

山梨県内個人住宅の 室内空气中揮発性有機化合物濃度

小林 浩 堀内雅人

Concentration of Volatile Organic Compounds in Indoor Air of
Private Houses in Yamanashi Prefecture

Hiroshi KOBAYASHI and Masato HORIUCHI

生活様式の著しい変化により住環境は大きく変化し、より快適な住環境への整備が進む一方、数多くの化学物質に接触し暴露される機会が多くなっている。多数の化学物質は、いわゆる「シックハウス」問題や化学物質過敏症を引き起こし、近年問題となっている内分泌かく乱化学物質とも関連し、居住者の化学物質に対する関心は大変高い。このような状況を踏まえ、厚生労働省は揮発性有機化合物を含む13成分について室内空气中化学物質の室内濃度指針値を定め、総揮発性有機化合物の室内濃度暫定目標値（以下「暫定目標値」と記す）を示した^{1,2)}。

室内空气中の揮発性有機化合物（以下「VOCs」と記す）については既に多くの調査結果が示され^{3~8)}、近年ではVOCs低減化の様々な研究も盛んに行なわれている。今回我々は、山梨県内の一般新築住宅を中心に室内空气中のVOCsを測定し、VOCsの種類と濃度レベルを把握することを目的に9住宅の室内外空気を調査する機会を得たのでその概要を報告する。

調査及び分析方法

1. サンプルング方法

サンプルング方法は厚生労働省通知¹⁾に準じて行なった。空気吸引ポンプはGLサイエンス社^株SP-204 Dual 500を用い、新築後3~9ヶ月（リフォーム後の1住宅を含む）経過した9住宅の室内空気（すべて「居間」において採取し、以下「室内空気」は「居間」において採取された空気をさす）及び外気を、流量100ml/min、約24時間（約144L）同一日に吸引し、捕集管ORBO-91L（スベルコ社製）に吸着させた。サンプルング時期は平成13年12月~平成14年1月に行なった。採取住宅の立地条件、築後（リフォーム後を含む）経過月数、建材状況を表1に、空気採取時のガスコンロや暖房器具使用状況を表2に示した。

2. 抽出方法

抽出操作は、厚生労働省通知¹⁾の固相吸着-溶媒抽出-GC/MS法に準じ、採取後の捕集管のガラス両端をヤスリでカットし、ガラス管内の吸着剤をあらかじめ二硫化炭素4mlを入れたガラスバイアルに速やかに移し入れた。直ちに密栓を施し2時間時々攪拌しながら吸着剤を浸漬し、試験溶液とした。

3. 測定物質及び分析方法

試験溶液は島津製作所^株製GC(17A)/MS(QP5000)により分析した。分析条件及び使用カラムを表3に示した。測定用標準液は国立医薬品食品衛生研究所より配布された標準液(127成分混合標準液、各100ppm)を二硫化炭素で希釈した。検量線範囲は0.2~5.0ppmとし、検出限界値は検量線最小濃度のS/N比 ≥ 3 以上であり、繰り返し測定(n=5)における標準偏差の3倍とした。標準液の127成分のうち、芳香族炭化水素類や脂肪族炭化水素類など107成分のVOCsを測定対象成分とし、採取空気144L採取時の検出限界値を表4に示した。

なお、試料溶液及び標準溶液には、濃度が $20\mu\text{g/ml}$ になるよう内部標準物質としてトルエン-d8を添加した。

結 果

1. 総VOCs濃度の特徴

測定対象とした外気及び室内空气中の107成分による総VOC濃度（以下「T-VOC濃度」と記す）を図1に示した。

外気中のT-VOC濃度は $20.4\mu\text{g/m}^3$ ~ $176\mu\text{g/m}^3$ の範囲にあり平均値は $58.6\mu\text{g/m}^3$ 、中央値は $40.1\mu\text{g/m}^3$ であった。室内空气中のT-VOC濃度は 135 ~ $1,430\mu\text{g/m}^3$ の範囲であり、平均濃度は $508\mu\text{g/m}^3$ 、中央値は $388\mu\text{g/m}^3$ であった。

