居住状態における住宅室内の揮発性有機化合物に関する実態調査

FIELD STUDY ON VOLATILE ORGANIC COMPOUNDS IN RESIDENCES

熊谷一清*¹, 池田耕一*², 堀 雅宏*³, 松村年郎*⁴野崎淳夫*⁵, 木村 洋*⁶, 飯倉一雄*⁷, 吉澤 晋*⁸*Kazukiyo KUMAGAI, Koichi IKEDA, Masahiro HORI, Toshiro MATSUMURA,
Atsuo NOZAKI, Hiroshi KIMURA, Kazuo IIKURA and Susumu YOSHIZAWA*

Recently in Japan, high concentration of VOC caused by air-tightness in residences has become a social problem. There are many chamber tests of individual materials or measurements taken place in experimental residences. In real residences there are occupants. There is a possibility of them taking in sources of VOC, changing environmental conditions and etc., which will effect on the emission of VOC inside the residences. In this study we measured VOC concentration including formaldehyde in 50 residences. As a result, the mean concentration of HCHO and TVOC were 0.0478ppm and 3640 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and the standard deviation were 0.0415ppm and 8240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. The concentration differed 1.7 times with HCHO and 15 times with TVOC between new and old residences. In both HCHO and TVOC concentrations were higher in the winter time. There were no correlations between the temperature or relative humidity and the concentrations of HCHO or TVOC. The HCHO concentration became steady in about 6 years and TVOC concentration in about 8 years. Also it is necessary to be aware of the product which the occupants bring inside the residences.

Keywords: volatile organic compounds, residence, field measurement
揮発性有機化合物、住宅、実測調査

1. はじめに

近年、住宅の省エネルギー化に伴い室内の高気密・高断熱化された住宅が一般的になってきている。一方、建材や仕上材、生活用品等の生産技術の進歩により、在来みられなかった新しいタイプの建材等が、室内に導入されはじめており、それらから発生する揮発性有機化合物(以下VOC)による化学物質過敏症などに代表される健康あるいは生理影響が報告されている。これに対し室内での発生量の抑制、換気、ペイクアウト等の建築的な対策が要求されている。しかし、住宅内の実状を示す基礎データが十分とはいえず、生活が営まれている住宅でのデータの収集が早急な課題である。

海外での報告として、Krauseはドイツ連邦共和国の500軒の住宅を対象に測定を行った結果、総揮発性有機化合物(以下、TVOC)濃度は平均値394 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、50パーセンタイル312 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、90パーセンタイル665 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり濃度の範囲は72-2670 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり¹⁾、n-アルケン属がTVOC濃度の指標物質として有効であると報告している。Otsonはカナダの757件の住宅を対象とした調査ではETS、家庭用品、プラスチック製品が室内のVOCに影響を与えている²⁾としている。また、Seifert³⁾、Wolkoff⁴⁾は室内VOC濃度は居住者の活動に大きく左右されると報告している。さらに、Wallaceは米国の5つの都市の600軒の

住宅を対象にVOCの測定を行っており、喫煙、熱湯、ドライクリーニングが行われた衣類や防虫剤が居住状態におけるVOCの主な発生源としている。また、室内濃度を屋外濃度で除したI/O値はいずれも1より大きく、VOCは多くの場合室内由来である⁵⁾と報告している。

国内の住宅でのホルムアルデヒド(以下HCHO)とVOC報告としては、Parkが築5-35年の11戸⁶⁾、坂本が鹿児島市内の木造住宅17住戸¹⁴⁾、豊住が生活状態の11住戸¹⁶⁾、宮崎がリフォーム前後の3住戸²⁰⁾、守屋が築3年以内の8住戸²¹⁾、湯浅がリフォーム前の2戸²²⁾で実測調査を行っている。その結果、多くの報告で同定された物質のI/O値がいずれも1より高く、またキシレン、トルエン等の溶剤系の物質と防虫剤に使用されるp-ジクロロベンゼン濃度が高いことが指摘されている。それ以外の住宅に関する報告では、環境因子が制御された実験住宅における測定例が多く、その測定対象物質としてHCHOのみを測定している報告が殆どである。しかし、いずれにおいても居住者により様々な化学物質が持ち込まれることが予想される生活状態における住宅内のHCHO、VOCの濃度分布や環境因子による影響についてその実態を報告した文献は少ない。

