃度に近い。

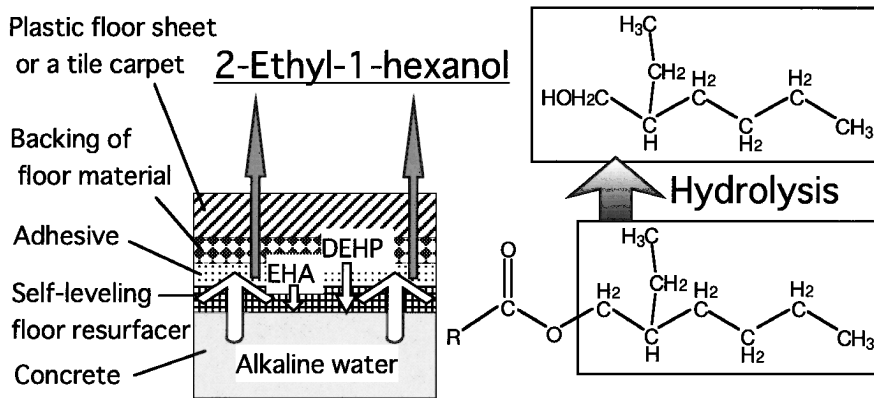
2. 室内での2E1H発生源の推定

当初、2E1Hの発生機序として、内装材から放散されたDEHPが空気中で持続的に加水分解する可能性を疑ったが、部屋間でのDEHP濃度の違いは2E1Hの濃度差と比較して非常に小さく、また、測定されたDEHP濃度は2E1Hが問題にならないビルや住宅での調査報告²⁸⁾とほぼ同程度で、この可能性は考えにくかった。また、2E1H室内濃度の高低にかかわらず内装材中にはDEHPが大量に検出されることから、無条件に2E1Hの発生源になるとも想定できなかった。しかし、床からの2E1H放散量は、床材がコンクリート表面に接していない実習室では少ない一方で、接触していた会議室およびセミナー室では多く、2E1H室内濃度の高低と対応していた。2E1Hはセミナー室の床表面の拭き取り液中に検出されなかったことから、床材の裏打ち材中のDEHPや接着剤中の2-エチルヘキシルアクリレートなど2-エチル-1-ヘキシル基を持つ化合物が、コンクリート中のpH12~13の強アルカリ性水分と床材裏面、接着剤層、またはコンクリート中で接触して加水分解し、2E1Hを放散させる(図1)と考えられる。夏季に室内濃度が高くなる点は温度が高いほど化学反応が進みやすいことで、床からの放散量がほぼ同じ会議室とセミナー室で室内濃度が異なった理由については、気積に対する床面積比や自然換気量の違いで説明できる。会議室では、皮革張り椅子からの2E1Hの放散も確認されたが、室内空気から椅子に吸着した同物質である可能性があり、椅子自体が2E1Hの新規発生源であるとは限らない。

3. VOC濃度と在室者の自覚症状

Aビル講義室での学生の自覚症状オッズの有意な上昇がみられなかったことより、空調装置運転下での2E1H濃度では集団として自覚症状の過剰出現はないことが推測される。ただし、両ビルのVOC濃度を比較したとき、Bビル講義室では*p*-ジクロロベンゼン濃度がAビル講義室より約50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (濃度比で38倍)高かった。この原因として、Bビルではトイレの防臭防虫剤として*p*-ジクロロベンゼンのボールが常用されていたため、講

- 図1 想定される2-エチル-1-ヘキサノール (2E1H) の発生機序。床材の裏打ち材中のフタル酸ジエチルヘキシル (DEHP) や接着剤中の2-エチルヘキシルアクリレート (EHA) など、2-エチル-1-ヘキシル基を持つ化合物がコンクリート中のpH 12~13の強アルカリ性水分により加水分解し、2E1Hを遊離すると考えられる。



義室内空気の汚染源になっていたと考えられる。Saijo らによる北海道の新築家屋の調査では、*p*-ジクロロベンゼンの濃度10倍あたりの症状オッズ比が1.6⁶⁾と報告されていることを考慮すると、本調査で得られたオッズ比は真の値より小さい可能性がある。しかし、有訴者数が少ないため、*p*-ジクロロベンゼンの影響を除いたとしてもこの調査集団でオッズ比の上昇が有意となることはない。

