

特定建築物における揮発性有機化合物による室内空気汚染

2002年建築物衛生法改正後の実態と残された問題点

サカイ 酒井 潔* キヨシ 上島 通浩^{2*} シバタ 柴田 英治^{3*}
 オオノ 大野 浩之* ナス 那須 民江^{4*}

目的 建築物衛生法の環境衛生管理基準に「ホルムアルデヒド (HCHO) の量」が追加された2002年以降に竣工した特定建築物における揮発性有機化合物 (VOC), 特に未規制 VOC である2-エチル-1-ヘキサノール (2E1H) による室内空気汚染の実態を明らかにする。

方法 調査対象建物は2003年から2007年までの5年間に名古屋市半数の区内で届出のあった全特定建築物98ビルであった。竣工後1年以内に届出のあった61ビル中57ビル (93%) の175室で空気環境調査を行った。VOC 濃度は24時間パッシブサンプリング・高速液体クロマトグラフ法 (13物質) またはガスクロマトグラフ-質量分析法 (32物質) で測定した。

結果 HCHO 濃度は全室内で管理基準 (100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) を下回っていた。室内濃度指針値が設定されているトルエン, キシレン, エチルベンゼン, スチレン, *p*-ジクロロベンゼンならびにアセトアルデヒドの各濃度も大半の室内で指針値未満であり, 指針値を超過していた場合の原因も室内に持ち込まれた物品であると推定された。2E1Hは99%の室内で検出され, 57ビル中4ビルではその一部の室内で2E1H単独の濃度によって総揮発性有機化合物 (TVOC) の暫定目標値 (400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) を超えていた。同時期に竣工後1年以内に届出のあったと推定される全国の特定建築物約4400ビル中310ビル (7%) で, 2E1H濃度がTVOC暫定目標値を超える部屋を有する可能性があった。

結論 2003年以降に竣工した特定建築物でのVOCによる室内空気汚染レベルは低いと考えられたが, 一部の特定建築物ではTVOC暫定目標値を超える2E1H濃度が観察された。2E1Hはシックビルディング症候群の原因となることが疑われる物質であり, 建物の躯体や建材などの組合せによって竣工後に二次的に発生する可能性があるため, 室内空気汚染物質のひとつとして今後注目すべきである。

Key words : 2-エチル-1-ヘキサノール, 室内空気汚染, 建築物, ホルムアルデヒド, 揮発性有機化合物

I 緒 言

1970年代の二度のオイルショック後のビルでは, 省エネ対策として建物の気密化や外気導入量の削減が進められた。その結果, 1970~80年代になると欧米では居住者の間に不定愁訴を訴える人が増加し,

シックビルディング症候群 (SBS) として認知されるようになった。わが国では1970年に制定された建築物における衛生的環境の確保に関する法律 (建築物衛生法) によって, 特定建築物^注では二酸化炭素などの室内空気質の維持が義務付けられていた。そのために一定の外気導入量が確保されていたために, 欧米とは異なってSBSなどの室内空気汚染問題の顕著な発生をみることはなかったとされる¹⁾。しかし, 1990年代以降になると, 住宅の省エネ対策

* 名古屋市衛生研究所

^{2*} 名古屋市立大学大学院医学研究科医学教育・社会医学講座環境保健学分野

^{3*} 愛知医科大学医学部衛生学講座

^{4*} 名古屋大学大学院医学系研究科社会生命科学講座環境衛生学

連絡先: 〒467-8615 愛知県名古屋市瑞穂区萩山町1-11

名古屋市衛生研究所 酒井 潔

注) 興行場, 百貨店, 集会場, 図書館, 博物館・美術館, 遊技場, 店舗, 事務所, 学校および旅館の用途に用いられる建築物のうち, 延べ面積が3000 m^2 以上 (学校教育法第1条に規定する学校の場合は8000 m^2 以上) である建築物

の進展に伴って住宅の気密性や断熱性の向上が進み、建築物衛生法の対象外であった一般住宅でSBSと同様な症状を訴える人々が急増し、シックハウス症候群として社会問題となった。

住宅での室内空気汚染対策として、2000年にホルムアルデヒド (HCHO)、トルエン、キシレンおよび *p*-ジクロロベンゼンの室内濃度指針値が設定され²⁾、2002年までに13物質の室内濃度指針値が設定された³⁾。2002年の建築基準法改正では、シックハウス対策としてHCHOを放散する建材の使用制限や24時間機械換気設備の設置が義務付けられた。その結果、2000年度から2005年度の間で新築住宅(竣工後1年以内の住宅)での揮発性有機化合物(VOC)濃度は低減化傾向にあり、VOCによる室内空気汚染の改善が進んだ⁴⁾。特定建築物での室内空気汚染に対しては、2003年から建物使用開始時などにおけるHCHO濃度の測定が義務化された。室内濃度指針値が設定されているHCHOを含むVOCに関して、特定建築物での室内空気汚染の実態に関する調査は行われている^{5~9)}が、調査結果の評価には対象となった建物の選択基準や調査季節、築後年数の影響を考慮する必要がある。

わが国でシックハウス対策の念頭に置かれているVOCは、1997-98年に旧厚生省が住宅を対象に実施した全国調査で測定された約40物質¹⁰⁾とプラスチック可塑剤および殺虫剤が主であるが、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(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1000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 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による著しい室内空気汚染がみられた建物と築後30年以上経過して2E1H濃度が低い建物の在室者の自覚症状を比較した結果、鼻、のど、下気道の症状を有する者は前者のみでみられた¹²⁾。欧米では、2E1Hはカーペット、コンピュータ、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ており^{13~16)}、喘息症状¹⁷⁾や鼻・眼の症状¹⁸⁾との関連が指摘されている。また、2E1Hが高濃度の室内では、皮膚、眼、呼吸器官などの粘膜が刺激される可能性がある¹⁹⁾。欧米では2E1Hによる室内空気汚染の実態調査報告がすでにある^{15,18,20,21)}。しかし、わが国では2E1H