そこで、本研究では実際に人が住んでいる住宅を対象としHCHOとVOC32物質について測定を行い、季節変動、住宅種別の関連要因につ

*¹ 国立公衆衛生院建築衛生学部 研究課程生・工修・公衛修*² 国立公衆衛生院建築衛生学部 部長・工博*³ 横浜国立大学教育人間科学部 助教授・工博*⁴ 国立医薬品食品衛生研究所 室長・工博*⁵ 日本大学東北高等学校建築科 教諭・工博*⁶ 長谷工コーポレーション技術研究所 研究員*⁷ 国立公衆衛生院建築衛生学部 専門課程生*⁸ 東京理科大学工学部建築学科 教授・工博

Ph. D. Student, Dept. of Architectural Hygiene Engineering and Housing, The Institute of Public Health, M. Eng., M. P. H.
Director, Dept. of Architectural Hygiene Engineering and Housing, The Institute of Public Health, Dr. Eng.
Assoc. Prof., Faculty of Education and Human Sciences, National University of Yokohama, Dr. Eng.
Head, Division of Environmental Chemistry, National Institute of Health Science, Dr. Eng.
Lecturer, Dept. of Architecture, Nihon University Tohoku High School, Dr. Eng.
Research Engineer, Haseko Research Institute, Haseko Corporation
Master Student, Dept. of Architectural Hygiene Engineering and Housing, The Institute of Public Health
Prof., Dept. of Architecture, Science University of Tokyo, Dr. Eng., M. Sc.

いて検討したのでここに報告する。

2. 測定・分析概要

2.1 測定時期

本研究は1996年3月に冬期、同年の8月に夏期の測定を行っている。冬期の測定時期については、春期にずれ込んでいるともいえるが、生活中的燃焼器具の使用頻度、窓開け状況の検討より、冬期時の生活と相違ないことよりこの時期を冬期時の測定とした。

2.2 測定対象

測定対象住宅は郡山(福島県)と首都圏に建つ戸建住宅及び集合住宅の全50戸の住宅である。住宅の分類として冬期の測定開始時に築後半年以内の住宅を“新築住宅”(35戸)、6ヶ月以上経っている住宅を“既築住宅”(15戸)とした。また、住宅の工法としては在来工法、工業化住宅及び鉄筋コンクリート造の集合住宅に分類した。さらに、首都圏の集合住宅では、住宅を入居前および入居後とした(表1)。なお、同一の住宅で冬期と夏期の両方で測定を行ったものについては冬期の測定開始時に築6ヶ月の前後で分類している。また、後の築年数と濃度との比較では竣工後の年月により処理を行った。

2.3 測定方法

各住宅において、HCHO、VOC、温度、湿度の測定を行った。サンプリング、温湿度は居間の中央部の床面より高さ1.2mの位置で測定した。

入居前の住宅では、測定開始前の30分間窓を開け換気を行い、その後開口部を密閉し測定を開始した。また、サンプリングを行う前に、入居前の住宅では屋外に通じる開口部、換気口を全て閉じ、室内の間仕切り建具は開放した状態で測定を行った。

入居後の測定では、通常の生活状態の曝露量を把握するため、入居者による換気、喫煙、窓明けは通常の生活通りとし、アンケート調査により窓明け換気時間や喫煙本数、暖房器具の使用状況の把握を試みた。