室内空気と外気中の T-VOC 濃度を比較すると、外気中の T-VOC 濃度は低く、A 住宅の外気で $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過したが、他の 8 住宅の外気中濃度は $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であった。一方、室内空気中の T-VOC 濃度は 9 住宅全てで $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上であり、最大値は $1,000 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過していた。平均値では室内空気中の T-VOC 濃度は外気中濃度の約 8.7 倍あり、住宅ごとの室内 T-VOC 濃度と外気 T-VOC 濃度の濃度比は 0.95~40 (平均 13) 倍の濃度差が認められ、A 住宅を除いて室内空気中の T-VOC 濃度は外気中 T-VOC 濃度に比較し明らかに高かった。

2. 種類別 VOC s 濃度の特徴

外気及び室内空気中の種類別 VOC s の濃度を表 5 に示した。また、T-VOC 濃度に占める種類別 VOC s 濃度割合を図 2 (外気)、図 3 (室内) に示した。

外気中に検出された種類別 VOC s 濃度の最大値は、芳香族炭化水素類が $53.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、エステル類が $73.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であったが他の種類の VOC s 濃度は $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下と低かった。また、最小値は検出下限値未満となる VOC s が多かった。

室内空気中の種類別 VOC s 濃度の最大値は、芳香族炭化水素類で $544 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、脂肪族炭化水素類で $659 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と高い濃度だった。この他、アルコール類、テルペン類、エステル類で $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えて測定された住宅があった。脂肪族炭化水素類や芳香族炭化水素類は平均値濃度も高く、芳香族炭化水素類で $193 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、脂肪族炭化水素類で $181 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 検出され、この 2 つの炭化水素類は中央値が $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていた。特に芳香族炭化水素類や脂肪族炭化水素類での濃度が外気中濃度に比較し著しく高かった。

表 1 揮発性有機化合物濃度測定住宅の概要

対象住宅	県道または国道からの距離 (m)	気密性の種類	築後経過月数	戸建て住宅の種類	測定場所の概要 (居間)		
					床の種類	天井の種類	壁紙の種類
A	400	気密	3	鉄筋	その他	その他	その他
B	25	通常	3	鉄筋	フローリング	ビニールクロス	ビニールクロス
C	100	気密	2	鉄筋	フローリング+絨毯	ビニールクロス	ビニールクロス
D	200	通常	1	木造	フローリング	ビニールクロス	ビニールクロス
E	30	気密	9	木造	フローリング+絨毯	ビニールクロス	ビニールクロス
F	150	気密	2	木造	フローリング	その他	ビニールクロス
G	100	気密	6	木造	フローリング	ビニールクロス	ビニールクロス
H	70	通常	8 (リフォーム後)	木造	フローリング	その他	その他
I	0	通常	4	木造	フローリング+絨毯	ビニールクロス	ビニールクロス

表 2 室内 (居間) 測定時の換気扇、暖房器具の使用状況

対象住宅	ガスコンロの使用時間 (分)	換気扇の使用時間 (分)	窓の開放時間 (分)	使用した冷暖房器具	冷暖房器具の使用時間 (分)	喫煙本数 (本)
A	0 (IH)	1440 (強制換気)	0	電気ストーブ、コタツ	420	0
B	175	165	70	ファンヒーター	340	2
C	0	0	0	エアコン	480	0
D	0 (IH)	22	15	ファンヒーター	270	7
E	0	40	40	ファンヒーター	630	0
F	80	105	0	ファンヒーター	600	2
G	0	30	15	ファンヒーター	270	0
H	100	0	15	なし	0	0
I	70	108	0	ファンヒーター	302	0

注: IH (Induction Heating; 電磁誘導加熱) を用いた調理器具を使用

表 3 前処理及び測定条件の概要

前処理及び内部標準	
捕集管	スペルコ社製 ORBO-91L
抽出溶媒名	二硫化炭素
抽出溶媒量 ml	4
抽出時間 min	120
内標準物質名	トルエン-d8
内標準物質添加量 μg (抽出液 4 ml に対し)	80
測定条件	
GC/MS 分析装置	島津製作所 (株) QP5000 GC/MS (GC17A)
カラムの種類	CP-SIL 5CB low bleed/MS
カラムサイズ (長さ、内径、膜厚)	60m × 0.25mm × 1.0 μm
GC/MS 注入量 μl	1.0
スプリット比	スプリットレス
昇温条件	40°C (10min) → 3°C/min → 140°C (10min) → 5°C/min → 200°C (36min) → 10°C/min → 300°C (1min)
注入口温度 °C	250
検出器温度 °C	250