の室内濃度指針値は設定されておらず、旧厚生省が行った住宅でのVOCによる室内空気汚染実態の全国調査¹⁰⁾での調査対象物質にも含まれていなかったために、通常測定されていない。著者らは2E1Hによって発症したことが疑われるSBSの症例を2002年に報告¹¹⁾したが、それ以降も、2E1Hによる室内空気汚染の実態報告は著者らの報告^{7,8,22)}を含めて非常に限られている^{23~25)}。

本研究の目的は、HCHO濃度測定が義務付けられた後の2003年から2007年に名古屋市の半数の区内で竣工した全ての特定建築物を対象として、VOC、特に未規制VOCである2E1Hによる室内空気汚染の実態を明らかにすることである。

II 研究方法

1. 調査対象および調査時期

1) 調査対象施設

調査地域は名古屋市のほぼ北半分を占めており、その面積は全市の50%、人口では54%を占める(2008年)²⁶⁾が、名古屋市内の特定建築物の39%が集中する中区を含まないために、2007年度末での対象地域内の特定建築物届出ビル数は名古屋市内全体の40%である²⁷⁾。

調査対象建物は2003年から2007年に届出のあった全特定建築物で、原則として竣工後1年以内に調査した。表1に調査年別の特定建築物届出数と空気環境測定を実施したビル数を示した。届出ビル総数は98ビルで、同期間での名古屋市の届出ビル総数238ビルの41%であった。竣工後1年以内の届出ビル数は61ビルであり、そのうちの57ビル(913%)で空気環境調査を行った。未調査の4ビルの内訳は事務所2ビル(2003年竣工、3177 m^2 および4524 m^2)と旅館2ビル(2004年竣工・3903 m^2 、2007年竣工・5128 m^2)であった。竣工後1年を超えて届出のあった特定建築物数は同期間での届出ビル総数の38%であった。これは、2002年の建築物衛生法改正に伴って、従来は特定建築物から除外されていた10%除外規定適用建築物(事務所などの特定用途以外に使用される面積が10%を超えていた建築物)に新たに届出義務が生じた。その結果、2003年4月以降これらの届出が徐々に行われるようになったが、それらは竣工後1年を超えていたためである。

2) 調査場所

HCHO濃度の測定は各階の任意の部屋で行うことになっているが、今回はできるだけ多くの階を選び、その階の任意の居室でサンプリングを行った。室内の測定位置は原則として部屋の中央付近であり、外気は調査建物からの排気の影響を受けないと

表1 名古屋市および今回の調査地域における特定建築物届出ビル数

調査年	名古屋市				今回の調査地域			
	届出ビル数 (A)	竣工後1年以内の届出ビル数 (B)	届出ビル数 (C)	竣工後1年以内の届出ビル数 (D)	名古屋市の届出ビル数に占める割合 (%)		竣工後1年以内に届出があって測定を実施したビル数 (E)	竣工後1年以内に届出があって測定を実施したビルの割合 (%) (E/D)
					届出ビル数 (C/A)	竣工後1年以内の届出ビル数 (D/B)		
2003	82	31	31	10	38	32	10	100
2004	46	31	20	13	43	42	11	85
2005	41	32	17	12	41	38	11	92
2006	37	32	16	14	43	44	14	100
2007	32	29	14	12	44	41	11	92
全体	238	155	98	61	41	39	57	93

表2 調査した特定建築物の属性

主な用途	ビル数	総床面積 (m ²)	建物構造 ¹⁾			1ビル当りの総階数 (階) ²⁾	1ビル当たりの測定実施部屋数 (階) ²⁾	竣工後から測定までの月数 (月) ²⁾
			RC	S	SRC			
事務所	20	32,618 (3,201-193,451)	4	7	9	14.7(4-53)	2.6(1-8)	4.9(0-17)
百貨店	12	25,511 (3,222- 82,391)	1	6	5	3.2(1-6)	2.8(2-5)	7.5(1-16)
店舗	11	25,977 (3,577-154,288)	2	7	2	4.4(1-13)	3.3(1-8)	4.5(1-18)
学校	11	13,497 (8,366- 24,388)	5	4	2	6.8(3-14)	4.2(2-6)	4.0(0-9)
遊技場	2	18,252(17,973- 18,531)	0	2	0	4.0(3-5)	2.5(2-3)	9.5(6-13)
興行場	1	19,759	0	1	0	5	3	3
全体	57	25,421 (3,201-193,451)	12	27	18	8.2(1-53)	3.1(1-8)	5.3(0-18)

¹⁾ RC：鉄筋コンクリート造，S：鉄骨造，SRC：鉄骨鉄筋コンクリート造，²⁾ 平均（範囲）

考えられる場所とした。それぞれ床（地）上75～120 cm で試料空気をサンプリングした。

3) 調査時期（季節）

空気環境調査を実施した季節とビル数は、春季13ビル41室、夏季16ビル59室、秋季10ビル27室、冬季18ビル48室であった。建築物衛生法で測定が義務付けられている HCHO 濃度の測定時期（6月～9月）に調査したビル数は22ビルであった。

4) 調査対象建物および室内の属性

表2に調査した特定建築物の属性を主な用途別にまとめた。測定した部屋数は175室であった。1ビル当たりの総階数（地上階数と地下階数の和）の平均（範囲）は8.2（1～53）階であったのに対して、測定実施部屋（階）数の平均（範囲）は3.1（1～8）室で、1ビル当たりの測定実施階数の総階数に対する割合は38%であった。ひとつの階で複数地点測定した場合は平均値をその階の測定値とした。竣工から測定までの月数の平均（範囲）は5.3（0～18）月であり、調査時に1年以内であったビル数は52ビル（91%）であった。