表1 測定対象住宅

住宅の新旧	軒数	工法	軒数	入居の有無	軒数
新築(郡山)	10	在来工法	10		
		工業化住宅	0		
		集合住宅(RC造)	0		
新築(首都圏)	25	在来工法	3		
		工業化住宅	6		
		集合住宅(RC造)	16	入居前	5
				入居後	11
既築(郡山)	8	在来工法	7		
		工業化住宅	1		
		集合住宅(RC造)	0		
既築(首都圏)	7	在来工法	0		
		工業化住宅	3		
		集合住宅(RC造)	4		
合計	50		50		

2.3.1 HCHOの測定

本研究ではパッシブサンプラーと、USEPA(米国環境保護庁)で採用されているDNPH-カートリッジポンプ吸引法¹⁰⁾により24時間平均濃度を求めた。以下では、その詳細について述べる。

2.3.1.a パッシブサンプラーによるHCHOの測定¹²⁾

(1) サンプリング法

HCHOのサンプリングはパッシブサンプラー法を用い、サンプリング

時間を24時間としサンプルの捕集を行い、その後アルミ製保存袋に入れ冷暗な環境下で保管しサンプル試料とした。

(2) 検出限界

本研究で用いたパッシブサンプラーの検出限界²³⁾を検量線の最小読み取り吸光度より求めた。その結果、24時間サンプリングで0.005ppmとなった。パッシブサンプラーの測定精度を検討するため、HCHO濃度0.05ppmのチャンバー内に本サンプラーを設置し、24時間サンプリング後の測定を行った結果、パッシブサンプラーでのHCHOの捕集量の変動係数²³⁾は8.9%であった。

(3) 定量操作

パッシブサンプラーより捕集した試料空気は以下の手順で定量を行った。パッシブサンプラーより捕集剤を取り出し、25mLの共栓試験管に入れ、これに純水15mLを加えて軽く栓をし、60℃の温水浴中で15分間加温する。室温に放冷、浸とう後、その上澄み液を遠心分離器に移し、3000回転/5minで遠心分離した。この上澄み液を分析用溶液とし、その2mLを20mLの共栓試験管に取り、これに2mLの5N水酸化ナトリウム溶液2mL、4-アミノ-3-ヒドロジノ-5-メルカプト-1,2,4-トリアゾール溶液(AHMT)2mLを加え混合後、室温に20分間放置し、過ヨウ素酸カリウム溶液2mLを加え、軽く栓をし混合する。そして、10分後に波長550nmで吸光度(10mmセル)を測定する。さらに、未使用サンプラーについては同様の操作を行い、ブランクとし検量線を引き濃度を(1)式より算出した。

$$C = (W \times 7.5) / (6.7 \times t) \cdots \cdots (1)$$

C=HCHO室内濃度(ppm)

W=検量線から求めたHCHO重量(μg)

7.5=希釈係数

6.7=比例定数(μg/ppm・h)

t=サンプリング時間(h)

2.3.1.b DNPH-カートリッジポンプ法

DNPH-カートリッジは捕集剤に長さ30mm、2gのDNPH含浸シリカゲル700mg充填されたロングタイプ(Waters社製)を使用した。

(1) サンプリング法

試料の採取法とし、市販のDNPH含浸カートリッジを小型吸引ポンプに接続し、100mL/minの流速で24時間試料空気を捕集した。サンプリング終了後カートリッジをアルミ製保存袋に入れ、冷暗な場所に保管し分析試料とした。

(2) 検出限界

採取試料時間及び検出下限値(10s)から本法の検出下限濃度を算出した結果、24時間サンプリングで0.0003ppm、8時間で0.01ppm、変動係数は3.1%であった。