表4 固相吸着-溶媒抽出-GC/MS法による検出下限値

種類	Compounds	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	種類	Compounds	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	
芳香族炭化水素類	Benzene	3.1	テ ル ベ ン 類	3-Carene	1.7	
	Toluene	2.4		α -Pinene	1.3	
	Ethylbenzene	1.1		(+/-)-Camphene	1.7	
	m, p-Xylene	1.2		β -Pinene	1.7	
	o-Xylene	1.2		Longifolene	4.2	
	Isopropylbenzene	2.5		α -Cedrene	3.9	
	cis,trans-1-Propenylbenzene	3.5		Caryophyllene	4.2	
	n-Propylbenzene	0.9		Limonene	1.8	
	1,2,4-Trimethylbenzene	1.2		ア ル コ ー ル 類	2-Methyl-2-propanol	1.8
	1,3,5-Trimethylbenzene	1.2			2-Methyl-1-propanol	1.0
	1,2,3-Trimethylbenzene	1.7			1-Butanol	3.4
	1,2,4,5-Tetramethylbenzene	1.7			1-Hexanol	2.6
	1-Methyl-3-propylbenzene	2.9	Cyclohexanol		1.4	
	n-Butylbenzene	2.8	1-Octanol		5.6	
	1,3-Diisopropylbenzene	3.2	2-Ethyl-1-hexanol		1.9	
	1,4-Diisopropylbenzene	3.0	Texanol		3.8	
	Ethynylbenzene	2.0	2,6-Di-t-butyl-4-methylphenol		4.4	
	o-Methylstyrene	3.0	グ リ コ ー ル 類		Dimethoxyethane	0.9
	m-Methylstyrene	2.6		2-Methoxyethanol	1.8	
	p-Methylstyrene	2.9		2-Ethoxyethanol	3.0	
α -Methylstyrene	2.9	2-Butoxyethanol		1.8		
2-Ethyltoluene	1.2	ケ ト ン 類	1-Methoxy-2-propanol	2.2		
Styrene	1.7		2-Butoxyethoxyethanol	3.4		
Naphthalene	1.7		3-Methyl-2-butanone	3.2		
4-Phenylcyclohexene	1.5	含 ハ ロ ゲ ン 類	Methylethylketone	5.1		
脂族炭化水素類	2-Methylhexane		1.0	Methylisobutylketone	1.0	
	3-Methylhexane		1.4	Acetophenone	0.8	
	n-Heptane		1.6	エ ス テ ル 類	Carbon tetrachloride	1.9
	n-Octane	1.0	1,2-Dichloroethane		1.5	
	n-Nonane	1.0	Trichloroethylene		2.4	
	2-Methyloctane	0.7	Tetrachloroethylene		2.3	
	3-Methyloctane	1.2	1,1,1-Trichloroethane		1.0	
	2-Methylnonane	1.7	1,4-Dichlorobenzene		1.7	
	n-Decane	1.0	1,2-Dichloropropane		3.1	
	n-Undecane	1.1	Chlorodibromomethane		0.8	
	n-Dodecane	1.7	Chloroform		2.0	
	n-Tridecane	1.6	フ タ ル 酸 エ ス テ ル 類		Vinylacetate	0.9
n-Tetradecane	1.6	Butylformate		2.1		
n-Pentadecane	2.0	Isobutylacetate		5.5		
n-Hexadecane	2.2	Propylacetate		1.8		
2-Methylpentane	1.8	Butylacetate		0.7		
1-Octene	1.5	Isopropylacetate		2.2		
1-Decene	1.2	2-Methoxyethylacetate		1.7		
2,4-Dimethylpentane	1.8	2-Ethoxyethylacetate		1.1		
2,2,4-Trimethylpentane	1.9	2-Ethylhexylacetate		2.8		
環状炭化水素類	Methylcyclopentane	5.1		Linaloolacetate	3.0	
	Cyclohexane	3.2	Methacrylic acid methyl ester	3.9		
	cis,trans-1,4-Dimethylcyclohexane	2.9	TXIB	1.4		
	cis-1-Methyl-4-methylethylcyclohexane	2.3	そ の 他	Dimethyl phthalate	4.3	
	Methylcyclohexane	1.7		Vinylacetate	0.9	
		n-Methyl-2-pyrrolidone		3.9		
		Indene		3.2		
		2-Pentylfuran	2.2			
		THF (Tetrahydrofuran)	1.4			