Aビルの教職員を対象にはほぼ同じ問診票を用いて前年夏に行った調査では、会議室(教職員のみ使用)での有訴率は26%(31人中8人)に達した一方、講義室での有訴率は3%(有訴者は本調査研究の発端となった化学物質過敏症患者1人のみ)であり¹¹⁾、本調査での学生の有訴率とはほぼ一致した。すなわち、空調装置稼働下の講義室での濃度65.5 μg/m³と会議室での336 μg/m³(表4)の間に、集団としての症状過剰出現の閾値があると考えられる。ただし、Aビルのみでみられる鼻・のど・下気道の症状は、会議室では複数の教職員の、講義室では上記の症例の主訴¹¹⁾であることを考慮すると、同症状が2E1Hに対する高感受性者のものである可能性も現時点では排除しない方がよいと思われる。特定の建物使用者を対象とする横断研究では、頻度の低い症状の過剰出現の検出力が不足するため、有訴者の個人曝露濃度に着目し、症状を自覚するときの曝露濃度と無症状のときの濃度を比較し、どの化学物質の濃度と症状とが関連しているか明らかにする手法²⁹⁾も試み

られるべきであろう。

2E1Hは職業性曝露時の許容濃度が世界的に決定されていない物質で、経口、経皮、経気道曝露による急性毒性は低いが刺激性があり、とくに、眼に対する強い刺激作用が報告されている^{30,31)}。他のアルコール類と異なり、げっ歯類の肝においてペルオキシゾームを誘導する³²⁾ため、DEHPとともに肝における発がん性の有無が注目され、雌雄のラットおよびマウスを用いた2E1Hの18か月反復経口投与試験では、雌マウスのみで食餌摂取量や体重減少がみられる最高量(750 mg/kg)投与群で、肝細胞がん発症マウスの増加が報告されている³³⁾。しかし2E1Hに変異原性はなく、このごく限定的な発がん増加所見のみからただちに大気や一般室内環境中濃度での発がんリスク評価を行うべきとは考えにくい。すなわち、健康影響としては粘膜刺激性や中枢神経系への影響^{32,34)}を念頭に置いた対策を進めるべきであろう。建築基準法では学校の居室の換気回数(室内空間の気積の空気が1時間に外気と入れ替わる回数)は最低0.3回と定められているが、この換気回数のもとで床からの2E1H放散量より求めた室内濃度の計算値は、会議室で482 μg/m³、セミナー室で606 μg/m³に達し、窓を開けるなどして換気量を補わなければTVOC濃度の暫定目標値は達成されないことになる。発生源対策の必要な所以である。

V 結 語

2E1Hの室内空気中濃度が高い建物では、竣工後時間が経過しても濃度は低下しないこと、2E1Hはタイルカーペットや長尺シートがコンクリート下地に接触する床より放散されることを明らかにした。室内VOC対策としては、塗料や接着剤、内装材等に含まれ空気中に放散する物質が主に注目され、加水分解反応により生成する可能性のあるアルコール類は現在考慮されていない^{35,36)}。通常、濃度測定の対象となるのは指針値策定物質および市販の定量用標準品に含まれる物質であるため、2E1Hの問題は見過ごされていると考えられる。実態の調査、発生原因の検証と対策の確立、高感受性者に注目した量反応関係の解明が必要である。

床材からのVOC放散量測定に際しご協力頂きましたジーエルサイエンス株式会社の星野邦広様に感謝します。本研究費用の一部は、平成12～14年度厚生労働科学研究費補助金（健康科学総合研究事業）「シックハウス症候群の病態解明，診断治療法に関する研究」による助成を受けた。