(3) 定量操作

DNPH-カートリッジにシリンジを取り付け(サンプリング口とは反対側)バックフラッシュの原理により操作した。これにアセトリニトリル10mLを入れ、ゆっくり押し出し、カートリッジに捕集された誘導体を溶出し、分析試料とした。分析試料溶液20μLは高速液体クロマトグラフィーに導入し分析した。なお、ブランクには未使用のカートリッジについて同様の操作により求めた。濃度の算出は(2)式による。また、表2に高速液体クロマトグラフの分析条件を示す。

$$C = v \times (273+t)/273 \times 1/V \cdots \cdots (2)$$

C=HCHO室内濃度(ppm)

v=検量線から求めたHCHOの体積(μL)

t=室温 (°C)

V= 試料空気 の採取 (L)

表2 高速液体クロマトグラフ分析条件

高速液体クロマトグラフ	島津製 LC-5A
ガードカラム	Simpac G-ODS(4mm x 1cm)
分析カラム	Simpac GL-ODS(6mm x 15cm)
恒温槽	40°C
流量	1.3ml/min
移動層	アセトニトリル:水 (60:40)
注入量	20 μL
測定波長	360nm

2.3.1.c パッシブサンプラーと

DNPH-カートリッジ法との比較

本研究で用いたパッシブサンプラー法と USEPA で採用されている DNPH-カートリッジポンプ吸引法との比較を同時測定により行った (図1)。その結果両者の間には $r=0.96$ と高い相関が認められた。

表1 パッシブサンプリング-AHMT 法と DNPH カートリッジ-ポンプ-HPLC 法の相関

2.3.2 VOC の測定¹⁸⁾

(1) サンプリング法

作業環境測定用活性炭捕集剤 (20~40 メッシュの活性炭を150または200mg 充填したもの) と吸引ポンプ、ロタメータを接続し、200~300mL/min の流量で20~24時間、180L 以上通気した。終了後、両端を栓で密閉しさらにアルミバックに入れ密閉後、冷暗場所にて保存した。

(2) 定量操作

捕集管から活性炭を2mL のバイアル瓶にかけ、二硫化炭素を1mL 入れ栓をし、2分間振とうし、3時間放置する。上澄み液を2μL マイクロシリンジでガスクロマトグラフにかける。同様の操作を未使用の活性炭管についても行ない、ブランク値とする。標準は予想される化合物の純度98%以上の液体を等量混合したものをメタノールで0.1%(V/V) 溶液とし、さらに二硫化炭素で100倍に希釈したものを用いる。各成分の濃度は(3)式より算出した。

$$C = M_k \times L/I \times 1/Q \quad (\mu\text{g}/\text{m}^3) \dots \dots (3)$$

M: 各成分の定量値 (ng)

k: 抽出液の希釈倍率

L: 抽出液の量 (μL)

I: 注入量 (μL)

Q: 通気量 (L)

未同定成分はそのピークの和をn-ヘキサンに換算した。TVOC²⁾³⁾⁷⁾ はガスクロマトグラムのピークの総面積をn-ヘキサンに換算し重量濃度を求めた。

表3 ガスクロマトグラフ分析条件

装置	GLサイエンス製 GC-325
キャピラリー・カラム	cp-sil 0.5mm x 100m
カラム温度	40°C → (10°C/min) → 100°C → (3°C/min) → 180°C → (10°C/min) → 230°C
流量	18mL/min
スプリット比	2:1
検出器	FID

表4 VOC 同定物質

脂肪族炭化水素類	n-ヘキサン、n-ヘプタン、n-ノナン、n-オクタン、n-デカン、n-ドデカン、n-ウンデカン、n-トリデカン、2,2,4イソオクタン
芳香族炭化水素類	ベンゼン、トルエン、o-キシレン、m,p-キシレン、エチルベンゼン、スチレン、1,3,5-トリメチルベンゼン、1,2,4-トリメチルベンゼン、1,2,3-トリメチルベンゼン、1,2,4,5-テトラメチルベンゼン
テルペン類	α-ピネン、リモネン
ハロゲン類	ジクロロメタン、p-ジクロロベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン
エステル類	酢酸エチル、酢酸ブチル
ケトン類	アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン
アルコール類	エタノール、n-ブタノール
その他	(含未同定物質を含む)