測定した全部屋に換気装置および空調装置が設置されていたが、実使用時間が不明な場合があったので、測定時間中での使用の有無で分類した。測定時間中に換気装置が運転されたことのあった部屋は153室（87%）であった。1つの部屋で複数地点測定した場合は、それらの平均値をその部屋の測定値とした。主な用途は事務室65室、売場64室および教室20室であった。調査時の竣工後月数の平均は5.0月であり、調査時の月数は築後3月以内が54室、築後4～6月が66室、築後7～12月が41室、築後12月超が14室で最長は築後18月であった。

2. 調査項目および調査方法

1) 揮発性有機化合物45物質

表3に示すVOC45種類を測定した。カルボニル化合物13物質はDSD-DNPHパッシブサンプラー（Supelco）で24時間サンプリングした後、高速液体クロマトグラフ分析法で定量分析した⁷⁾。その他のVOC32物質は高性能パッシブサンプラーVOC-SD（Supelco）で24時間サンプリングした後、ガスクロマトグラフ-質量分析法で定量分析した⁷⁾。2E1H濃

表3 揮発性有機化合物の検出割合, 室内・外気濃度および濃度の内外比

揮発性有機化合物	検出割合 (%)		空气中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)				空气中濃度の内外比 ¹⁾
	室内	外気	室内 ¹⁾	外気 ¹⁾	定量下限値	室内濃度指針値	
トルエン	100	100	24.5(2.2)	11.7(1.8)	1.4	260	2.2(2.2)
ホルムアルデヒド	100	100	15.2(2.0)	3.6(1.8)	0.7	100	4.2(2.4)
アセトアルデヒド	100	98	8.3(1.8)	1.9(1.8)	0.5	48	4.5(2.1)
2-エチル-1-ヘキサノール	99	49	13.5(4.0)	2.1(1.4)	1.8	—	6.6(3.7)
キシレン	99	89	10.9(2.0)	5.8(1.6)	3.6	870	1.9(2.0)
エチルベンゼン	99	95	6.5(2.0)	3.4(1.7)	1.6	3,800	1.9(1.9)
プロピオンアルデヒド	97	60	1.8(1.7)	0.9(1.0)	0.9	—	2.0(1.7)
アセトン	94	79	21.9(2.4)	7.0(1.5)	2.9	—	3.1(2.3)
ブチルアルデヒド	89	47	2.1(1.7)	1.4(1.2)	1.3	—	1.5(1.6)
n-ブタノール	86	30	6.0(2.7)	1.8(1.4)	1.5	—	3.5(2.5)
ベンゼン	85	77	2.0(1.6)	1.9(1.6)	1.2	—	1.1(1.5)
1,2,4-トリメチルベンゼン	84	68	4.4(2.2)	2.7(1.4)	2.0	—	1.6(2.1)
ヘキサアルデヒド	82	7	5.1(1.8)	3.0(1.1)	3.0	—	1.7(1.8)
ベンズアルデヒド	78	28	6.3(1.5)	4.8(1.1)	2.3	—	1.3(1.5)
酢酸ブチル	77	51	6.5(2.5)	3.3(1.3)	2.9	—	2.0(2.4)
n-ウンデカン	76	28	9.0(2.4)	4.6(1.4)	4.1	—	2.0(2.4)
酢酸エチル	74	30	9.0(2.7)	4.5(1.8)	3.8	—	1.9(2.9)
トルアルデヒド	73	49	4.4(1.5)	3.7(1.0)	3.7	—	1.2(1.5)
スチレン	69	23	3.7(2.0)	2.4(1.4)	2.1	220	1.6(1.9)
p-ジクロロベンゼン	69	28	3.7(1.8)	2.6(1.2)	2.4	240	1.4(1.8)
リモネン	67	28	4.0(1.9)	2.5(1.1)	2.4	—	1.6(1.9)
α -ピネン	66	30	3.9(2.2)	2.6(1.0)	2.6	—	1.5(2.2)
n-ヘキサン	61	53	4.2(2.0)	3.6(1.1)	3.5	—	1.2(1.9)
メチルイソブチルケトン	61	23	3.1(1.7)	2.3(1.2)	2.2	—	1.3(1.6)
n-ノナン	59	30	2.9(1.6)	2.4(1.1)	2.3	—	1.2(1.6)
メチルエチルケトン	58	26	4.4(2.2)	2.9(1.3)	2.6	—	1.5(2.1)
バレルアルデヒド	57	5	1.8(1.5)	1.4(1.0)	1.4	—	1.3(1.5)
n-デカン	53	21	10.1(1.6)	8.5(1.2)	4.1	—	1.2(1.6)
n-ヘプタン	50	21	1.5(1.5)	1.3(1.1)	1.3	—	1.2(1.5)
1,2,3-トリメチルベンゼン	45	28	2.6(1.4)	2.3(1.1)	2.3	—	1.1(1.4)
1,3,5-トリメチルベンゼン	43	25	2.3(1.5)	2.0(1.0)	1.9	—	1.2(1.5)
トリクロロエチレン	35	35	1.5(1.4)	1.5(1.3)	1.4	—	1.0(1.3)
クロロホルム	25	14	2.6(1.1)	2.5(1.0)	2.5	—	1.0(1.1)
n-オクタン	19	9	2.4(1.1)	2.2(1.2)	2.1	—	1.1(1.4)
四塩化炭素	14	16	1.8(1.1)	1.8(1.1)	1.8	—	1.0(1.1)
クロトンアルデヒド	12	18	1.3(1.2)	1.2(1.0)	1.2	—	1.0(1.2)
テトラクロロエチレン	11	5	1.8(1.6)	1.8(1.2)	1.7	—	1.0(1.6)
イソバレルアルデヒド	11	0	1.4(1.2)	1.4(1.0)	1.4	—	1.0(1.2)
2,5-ジメチルベンズアルデヒド	10	7	3.9(1.1)	3.9(1.2)	3.8	—	1.0(1.1)
1,2-ジクロロエタン	9	4	1.8(1.1)	1.8(1.0)	1.8	—	1.0(1.1)
2,4-ジメチルペンタン	7	4	1.9(1.3)	1.8(1.0)	1.8	—	1.0(1.3)
1,1,1-トリクロロエタン	6	9	2.4(1.0)	2.4(1.0)	2.4	—	1.0(1.0)
1,2-ジクロロプロパン	4	5	2.3(1.3)	2.2(1.0)	2.2	—	1.0(1.3)
クロロジプロモメタン	1	0	2.0(1.0)	2.0(1.0)	2.0	—	1.0(1.0)
アクロレイン	0	0	0.8(1.0)	0.8(1.0)	0.8	—	1.0(1.0)
総揮発性有機化合物	—	—	311(1.8)	140(1.2)	0.0	400 ²⁾	2.2(1.8)