3. 指針値の示された VOCs 濃度の特徴

指針値の示されている 13 成分中 6 成分について測定した結果を表6に示した。

外気中成分ではトルエンが $28.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ 検出されたが指針値の約 10%と低かった。他の指針値の示されているエチルベンゼンやキシレンなどの成分はいずれも指針値未満であった。

室内空気中成分では、トルエンが2住宅において指針値の $260 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えて検出された。他の指針値の示されている成分は、いずれも指針値未満であるが $5.7 \sim 37.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 検出された。防虫剤として一般家庭で多く使用されている1,4-ジクロロベンゼンは今回の測定では最大値で $20.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と指針値の10%以下であった。指針値の示された成分では、外気より室内空気中の検出成分数や濃度が明らかに高かった。

考 察

1. 外気及び室内空気中 T-VOC 濃度と種類別 VOCs の特徴

室内空気と外気中の T-VOC 濃度を比較すると、A 住宅を除き室内空気中の T-VOC 濃度が明らかに高かった。T-VOC 濃度が暫定目標値¹⁾ $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した住宅 (B, C, F, I) の種類別濃度比を検討すると、これらの住宅では芳香族炭化水素類と脂肪族炭化水素類の占める割合が80%程度と高かった (図3)。芳香族炭化水素類の発生源としては、建材や家具等に多く含まれると思われる接着剤や塗料、染料や油性ニス、印刷インキ原料などが考えられた⁷⁾。一方、脂肪族炭化水素類は灯油や塗料の溶剤などに含まれ、暖房に使われる石油ファンヒーターにより室内空気中濃度の高くなるのが指摘されている⁴⁻⁶⁾。しかし、C 住宅では暖房器具として石油ファンヒーターを使用していないにもかかわらず脂肪族炭化水素類の占める割合が高くなっていた。この原因の一つとして塗料の溶剤等が推定されるが発生源は不明である。

T-VOC 濃度の対象成分が異なるが、全国の一般住宅を調査した安藤ら³⁾の報告によれば、室内空気中の暫定目標値 ($400 \mu\text{g}/\text{m}^3$) を34住宅中10住宅 (29%) で超過したとの報告がある。今回の調査では9住宅中4住宅 (44%) の超過となるが、これら新築を含めた一般住宅での VOCs 濃度の高いことがわかった。

室内空気中 T-VOC 濃度が $167 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と低い A 住宅は24時間強制換気が行なわれ、石油ファンヒーターやガスコンロを使用しないことが低 T-VOC 濃度となったと考えられた。また、H 住宅はリフォーム後8ヶ月経過時点での測定であるが今回の測定対象住宅の中では T-VOC 濃度が最も低く $135 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。H 住宅の特徴としては気密性の低い木造農家の建築様式であることが上げられる。A 住宅での強制換気、また H 住宅での建築様式が低濃度の T-VOC 濃度に関与すると推定された。

しかし A 住宅では室内空気及び外気中の T-VOC 濃度が $170 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 前後であるが、外気中の T-VOC 濃度がやや高くなっていた。種類別濃度比を検討すると組成比は大きく異なり成分起源の共通性は認められなかった。