3. 結果及び考察

3.1 全体 (新築、既築、集合住宅) の測定結果

全住宅のパーセンタイルを片対数で表すとHCHO、TVOCのいずれにおいても、S字の分布傾向を示していることにより対数正規分布である事が分かる (図2、図3)。HCHO、TVOCの濃度の統計値、パーセンタイルに対するHCHO、TVOCの濃度を図2、図3に示す。HCHO濃度の平均値0.0478 (ppm)、中央値0.039 (ppm)、標準偏差が0.0415 (ppm) であることからばらつきが大きいといえる。また、TVOC濃度の平均値は

図2 HCHO 濃度パーセンタイル

図3 TVOC 濃度パーセンタイル

図4 VOC属別濃度

表5 HCHO、TVOC濃度測定結果

	Conc.HCHO(ppm)			Conc.TVOC($\mu\text{g}/\text{m}^3$)		
	冬期	夏期	年平均	冬期	夏期	年平均
新築戸建	0.062	0.040	0.051	1490	430	430
既築戸建	0.028	0.013	0.022	1650	320	320
全戸建	0.049	0.030	0.040	1550	400	400
新築集合	0.068	0.066	0.067	14340	5920	10320
既築集合	0.049	-	0.049	420	-	420
全集合	0.064	0.066	0.065	10860	5920	8850
全住宅	0.054	0.040	0.048	4790	2130	3640

表6 住宅の工法別HCHO、TVOC濃度

	HCHO(ppm)	TVOC($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
在来工法	0.039	923
工業化住宅	0.048	1339
鉄筋コンクリート	0.065	8849

図5 戸建 新築住宅におけるHCHO濃度

図8 戸建新築住宅におけるTVOC濃度

図6 戸建 既築住宅におけるHCHO濃度

図9 戸建既築住宅におけるTVOC濃度

図7 集合新築住宅におけるHCHO濃度

図10 集合新築住宅におけるTVOC濃度

3640 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)、中央値 980 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) であり、標準偏差は 8240 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) であり TVOC 濃度もばらつきが大きい結果となった。

これを、厚生省が掲げる HCHO 濃度指針値の 0.08ppm²⁴⁾ と比較するとこれを満たす住戸は 84% であるのに対し、Seifert が提案する TVOC 濃度の推奨値 300 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ²⁷⁾ を満たしている住戸は 21% であり、日本の住宅では TVOC 濃度の目標値の達成率が低いといえる。VOC を化学種別に検討すると、芳香族炭化水素及びテルペン類で半分程度が占められている。芳香族炭化水素ではトルエンが多く、フローリング等用接着剤に含まれる有機溶剤が発生源として考えられる。また、テルペン類では α -ピネンの高い住戸が多い。 α -ピネンは植物性の有機化合物であり、天然材から揮発していると考えられる。

3.2 住宅種別による比較

HCHO 濃度平均値は、新築、既築の両方を含んだ戸建、集合住宅のいずれの住宅種別においても厚生省の指針値の 0.08ppm²⁴⁾ 以下であった。新築と既築の値を比較すると戸建では、既築になると 58% HCHO 濃度が減少している。これに対し、集合住宅では夏期データがとれなかったため冬期結果のみについて検討すると新築と既築とでは 40% HCHO 濃度が減少する結果となった。また、濃度分布より、新築住宅の分布幅は広く、新築住宅で使用されている建材からの HCHO の放散が影響していると考えられる。それに対し、既築住宅では生活による HCHO 放散^{15) 17)} が影響していると考えられる。

TVOC 濃度について、戸建住宅での新築と既築の比は 0.75 であるのに対し、集合住宅ではその比が 0.04、つまり既築になると新築時の 96% の TVOC が減少する結果となった。しかし、既築の戸建住宅と集合住宅を比較するとその差は 29% であり、既築住宅になると住宅種別による TVOC 濃度にあまり差が生じないと言える。