調査室数：175室, 外気57箇所 ¹⁾ 幾何平均 (幾何標準偏差), ²⁾ 室内濃度暫定目標値

度の計算はアクティブサンプリング法との並行測定によって得られたサンプリングレート (23.2 mL/分) を使用した²²⁾。

VOC の定量下限値は、下記の方法で算出した値のうち、より大きな数値を採用した。①ロットごとにサンプラー5個の操作ブランクテストを行い、ブランク値の標準偏差を10倍した値、②検量線作成時の最低濃度 (200 ng/ml) の標準液を5回繰り返し分析して得られた濃度の標準偏差を10倍した値。定量下限値は測定日によって異なっていたので、本研究ではその最大値を採用した。

また、木質材料からの HCHO の放散は温度上昇によって促進されるので、同一室内でも季節によって HCHO 濃度が異なることが予想された。そこで、建築物衛生法で定められた HCHO 濃度の測定期間である6月から9月以外の時期の測定値は、下記の井上の式²⁸⁾を用いて、6月から9月の室温の平均値 (26.0°C) での気中濃度に換算して建築物環境衛生管理基準 (100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) と比較した。

$$C_t = C_{23} \times 1.09^{(t-23)}$$

C_t : 気温 $t^\circ\text{C}$ での気中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

C_{23} : 気温 23°C での気中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

2) 気温および湿度

Thermo Recorder TR-72S (ティアンドデイ) をパッシブサンプラーの近くに設置して15分間隔で測定した。

3) 建物および室内環境要因

建物 : 表2に示した項目

室内 : ①用途, ②在室人数, ③床面積, ④換気方式, ⑤空調方式, ⑥設定換気量, ⑦外気導入率, ⑧在室時間, ⑨換気時間, ⑩空調時間, ⑪窓等の開放時間

上記の環境要因は保健所職員が建築物維持管理担当者から聴取または直接確認した。

3. 統計学的方法

VOC の各濃度の分布は対数正規分布型に近かったため、濃度の平均値は幾何平均値で算出した。定量下限値未満の場合は、定量下限値の2分の1を測定値とした。室内用途間、季節間および築後月数間の平均値の差の検定は一元配置分散分析で、対比較は Scheffé の方法で行った。換気の有無による平均値の差の検定は t 検定で行った。統計解析ソフトは HALBOU7 (シミック) を用いた。

III 研究結果と考察

1. VOC による室内空気汚染実態

1) HCHO による汚染実態

表4に気温補正を行った HCHO 濃度を季節別お

表4 6月から9月の平均気温による濃度補正後の季節別ホルムアルデヒド濃度

	室数	温度補正後のホルムアルデヒド濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) ¹⁾		
		幾何平均 (幾何標準偏差)	最小-最大	
季節	春季	41	16.2(1.5)**	5-33
	夏季	59	25.5(1.7)	8-94
	秋季	27	17.6(1.6)*	6-42
	冬季	48	13.4(1.7)**	4-47
築後月数 (月)	1-3	54	20.7(1.6)**	8-94
	4-6	66	19.0(1.8) [†]	4-81
	7-12	41	13.9(1.5)	6-32
	13-	14	19.3(1.7)	5-47
全 体	175	18.1(1.7)	4-94	

¹⁾ 6~9月以外の測定日は6~9月の室温の平均値 (26.0°C) での気中濃度として換算した (文献番号: 28)。

* : $P < 0.05$, ** : $P < 0.01$, 夏季と比較して, [†] : $P < 0.05$, ** : $P < 0.01$, 築後7-12月と比較して (一元配置分散分析後, Sheffé の多重比較による)

よび築後月数別にまとめた。HCHO は全室内で検出された。特定建築物の非使用時間帯の HCHO 濃度は使用時間帯より高くなる傾向がある⁸⁾ので、24時間平均値である今回の測定値は建築物環境衛生管理基準に従った30分測定値と比較して過大評価している可能性があったが、全室内で管理基準 (100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) を下回っていた。HCHO 濃度の幾何平均値は季節間で有意差があり ($P < 0.01$), 夏季が最も高く、冬季が最も低かった。合板を用いた HCHO 放散量測定の実験では、温度が高くなると気中濃度が増加することが確認されている²⁹⁾。特定建築物でも気温上昇によって内装材などからの HCHO 放散が促進されることが示唆された。