（受付 2005. 3.25）
（採用 2005. 9.21）

文 献

- 1) Kreiss K. Sick building syndrome and building-related illness. In: Rom WN, ed. Environmental and Occupational Medicine. Philadelphia: Lippincott-Raven Publishers, 1998; 1471-1477.
- 2) Fischman ML. Building-associated illnesses. In: LaDou J, ed. Occupational and Environmental Medicine. Stamford: Appleton and Lange, 1997; 723-732.
- 3) Hodgson M. Indoor environmental exposures and symptoms. Environ Health Perspect 2002; 110 Suppl 4: 663-667.
- 4) 日本建築学会，編．シックハウス事典．東京：技報堂出版，2001；2-4.
- 5) 花井義道，陳 永紅，中西準子．建材による室内空気汚染．横浜国大環境研紀要 1996; 22: 1-10.
- 6) Saijo Y, Kishi R, Sata F, et al. Symptoms in relation to chemicals and dampness in newly built dwellings. Int Arch Occup Environ Health 2004; 77: 461-470.
- 7) Takigawa T, Horike T, Ohashi Y, et al. Were volatile organic compounds the inducing factors for subjective symptoms of employees working in newly constructed hospitals? Environ Toxicol 2004; 19: 280-290.
- 8) 厚生労働省．室内空気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．医薬発第0207002号，2002.
- 9) 厚生省．室内空気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．生衛発第1852号，2000.
- 10) 厚生省．居住環境内における揮発性有機化合物の全国実態調査，1999.
- 11) Kamijima M, Sakai K, Shibata E, et al. 2-Ethyl-1-hexanol in indoor air as a possible cause of sick building symptoms. J Occup Health 2002; 44: 186-191.
- 12) Hodgson A, Wooley J, Daisey J. Emissions of volatile organic compounds from new carpets measured in a large-scale environmental chamber. J Air Waste Manage 1993; 43: 316-324.
- 13) Pleil JD, Whiton RS. Determination of organic emissions from new carpeting. Appl Occup Environ Hyg 1990; 5: 693-699.
- 14) Follin T. Measurements during airing out pollutions from concrete slabs. Indoor Air 1996 (Proceedings of the 7th International Conference on Indoor Air Quality and Climate). Tokyo: Organizing Committee of the 7th International Conference on Indoor Air Quality and Climate, 1996: 65-70.
- 15) European Collaborative Action 'Indoor Air Quality and its Impact on Man'. Evaluation of VOC emissions from building products (solid flooring materials) (Report No. 18, EUR 17334 EN). Luxembourg: Office for Official Publications of the European Communities, 1997.
- 16) European Collaborative Action 'Indoor Air Quality and its Impact on Man'. Total volatile organic compounds (TVOC) in indoor air quality investigations (Report No. 19, EUR 17675 EN). Luxembourg: Office for Official Publications of the European Communities, 1997.
- 17) Reiser R, Meile A, Hofer C, et al. Indoor air pollution by volatile organic compounds (VOC) emitted from flooring material in a technical university in Switzerland. Indoor Air 2002 (Proceedings of the 9th International Conference on Indoor Air Quality and Climate). Santa Cruz: Organizing Committee of the 9th International Conference on Indoor Air Quality and Climate, 2002; 1004-1009.
- 18) Bako-Biro Z, Wargocki P, Weschler CJ, et al. Effects of pollution from personal computers on perceived air quality, SBS symptoms and productivity in offices. Indoor Air 2004; 14: 178-187.
- 19) Wieslander G, Norbäck D, Nordström K, et al. Nasal and ocular symptoms, tear film stability and biomarkers in nasal lavage, in relation to building-

- dampness and building design in hospitals. *Int Arch Occup Environ Health* 1999; 72: 451-461.
- 20) Norbäck D, Wieslander G, Nordström K, et al. Asthma symptoms in relation to measured building dampness in upper concrete floor construction, and 2-ethyl-1-hexanol in indoor air. *Int J Tuberc Lung Dis* 2000; 4: 1016-1025.
- 21) Uchiyama S, Hasegawa S. A reactive and sensitive diffusion sampler for the determination of aldehydes and ketones in ambient air. *Atm Environ* 1999; 33: 1999-2005.
- 22) 斎藤育江, 瀬戸 博, 竹内正博. 室内空气中化学物質が原因とみられる健康阻害の事例について. *東京衛研年報* 49, 225-231 (1998).
- 23) 斎藤育江, 大貫 文, 瀬戸 博, 他. 空气中フタル酸エステル類および有機リン酸エステル類の分析法. *東京衛研年報* 2001; 52: 201-207.
- 24) 田中 一, 藤井修二, 湯浅和博, 他. 二重管式チャンバーによるクリーンルーム構成材から発生する揮発性有機化合物の評価方法. *日本建築学会計画系論文集* 1999; 520: 55-59.
- 25) 南 珠恵, 松本 浩, 近藤文雄, 他. 新築住宅における室内空気汚染物質濃度の経時変化について. *日本公衛誌* 2002; 49: 211-221.
- 26) 斎藤育江, 瀬戸 博, 多田宇宏, 他. 住宅の室内ホルムアルデヒドおよび揮発性有機化合物濃度の経時変化. *東京衛研年報*. 1999; 50: 235-239.
- 27) 酒井 潔, 三谷一憲. 名古屋市内の住宅の室内空気環境実態調査 (第5報) 室内空气中ホルムアルデヒド濃度. *名古屋市衛研報* 2002; 48: 51-56.
- 28) 斎藤育江, 大貫 文, 瀬戸 博. 室内空气中フタル酸エステル類の測定. *室内環境学会誌* 2002; 5: 13-22.
- 29) Shinohara N, Mizukoshi A, Yanagisawa Y. Identification of responsible volatile chemicals that induce hypersensitive reactions to multiple chemical sensitivity patients. *J Expo Anal Environ Epidemiol* 2004; 14: 84-91.
- 30) Smyth HF, Carpenter CP, Weil CS, et al. Range-finding toxicity data: List VII. *Am Ind Hyg Assoc J* 1969; 30: 470-476.
- 31) Scala R, Burtis E. Acute toxicity of a homologous series of branched-chain primary alcohols. *Am Ind Hyg Assoc J* 1973; 34: 493-499.
- 32) Lington A, Bevan C. Alcohols. In: Clayton GD and Clayton FE, eds. *Patty's Industrial Toxicology*. New York: John Wiley & Sons, Inc, 1994; 2585-2760.
- 33) Astill BD, Gingell R, Guest D, et al. Oncogenicity testing of 2-ethylhexanol in Fischer 344 rats and B6C3F1 mice. *Fundam Appl Toxicol* 1996; 31: 29-41.
- 34) 後藤 稠, 池田正之, 原 一郎. 編. *産業中毒便覧 (増補版)*. 東京: 医歯薬出版, 2001; 745.
- 35) 健康住宅研究会, 編. *室内空気汚染の低減化のためのユーザーズ・マニュアル*. 東京: 財住宅・建築省エネルギー機構, 1998.
- 36) 快適で健康的な住宅に関する検討会議, 編. *快適で健康的な住宅に関するガイドライン—快適で健康的な居住環境を実現するために—*. 東京: ぎょうせい, 1998; 28-34.