ここで VOC を化学種別毎に比較すると (図 4 参照)、全住宅では木材起因のテルペン類が最も多く、続いて接着剤、塗料に多く含まれる芳香族炭化水素、脂肪族炭化水素の順になっている。新築、旧築の両方を含む住宅別では、芳香族炭化水素とテルペン類が戸建住宅に比べ集合住宅では 16.5 倍、17.4 倍濃度が高いという結果となった。

住宅の工法別を比較すると在来工法の HCHO、TVOC の濃度はいずれも最も低く、続いて工業化住宅、鉄筋コンクリートの集合住宅という順番であった (表 6)。

3.3 冬期と夏期の比較

HCHO 濃度の冬期と夏期の比較

冬期と夏期の HCHO 濃度を比較したものを図 5 から図 7 に示す。全住宅では、冬期が夏期に比べ濃度が 1.3 倍高いという結果となった。室内 VOC の発生源として、建材や壁装材等に使用している接着剤が考えられ、夏期は開口部を開けた状態で生活しているのに対し、冬期は開口部を締め切った状態で生活していることから、室内濃度が引き上げられたものと考えられる。また、冬期では、室内の開口部を締め切った状態での開放型暖房器具の使用に伴う発生^{15) 17)} が加算されたと考えられる。

TVOC 濃度の冬期と夏期の比較

全住宅の冬期と夏期の TVOC 濃度の比は 2.2 倍と HCHO に比べてもその差は大きい。TVOC を比較すると冬期の新築と既築では差が見られなかったのに対し、夏期では新築と既築の差が大きいことから、冬期は開口部を締め切っているのと、石油ストーブ等の開放型燃焼器具¹⁵⁾、芳香剤などによるリモネン、防虫剤による p-ジクロロベンゼン

などの建材以外の発生源が TVOC 濃度に大きく影響していると考えられる。更に、新築時の冬期と夏期の差は 5ヶ月間の経時変化と季節による住宅の開口部の開放頻度による差が影響したと推測される。

戸建住宅における冬期と夏期の TVOC の濃度分布を図 8、図 9 に示す。冬期は新築住宅で在来工法、工業化住宅の平均値はそれぞれ 1370、1940 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) と Seifert の推奨値に比べ高い値を示した。一方、夏期は 320、580 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) とやや高い値であった。多くの住宅において Seifert の TVOC 推奨値の 300 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えており、既築住宅においても基準値以下の住宅が少ないことから欧米の諸外国に比べ日本の住宅は TVOC 濃度が高いといえる。

次に、集合住宅における夏期と冬期の TVOC 濃度を図 10 に示す。その結果、冬期が夏期の 2.6 倍高い値であった。これの属別のものを図 11、図 12 に示す。これより季節に関わらず全住宅では脂肪族炭化水素とテルペン類が 500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えている。ここで、属別の冬期の濃度を夏期の濃度で除した比を表 7 に示す。これより、全住宅ではエステル類、ケトン類が冬期に高い。これを、新築と既築で比較するとほとんどの属で住宅の築年数に関わらず冬期のほうが濃度が高いといえるが、唯一既築住宅のエステル類は夏期のほうが高い値となっている。

図 11 冬期の VOC 属別濃度

図 12 夏期の VOC 属別濃度

表 7 夏期と冬期の属別 VOC 濃度比

VOC-Group	All	New	Old
Aliphatic Hydrocarbon	2.8	2.6	6.1
Aromatic Hydrocarbon	2.9	3.4	3.0
Terpene	1.1	1.2	11.9
Halogenated Hydrocarbon	1.7	2.0	1.0
Ester	7.6	11.6	0.5
Ketone	4.2	4.6	7.0
etc.	3.9	3.5	8.0
TVOC(n-C6 equivalent)	2.1	2.3	3.5