2) HCHO 以外の VOC による汚染実態

室内空気中には多種類の VOC が存在し、その室内濃度は外気濃度より高いことが報告されている^{5,7,23,25)}。表3に VOC45種類の室内・外気濃度および濃度の内外比を室内での検出割合の降順に示した。今回の調査で室内濃度指針値が設定されていたトルエン, キシレン, エチルベンゼン, スチレン, *p*-ジクロロベンゼン, アセトアルデヒドのうち、ショッピングモールでのスイーツ類の販売店付近の1ヶ所でアセトアルデヒド濃度 (86 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) が室内濃度指針値を超えていた以外は、いずれも室内濃度指針値未満であった。

室内での検出割合が90%以上であったのは、トルエン, アセトアルデヒド, 2E1H, キシレン, エチ

ルベンゼン, プロピオンアルデヒド, アセトンの7物質であった。本研究ではこれら7種類のVOCにHCHOを加えた8物質を主要VOCとしてこれ以後の解析対象とした。室内濃度の幾何平均値はトルエンが最も高く, 次いでアセトン, HCHO, 2E1H, キシレンの順であった。これは, 著者らの既存の特定建築物での結果とほぼ同じであった^{7,22)}。室内濃度と外気濃度が同程度のVOCも多数あったが, いずれも検出割合が低く, 室内での発生源の有無の判断は困難であった。

また, 今回の調査では各室での正確な外気導入量や換気時間を得ることができなかったため, 換気の有無で比較した。換気は2E1Hを含めたVOC濃度の低減に有効である^{22,30)}が, 上記の主要VOC8種類の幾何平均値は, 換気が行われていた156室と行われていなかった19室の間で有意差はなく, 換気がVOC濃度に及ぼしていた影響は不明であった。

3) 室内の用途と汚染実態

表5に調査室数が多かった事務室, 売場および教室の主要VOC濃度をまとめた。事務室ではHCHOおよび2E1Hが, 売場ではトルエン, キシレンおよびエチルベンゼンが他の用途より高かった。

4) 築後月数と汚染実態

建物内の空気中VOC濃度は季節によって変化する場合が多い^{5,7)}ので, 表6に調査室数が最多であった夏季に測定した59室を対象として主要VOC濃度を築後月数別にまとめた。竣工後3月超のホルムアルデヒド濃度の幾何平均値は3月以内のそれより高い傾向にあったのに対して, 竣工後3月超のトルエン, 2E1Hおよびアセトンの各濃度の幾何平均値

は3月以内のそれより低い傾向にあったが, いずれも有意差はなかった。

5) 季節と汚染実態

建物の室内空気中VOC濃度は, 年数の経過とともに減少するとされている⁶⁾ので, 表7は調査室数が最多であった竣工後4月以降6月以内の66室を対象として, 季節別のVOC濃度をまとめたものである。HCHO, アセトアルデヒド, プロピオンアルデヒドの各濃度は冬季に最も低く, 気温の上昇に伴って増加する傾向にあったことより, 温度がVOCの放散に関連していることが示唆された。

2. 室内濃度が高かったVOCとその発生源

VOCによる空気汚染の指標と考えられるTVOC暫定目標値(400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)³¹⁾を超えていたのは, アセトン4室, キシレン1室, 2E1H4室であった。高濃度のアセトンは美容専門学校の教室と職員室, 高校の美術室と音楽準備室で検出された。美容専門学校での発生源としてマニキュア除光液が推定された。美術室および音楽準備室での発生源は不明であったが, 同一校舎内の教室や職員室では低濃度であったことから, 美術室や音楽準備室に持ち込まれた物品からの放散が推定された。高濃度のキシレンはショッピングモールの店舗で検出されたが, 別の階の店舗では低濃度であったことから, この店内に持ち込まれた商品から放散したと推定された。

一方, 高濃度の2E1Hが検出された4室は, 異なる大学3ビルでの教室, 教官室, コンベンションホールと事務所ビルの会議室であったが, 同一ビル内の他の部屋の2E1H濃度はいずれも130 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 未

表5 主な室内用途とその揮発性有機化合物濃度

揮発性有機化合物	空気中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) ¹⁾		
	事務室	売場	教室
トルエン	21.8(1.7)	40.0(2.2)**	12.2(1.4)**,**
ホルムアルデヒド	16.8(1.8)	13.3(2.1)*	12.2(1.9)
アセトアルデヒド	8.6(1.6)	8.2(1.8)	6.5(1.8)
2-エチル-1-ヘキサノール	19.5(3.7)	8.7(2.7)**	8.4(4.3)
キシレン	9.7(1.7)	13.6(2.1)*	6.9(1.7)**
エチルベンゼン	6.1(1.8)	7.9(2.2)	4.3(1.8)**
プロピオンアルデヒド	1.8(1.6)	1.8(1.7)	1.5(1.7)
アセトン	20.5(2.3)	21.2(1.9)	37.0(4.6)
室内気温 ²⁾	25.0 \pm 2.4	23.1 \pm 3.3**	23.2 \pm 4.9
築後月数 ²⁾	4.0 \pm 4.4	5.8 \pm 4.4	3.6 \pm 2.2
室数	65	64	20

¹⁾ 幾何平均 (幾何標準偏差), ²⁾ 算術平均 \pm 標準偏差

*: $P < 0.05$, **: $P < 0.01$ 事務室と比較して, **: $P < 0.01$ 売場と比較して (一元配置分散分析後, Shefféの多重比較による)

表6 築後月数とその揮発性有機化合物濃度 (夏季に測定した59室を対象として)