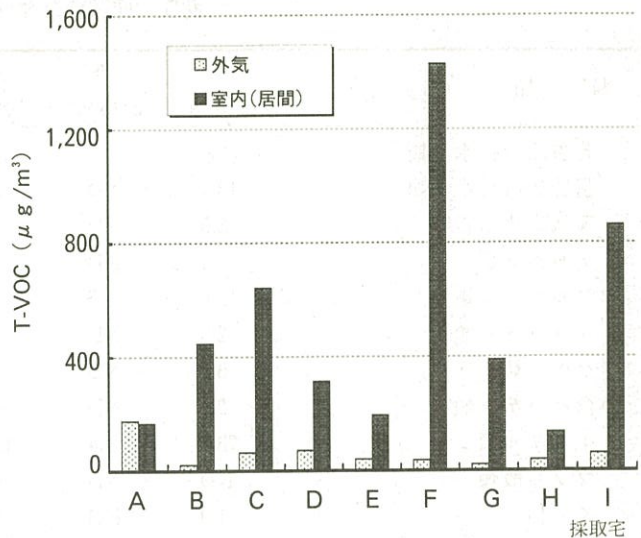


図1 T-VOC 空気中濃度

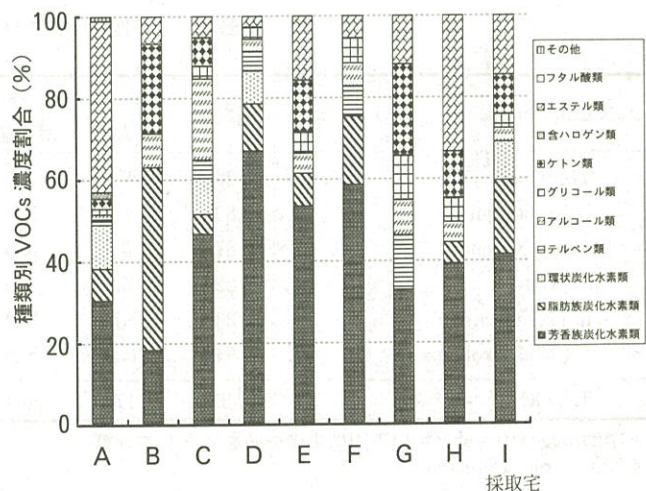


図2 外気中 T-VOC 濃度に占める種類別 VOCs 濃度の割合

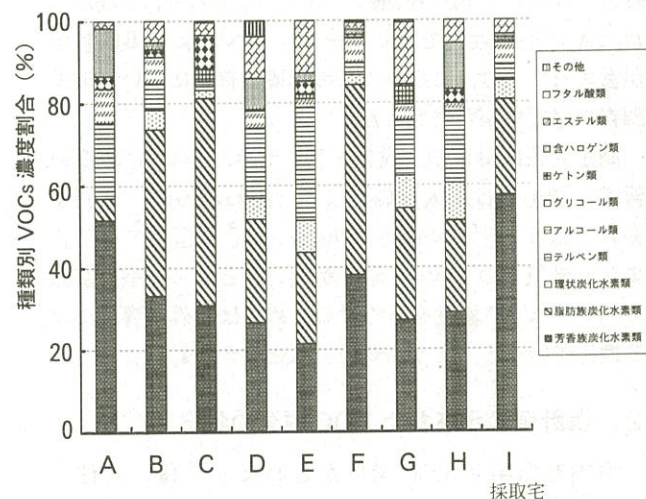


図3 室内空気(居間)中 T-VOC 濃度に占める種類別 VOCs 濃度の割合

表5 種類別揮発性有機化合物濃度

種類 (μg/m ³)	外 気				室 内 (居 間)			
	最大値	最小値	平均値	中央値	最大値	最小値	平均値	中央値
芳香族炭化水素類	53.6	3.7	24.9	21.4	544	39.0	193	105
脂肪族炭化水素類	13.7	ND	6.2	6.0	659	8.8	181	106
環状炭化水素類	18.9	ND	4.0	0.0	39.7	ND	20.2	15.7
テルペン類	3.4	ND	1.6	2.5	53.4	9.3	36.4	33.9
アルコール類	12.8	1.7	3.2	2.0	84.0	2.6	23.4	13.8
グリコール類	2.3	ND	1.9	2.1	19.9	ND	5.1	2.3
ケトン類	5.7	ND	3.7	4.5	51.9	1.1	10.6	5.9
含ハロゲン類	2.8	ND	0.3	0.0	23.5	ND	10.5	7.6
エステル類	73.7	1.4	12.5	3.3	58.4	2.9	24.8	24.5
フタル酸類	ND	ND	0.0	0.0	ND	ND	0.0	0.0
その他	1.9	ND	0.2	0.0	12.1	ND	2.6	0.0
T-VOC	176	20.4	58.6	40.1	1,430	135	508	388