図13 温度とHCHO濃度との関係

図14 湿度とHCHO濃度との関係

図15 温度とTVOC濃度との関係

図16 湿度とTVOC濃度との関係

3.4 温度、湿度の影響

チャンバー実験においては温度、湿度はHCHO、TVOCの放散を促進することが報告されている。また、生活が営まれている住宅においては温度とHCHO濃度とに相関がある¹⁷⁾という報告とないという報告の両方があることより、本調査でも温度、湿度を郡山にて測定を行った(図13～16)。その結果、本調査では温度、湿度とHCHO、TVOC濃度では相関が確認できなかった。これより生活が営まれている住宅においては温度、湿度等の環境因子のみならず、換気状況や家具、生活用品などの居住者により室内に持ち込まれものにも左右されると推測される。

3.5 築年数とHCHO、VOC濃度の経時変化

HCHOとTVOC濃度と築年数との関係を図17、図18に示す。いずれの物質も指数関数的な減衰傾向になっている。これをHCHOとTVOCに分けて検討すると、HCHOにおいては相関係数は $r=0.50$ であり、住宅内でのHCHOの発生は建物以外の要因も考慮する必要があるといえる。また、近似式よりHCHOの発生が定常となる築年数は6年となり、それまでは発生量が減衰し続けることより、建材がHCHOの最大の発生源であると推測される。更にそれ以後については、居住者により室内に持ち込まれたものにも大きく影響されることが推測される。

TVOCについても指数関数的な減衰曲線を描いている。相関係数は $r=0.75$ と高くTVOC濃度は築年数に大きく依存している。また、近似式よりTVOC濃度が安定するといえるまでの年数は築後8年という結果になった。これを物質別に観ると、トルエンがかなり減少しているのに対し、 α -ピネンはほとんど減少しないという結果を得た。また、住宅によっては築年数には係わらず防虫剤から発生したp-ジクロロ

図17 築年数とHCHO濃度

図18 築年数とTVOC濃度

ベンゼンが高い値を示しているものがあつた。さらに、築5年であるがトルエン、アセトン、p-ジクロロベンゼン、リモネンが高い住宅があつたが、この住戸は半年前に居間と洋室の2室及び床下をカーペットからフローリングにリフォームしており、その影響があるものと考えられる。

3.6 入居前と入居直後のHCHO、TVOC濃度の経時変化

入居前と入居後6ヶ月までのHCHOとTVOC濃度の経時変化を図19に示す。入居前と入居後1ヶ月との濃度を比較すると、HCHOが39%、TVOCが17%に減少している。その後は、経過月により上下する結果になっている。これより、施工期間中の放散量が多いことと、入居による開口部の開閉による換気の増加により、室内の濃度が減少したものと考えられる。また、HCHOとTVOCでは、減衰率が2倍も異なる事より成分そのものの化学的特性、あるいは発生源の状態により異なることが推測される。

図19 新築時におけるHCHO、TVOC濃度の経時変化

図20 HCHO-TVOC濃度の関係

図21 入居後のHCHO-TVOC濃度の関係

3.7 HCHO濃度とTVOC濃度の関係

図20にはHCHOとTVOCの関係を示す。HCHOあるいはTVOCのいずれかが特異な濃度を示すものはあるものの、全体的な傾向としてはHCHO濃度が高くなるとTVOC濃度も高くなるものの、特に入居前に高い濃度を示すものもあり相関係数は $r=0.4$ と低い値を示した。そこで、建材による放散が特に多いと考えられる入居前のデータを母集団より除くと、HCHO濃度とTVOC濃度の相関係数は $r=0.58$ となった(図21参照)。ところが、さらに母集団より新築住宅を除いた既築住宅のみの相関は $r=0.09$ となることより、住宅の竣工より期間が経つに連れ、HCHOとTVOCの放散速度が変化することと、建材以外に起因するHCHOとVOCが大きく影響すると考えられる。