揮発性有機化合物	空気中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) ¹⁾		
	築後3月以内	築後4~6月	築後6月超 ³⁾
トルエン	29.9(2.4)	17.4(1.4)	18.6(1.4)
ホルムアルデヒド	23.5(1.7)	29.0(1.7)	28.7(1.8)
アセトアルデヒド	11.2(1.8)	11.1(1.6)	10.4(1.4)
2-エチル-1-ヘキサノール	27.3(4.1)	21.2(3.8)	20.1(4.8)
キシレン	13.1(2.7)	11.1(1.9)	13.5(1.6)
エチルベンゼン	7.8(2.8)	7.4(1.9)	8.0(1.6)
プロピオンアルデヒド	2.3(1.7)	2.3(1.6)	1.7(1.6)
アセトン	33.8(3.2)	17.0(2.0)	18.4(1.6)
室内気温 ($^{\circ}\text{C}$) ²⁾	25.6 \pm 1.7	26.3 \pm 1.2	26.9 \pm 2.1
外気温 ($^{\circ}\text{C}$) ²⁾	27.4 \pm 3.3	28.6 \pm 3.4	28.2 \pm 0.3
室数	32	21	6

¹⁾ 幾何平均 (幾何標準偏差), ²⁾ 算術平均 \pm 標準偏差, ³⁾ 最長11月

築後月数間での有意差なし (一元配置分散分析後, Shefféの多重比較による)

表7 季節とその揮発性有機化合物濃度（築後4月以上6月以内に測定した66室を対象として）

化合物名	空気中濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) ¹⁾			
	春 (3~5月)	夏 (6~8月)	秋 (9~11月)	冬 (12~1月)
トルエン	25.8(2.7)	17.4(1.4)	22.5(2.2)	24.5(1.9)
ホルムアルデヒド	14.5(1.3)**	29.0(1.7)**	19.5(1.8)**	7.1(1.5)
アセトアルデヒド	9.5(1.3)*	11.1(1.6)**	6.8(1.8)	5.5(1.7)
2-エチル-1-ヘキサノール	12.1(4.2)	21.2(3.8)	22.5(2.1)	10.3(2.7)
キシレン	10.5(1.9)	11.1(1.9)	10.6(1.9)	9.6(1.7)
エチルベンゼン	6.3(1.8)	7.4(1.9)	6.8(1.5)	5.6(1.7)
プロピオンアルデヒド	2.6(1.5)**	2.3(1.6)**	1.7(2.1)	1.2(1.5)
アセトン	34.9(1.9)	17.0(2.0)	27.3(4.3)	18.2(1.9)
室内気温 (°C) ²⁾	24.3±1.5**	26.3±1.2**	27.2±2.4**	19.3±4.1
外気温 (°C) ²⁾	16.7±3.0	28.6±3.4	27.4±0.4	8.4±2.6
室数	14	21	12	19

¹⁾ 幾何平均（幾何標準偏差），²⁾ 算術平均±標準偏差

*: $P < 0.05$, **: $P < 0.01$, 冬と比較して（一元配置分散分析後，Shefféの多重比較による）

満であった。床材の種類は長尺ビニルシートまたはフロアカーペットで、いずれも建物の躯体に直接接触していた。室内に2E1Hを含む物品は見当たらなかったため、2E1Hは建物自体に由来したと推定された。すなわち、床材の裏打ち材中フタル酸ジ-2-エチルヘキシルや接着剤中アクリル酸2-エチルヘキシルなどのような2-エチルヘキシル基を持つ化合物が、建物の躯体であるコンクリートに含まれる強アルカリ性水分と床材裏面、接着剤層あるいはコンクリート中で接触して加水分解した結果、2E1Hが発生すると考えられる¹²⁾。同一建物内の部屋の間でも大きな濃度差がみられた理由として、床材や接着剤の種類、コンクリート下地の水分率、床下構造などの条件が異なっていたために、上記のアルカリ加水分解の程度に違いが生じたと考えられる。

今回の結果は、高濃度の2E1H濃度が少数の建物でのみ検出され、同じ建物内の部屋の間でも大きな濃度差があった著者らの報告と一致している²²⁾。他の報告^{23~25)}では、大半の部屋で2E1Hが検出されていたが、その濃度は必ずしも高くはなかった。しかし、これらの調査対象建物数は少数であり、大半の建物での2E1H濃度が低かった今回の結果と矛盾するものではなかった。

3. 2E1Hによる室内空気汚染の拡がりの推定

2E1H濃度がTVOC暫定目標値を超えていた部屋のあった特定建築物は4ビル（7%）であった。2003年度から2007年度までの全国での特定建築物届出ビル数は6752ビルであった³²⁾が、その中には2002年の建築物衛生法改正に伴って、従来10%除外規定該当建築物であったビルの届出も含まれている。そ

こで、新築特定建築物（竣工後1年以内に届出のあった特定建築物）の割合がほぼ同時期の名古屋市内と同じ65%（155ビル/238ビル）と仮定すると、5年間に全国で届出のあった新築特定建築物数は約4400ビルとなる。さらにTVOC暫定目標値を超える2E1H濃度が検出される特定建築物の割合を今回の調査結果と同じ7%（4ビル/57ビル）として試算すると、2E1Hによる著しい室内空気汚染のある建物が2003年度からの5年間に全国で少なくとも約310ビル増加している可能性がある。

2E1Hの放散が始まった室内では、夏季に濃度が増加し、冬季には減少する季節変動を繰り返すが、年数が経過しても室内濃度の低下は認められないこと³³⁾から、長期間にわたって2E1Hの放散が続くことが推定される。したがって、今後も特定建築物数の増加に伴い、2E1H濃度の高い部屋を有する建物が毎年増加し続けると予想される。

床用接着剤や床仕上げ材の種類が2E1H放散量に及ぼす影響についての報告は既にある^{34,35)}が、セメントコンクリートの含水率以外に床材からの発生決定因子を実証した報告はない。今後、室内での2E1H発生を低減させるための研究が必要である。