INDOOR AIR POLLUTION DUE TO 2-ETHYL-1-HEXANOL AIRBORNE CONCENTRATIONS, EMISSION SOURCES AND SUBJECTIVE SYMPTOMS IN CLASSROOM USERS

Michihiro KAMIJIMA*, Eiji SHIBATA^{2*}, Kiyoshi SAKAI^{3*}, Hiroyuki OHNO^{3*},
Shinya ISHIHARA^{4*}, Tetsuya YAMADA^{5*}, Yasuhiro TAKEUCHI*, and Tamie NAKAJIMA*

Key words : 2-ethyl-1-hexanol, floors, concrete, hydrolysis, indoor air pollution, sick building syndrome

Objective 2-Ethyl-1-hexanol (2E1H) is a volatile organic compound (VOC) which seldom attracts attention in Japan. This study aimed at clarifying changes in its concentration over time, emission sources, and students' symptoms in classrooms of a university building where indoor air was found to be markedly polluted with 2E1H.

Methods From March 2001 through September 2002, we measured VOC concentrations in Building A, constructed in 1998, as well as Building B (Sept. 2002), constructed over 30 years ago and considered as a control. Airborne concentrations of 13 carbonyl compounds were quantified with diffusive samplers and high-performance liquid chromatography, and those of 41 other VOCs with an active sampling method using charcoal tubes and a gas chromatograph with a mass spectrometer (GC-MS). In August 2002, we also measured VOC emissions from the floors using double-cylinder chambers and the airborne concentrations of phthalate esters by filtration sampling, both by GC-MS. Subjective symptoms in 315 student classroom users in Building A and 275 in Building B were surveyed in July 2002 with anonymous self-administered questionnaires.

Results 2E1H concentrations in Building A, which exceeded the Japanese recommended threshold of total VOCs ($400 \mu\text{g}/\text{m}^3$) in some measurements, tended to be lower in winter and higher in summer, and did not show any tendency for decrease over time. No association was found between indoor concentrations of phthalate esters and those of 2E1H. The concentrations clearly differed between rooms, related to emission rates from the floors. Carpeting materials had been placed directly on the concrete floors in rooms with higher emission levels, whereas the carpeting materials and the concrete floor did not make contact in the room where emission was lower. The odds ratio for subjective symptoms with students in classrooms in Building A was not higher than in Building B where the 2E1H concentrations were low. However, a few students limited to Building A did complain of problems with the nasal passages, throat and lower airways.

Conclusion Compounds containing 2-ethyl-1-hexyl moiety are presumably hydrolyzed to emit 2E1H when the backing of carpeting material is in contact with concrete floors. Although no significant difference was observed in symptoms between the student groups in the two buildings, this was possibly due to the small sample size. Measures to prevent 2E1H emission and dose-response relationships in sensitive individuals should be studied further.

* Department of Occupational and Environmental Health, Nagoya University Graduate School of Medicine

^{2*} Department of Health and Psychosocial Medicine, Aichi Medical University School of Medicine

^{3*} Nagoya City Public Health Research Institute

^{4*} Aichi University of Education

^{5*} Kaikoukai Toyota Kyoritsu Clinic