* 平均値及び中央値は検出下限値未満の値を0として計算した
 * ND: Not Detected

表6 指針値の示された成分の空气中濃度

Compounds (μg/m ³)	指針値	外 気				室 内 (居 間)			
		最大値	最小値	平均値	中央値	最大値	最小値	平均値	中央値
Toluene	260	28.8	3.7	10.9	8.5	336	7.1	108	52.8
Ethylbenzene	3,800	1.3	ND	0.3	0.0	37.6	ND	10.0	5.2
o,m,p-Xylene	870	3.3	ND	0.7	0.0	32.2	1.4	12.9	10.1
Styrene	220	5.2	ND	0.6	0.0	5.7	ND	0.9	0.0
n-Tetradecane	330	ND	ND	0.0	0.0	6.8	ND	2.4	1.8
1,4-Dichlorobenzene	240	ND	ND	0.0	0.0	20.4	ND	6.2	1.9
T-VOC	400	176	20.4	58.6	40.1	1,430	135	508	388

* 平均値及び中央値は検出下限値未満の値を0として計算した
 * ND: Not Detected

室内では芳香族炭化水素類の占める割合が高かったが、外気ではエステル類(酢酸ビニル)のしめる割合が高かった。A住宅の近傍ではビニールハウスによる果樹栽培が営まれており、このハウスの影響の有無について追跡調査の必要性が示唆された。

測定対象成分が107成分と多いため、T-VOC濃度の暫定目標値¹⁾は過大評価になると思われるが、今回の調査では9住宅中4住宅で400μg/m³を超えていた。また、外気でのT-VOC濃度が低いことから、室内空気の高いT-VOC濃度を低くするためには、外気導入による換気を行なうことが有効であると考えられた。

2. 指針値の示されたVOC成分の特徴

室内空气中T-VOC濃度がきわだって高いF住宅(T-VOC濃度:1,430μg/m³)とI住宅(T-VOC濃度:861μg/m³)は、トルエンが指針値の260μg/m³を上回りF住宅では315μg/m³、I住宅では336μg/m³検

出された。トルエンは接着剤や塗料の溶剤、希釈剤などに広く利用され住宅建材や家具等に広く用いられているため、この影響により指針値を超過して検出されたと推定された。

他の指針値の示された成分ではエチルベンゼンが最大37.6μg/m³、1,4-ジクロロベンゼンが20.4μg/m³検出された。しかし、他の5成分は指針値未満であり、トルエンが超過した2住宅以外では指針値の示された成分での健康影響はきわめて低いものと推定された。

ま と め

山梨県内における新築住宅3住宅、リフォームを含めた8ヶ月未満の住宅6住宅、計9住宅について室内空気及び外気の揮発性有機化合物の測定を行なった。

その結果、

1. 指針値の示されたトルエンについて、2住宅にお

いて指針値を超過する濃度が測定された。

2. 107成分による T-VOC 濃度では、4住宅において暫定目標値の $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた揮発性有機化合物が測定された。
3. 室内空気中の成分では芳香族炭化水素類や脂肪族炭化水素類の占める割合が高かった。
4. 外気中 T-VOC 濃度が $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた住宅の揮発性有機化合物の発生源について検討の必要性が示唆された。

謝 辞

ここに記載した報告は、国立医薬品食品衛生研究所が暴露評価研究及び厚生科学研究の一環として実施した、「平成 13 年度暴露評価研究及び厚生科学研究による室内空気中の総揮発性有機化合物 (T-VOC) に関する研究及び実態調査」(主任研究者：国立医薬品食品衛生研究所・安藤正典環境科学部長)の山梨県の調査結果をまとめたものである。この調査研究に際し、器具・機材を貸与していただいた国立医薬品食品衛生研究所の安藤正典環境科学部長に感謝いたします。

文 献

- 1) 厚生省生活衛生局, 生衛第 1852 号:平成 12 年 12 月 22 日付け (2000)
- 2) 厚生労働省医薬局, 医薬第 0207002 号:平成 14 年 2 月 7 日付け (2002)
- 3) 安藤正典:室内空気中の化学物質に関する調査研究—平成 10~12 年度総合研究報告書 (2001)
- 4) 稲垣宏ら:仙台市衛研所報, 28, 111~121 (1998)
- 5) 青柳由美子ら:新潟県保健環科研年報, 15, 119~125, (2000)
- 6) 山下晃子ら:長野県衛公研報告, 24, 13~18 (2001)
- 7) 松村年郎:大気環境学会誌, 31, A154~A164 (1996)
- 8) 矢澤篤子ら:横浜市衛研年報, 40, 87~91 (2001)