4. 本研究の限界

本研究の調査地域は名古屋市内北半分で、2003年からの5年間の特定建築物届出ビル数は全国の1.5%（98ビル/6752ビル）であった。同一建物の部屋間のVOC濃度のバラツキが大きいことが報告されているが³⁶⁾、今回の調査結果は建物内の一部の部屋に限られていた。また、換気は2E1Hを含めたVOC濃度の低減に有効である^{22,30)}が、今回の調査

では各室での正確な外気導入量や換気時間を得ることができなかった。

しかし、本研究の調査対象は名古屋市北半分の5年間の新築特定建築物の全数であること、また各建物内での部屋のサンプリングは完全な無作為ではないが母集団の代表値から大きく外れる要因は見当たらないので、名古屋市内の5年間の新築特定建築物の特徴をある程度反映していると考えられる。また、今回の測定は原則として通常の室内使用条件で行われており、換気条件も実際の状態に近いものであったと考えられる。したがって、今回の結果から、全国で高濃度のVOCで汚染された室内を有する特定建築物の占める最低割合の推定は十分可能であると考えられる。

Ⅳ 結 語

2003年からの5年間に名古屋市内の半数の区内で竣工した全ての特定建築物を対象としてVOCによる室内空気汚染の実態を調査した結果、2002年に測定が義務付けられたHCHOを含むVOC濃度は大半の室内で指針値を下回っていた。一方、未規制VOCである2E1Hは99%の室内で検出され、少数の特定建築物の一部の室内ではTVOC暫定目標値を超える2E1H濃度が確認された。この結果を全国の特定建築物に外挿すると、2003年度からの5年間に竣工して2E1H濃度がTVOC暫定目標値を超える部屋を有する特定建築物が全国で少なくとも310ビル程度増加した可能性があった。2E1HはSBSの発症の原因となることが疑われる物質であること、建物の竣工後に放散が始まる可能性があること、さらにこの物質の放散が始まると長期間にわたって放散が続くことから、今後注目していく必要がある。

本研究は、名古屋市西保健所環境衛生広域指導班による新規届出のあった特定建築物への立入検査時に実施したVOCの空気環境測定の結果を使用した。本研究に多大なご協力をいただきました名古屋市健康福祉局西保健所環境衛生広域指導班の方々に厚くお礼申し上げます。また、本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費補助金(No. 20659094, No. 20929004)、市原国際奨学財団第15回(平成19年度)研究助成、(財)ビル管理教育センター調査研究費補助金および平成20~21年度厚生労働科学研究費補助金(シックハウス症候群の原因解明のための全国規模の疫学研究—化学物質及び真菌・ダニ等による健康影響の評価と対策—)による助成を受けた。

(受付 2009. 11. 20)
(採用 2010. 6. 1)

文 献

- 1) 池田耕一. 室内空気汚染の原因と対策. 東京: 日刊工業新聞社, 1998; 196-198, 233-236.
- 2) 厚生省生活衛生局長. 室内空气中化学物質の室内濃度指針値及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.
- 3) 厚生労働省医薬局長. 室内空气中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法等について. 医薬発第0207002号, 2002.
- 4) (財)住宅リフォーム・紛争処理支援センター. 平成17年度室内空気に関する実態調査報告書 概要版. 東京: (財)住宅リフォーム・紛争処理支援センター, 2006.
- 5) 大貫 文, 斉藤育江, 瀬戸 博, 他. 室内空气中化学物質の実態調査(ホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物)—平成13年度—. 東京衛研年報 2003; 54: 262-268.
- 6) 桑沢保夫, 大澤元毅, 坊垣和明, 他. 官庁建築物における室内空気環境実態調査(平成13年度から平成15年度における測定結果のまとめ). 日本建築学会環境系論文集 2005; 592: 29-33.
- 7) 酒井 潔, 中島重人. 名古屋市内の特定建築物における揮発性有機化合物による室内空気汚染 第1報 事務室および店舗における汚染実態. 名古屋市衛研報 2006; 52: 23-30.
- 8) 酒井 潔, 中島重人. 名古屋市内の特定建築物における揮発性有機化合物による室内空気汚染 第2報 使用時間平均濃度と1日平均濃度. 名古屋市衛研報 2006; 52: 31-38.
- 9) 井上ひとみ, 世良保美, 大谷 亮, 他. 室内空气中の揮発性有機化合物(VOC)量の年次推移について. 室内環境 2007; 10(2): 147-154.
- 10) 厚生省. 居住環境中の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) 上島通浩, 柴田英治, 酒井 潔, 他. 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. 日本公衛誌 2005; 52(12): 1021-1031.
- 13) Pleil JD, Whiton RS. Determination of organic emissions from new carpeting. Appl Occup Environ Hyg 1990; 5(10): 693-699.
- 14) Hodgson A, Wooley J, Daisey J. Emissions of volatile organic compounds from new carpets measured in a large-scale environmental chamber. Air Waste 1993; 43(3): 316-324.
- 15) Follin T. Measurements during airing out pollutions from concrete slabs, Proceedings of Indoor Air '96. 1996; 3: 65-70.
- 16) Bakó-Biró Z, Wargocki P, Weschler CJ, et al. Effects of pollution from personal computers on perceived air quali-

- ty, SBS symptoms and productivity in offices. *Indoor Air* 2004; 14(3): 178-187.
- 17) 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(7): 451-461.
- 18) 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(11): 1016-1025.
- 19) Bevan C. 2-Ethylhexanol. Ed. Bingham E, Cohns B, Powell CH. *Patty's Toxicology*. 5th edition. New York: A Wiley-Interscience Publication, 2001; 6: 470-476.
- 20) 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. *Proceedings of Indoor Air '02*. 2002; 1: 1004-1009.
- 21) Putus T, Toumainen A, Rautiala S. Chemical and microbial exposures in a school building: adverse health effects in children. *Arch Environ Health* 2004; 59(4): 194-201.
- 22) Sakai K, Kamijima M, Shibata E, et al. Indoor air pollution by 2-ethyl-1-hexanol in non-domestic buildings in Nagoya, Japan. *J Environ Monit* 2006; 8(11): 1122-1128.
- 23) 石田尾徹, 石松維世, 保利 一. 大学における室内環境中の VOC 濃度. *作業環境* 2004; 25(5): 66-71.
- 24) 石田尾徹, 石松維世, 保利 一. 大学における室内環境中の VOC 濃度 (第2報). *作業環境* 2005; 26(5): 52-57.
- 25) 真鍋龍治, 樗田尚樹, 加藤貴彦, 他. 大型店舗内の空気汚染及び個人曝露調査. *日衛誌* 2008; 63(1): 20-28.
- 26) 名古屋市企画部統計課, 編. 名古屋市統計年鑑 平成20年版. 名古屋: 名古屋市企画部, 2009.
- 27) 名古屋市健康福祉局, 編. 名古屋市健康福祉年報 (事業編) 平成19年版. 名古屋: 名古屋市健康福祉局総務課, 2008.
- 28) 井上明生, 小野拓邦, 千葉保人. デシケータ法によるホルムアルデヒド放散量と気中濃度との相関. *木材工業* 1990; 45(7): 313-319.
- 29) 井上明生. ホルムアルデヒド気中濃度のガイドライン対策. *木材工業* 1997; 52(1): 9-14.
- 30) 竹熊美貴子, 大村厚子, 斉藤貢一. 学校施設における室内空气中化学物質濃度の低減化対策: 換気の効果. *室内環境学会誌* 2005; 8(1): 35-39.
- 31) 厚生省生活衛生局長. 室内空气中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法等について. *生衛発第1093号*, 2000.
- 32) 政府統計の総合窓口 (e-Stat) (<http://www.e-stat.go.jp>). 平成15年度衛生行政報告例 第19表, 平成16年度衛生行政報告例 第19表, 平成17年度衛生行政報告例 第19表, 平成18年度衛生行政報告例 第18表, 平成19年度衛生行政報告例 第18表.
- 33) Sakai K, Kamijima M, Shibata E, et al. Annual transition and seasonal variation of indoor air pollution levels of 2-ethyl-1-hexanol in large-scale buildings in Nagoya, Japan. *J Environ Monit* 2009; 11(11): 2068-2076.
- 34) 千野聡子, 加藤信介, 徐 長厚, 他. 床面からの化学反応により生成した化学物質の放散量測定: 床用接着剤が2-エチル-1-ヘキサノール放散性状に及ぼす影響. *日本建築学会環境系論文集* 2008; 73(624): 215-220.
- 35) 千野聡子, 加藤信介, 徐 長厚, 他. 各種塩化ビニル床材を施工した床面からの化学物質放散量測定: 化学反応により生成した2-エチル-1-ヘキサノールの放散性状. *日本建築学会環境系論文集* 2009; 74(636): 185-191.
- 36) Eklund BM, Burkes S, Morris P, et al. Spatial and temporal variability in VOC levels within a commercial retail building. *Indoor Air* 2008; 18(5): 365-374.

Indoor air pollution by volatile organic compounds in large buildings: Pollution levels and remaining issues after revision of the Act on Maintenance of Sanitation in Buildings in 2002

Kiyoshi SAKAI*, Michihiro KAMIJIMA^{2*}, Eiji SHIBATA^{3*}, Hiroyuki OHNO* and Tamie NAKAJIMA^{4*}

Key words : 2-ethyl-1-hexanol, indoor air pollution, building, formaldehyde, volatile organic compound

Purpose This study aimed to clarify indoor air pollution levels of volatile organic compounds (VOCs), especially 2-ethyl-1-hexanol (2E1H) in large buildings after revising of the Act on Maintenance of Sanitation in Buildings in 2002.

Methods We measured indoor air VOC concentrations in 57 (97%) out of a total of 61 large buildings completed within one year in half of the area of Nagoya, Japan, from 2003 through 2007. Airborne concentrations of 13 carbonyl compounds were determined with diffusion samplers and high-performance liquid chromatography, and of the other 32 VOCs with diffusion samplers and gas chromatography with a mass spectrometer.

Results Formaldehyde was detected in all samples of indoor air but the concentrations were lower than the indoor air quality standard value set in Japan ($100 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Geometric mean concentrations of the other major VOCs, namely toluene, xylene, ethylbenzene, styrene, p-dichlorobenzene and acetaldehyde were also low. 2E1H was found to be one of the predominating VOCs in indoor air of large buildings. A few rooms in a small number of buildings surveyed showed high concentrations of 2E1H, while low concentrations were observed in most rooms of those buildings as well as in other buildings. It was estimated that about 310 buildings had high indoor air pollution levels of 2E1H, with increase during the 5 years from 2003 in Japan.

Conclusions Indoor air pollution levels of VOCs in new large buildings are generally good, although a few rooms in a small number of buildings showed high concentrations in 2E1H, a possible causative chemical in sick building symptoms. Therefore, 2E1H needs particular attention as an important indoor air pollutant.

* Nagoya City Public Health Research Institute

^{2*} Nagoya City University Graduate School of Medical Sciences, Department of Occupational and Environmental Health

^{3*} Aichi Medical University School of Medicine, Department of Health and Psychosocial Medicine

^{4*} Nagoya University Graduate School of Medicine, Department of Occupational and Environmental Health