4. 結論

本研究では以下の所見を得た。

- 1) HCHOのサンプリング方法としてパッシブサンプラー法の有用性を確認した。
- 2) 本調査で測定した住宅のHCHO濃度の平均は0.048ppm、TVOC濃度3640 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。
- 3) 集合住宅のほうが戸建住宅よりHCHO、TVOC濃度のいずれにおいても高い値を示した。しかし、既築住宅での住宅種別の濃度を比較するとあまり差がないという結果になった。
- 4) 冬期と夏期のHCHO、TVOC濃度を比較した結果、住宅種別、築年数にかかわらず冬期の濃度が高いことが分かった。
- 5) 温度、湿度とHCHO、TVOC濃度とは相関が認められなかった。
- 6) 各物質の濃度の経時変化より建材が室内のVOC濃度を支配する時期と、生活により室内に持ち込まれるVOCが支配する時期があることが確認できた。
- 7) 新築住宅において入居によりHCHO、TVOC濃度の両方が大きく減少することが分かった。

今後の課題

本調査より今後の課題として以下の点を上げる。

- 1) 材料試験の結果と、試験を行った材料を用いた実験住宅において実測を行い発生源の比較検討を行う必要がある。
- 2) 室内VOCのモデル化を行うに当たり吸着・脱着のメカニズムを解明する必要がある。
- 3) 換気量を把握することにより室内のVOC発生量を把握する必要がある。
- 4) 今後は細かく成分により比較検討を行い住宅によるVOC、生活によるVOCを明確にする必要がある。
- 5) 環境因子として材料の表面温度を測定する必要がある。

謝辞

本研究では住宅での調査に当たり林氏(積水ハウス)、鶴飼氏(ミサワホーム)、河合氏(三井ホーム)、岩崎氏(大和ハウス)、田中氏(藤和)、田島氏(エアサイクル産業)、子安氏(三菱地所ホーム)に多大なる協力を得た。なお、本研究の実測は、厚生省が財団法人ビル管理教育センターに委託した「建材・機械等の揮発性有機化学物質に関する調査研究委員会」の研究費によって実施した。ここに記して感謝する。

文献

- 1) Krause, Mailahn, Nagel, Schulz, Seifert, "Occurrence of Volatile Organic Compounds in the Air of 500 Homes in the Federal

- Republic of Germany”, The 4th Int. Conf. on Indoor Air Quality and Climate, Berlin(West), Vol.1, pp102-105, 1987
- 2) Molhave, Bach, Pedersen, “Human Reaction to Low Concentrations of Volatile Organic Compounds”, Environ. Int., Vol.12, 167-175, 1986
- 3) Molhave, “Volatile Organic Compounds, Indoor Air Quality and Health”, The 6th Int. Conf. on Indoor Air Quality and Climate, Toronto, Vol.5, pp15-33, 1990
- 4) Otson, Fellen, Tran, “Investigation of VOCs in Canadian Residences”, The 6th Int. Conf. on Indoor Air Quality and Climate, Helsinki, Vol.2, pp141-146, 1993
- 5) Park, Fujii, Yuasa, Kagi, Toyozumi, Tamura, “Characteristics of Volatile Organic Compounds in Residences”, The 7th Int. Conf. on Indoor Air Quality and Climate, Nagoya, Vol.3, pp579-584, 1996
- 6) Seifert, Schulz, Steinbach, Ullrich, Mailahn, “Seasonal Variation of Concentration of Volatile Organic Compounds in Selected German Homes”, The 4th Int. Conf. on Indoor Air Quality and Climate, Berlin(West), Vol.1, pp107-111, 1987
- 7) Seifert, “Regulating Indoor Air”, The 5th Int. Conf. on Indoor Air Quality and Climate, Toronto, Vol.5, pp35-49, 1990
- 8) Wolkoff, Cluasen, Nielsen, Molhave, “The Danish Twin Apartment Study Part I: Formaldehyde and Long-Term VOC Measurements”, The 5th Int. Conf. on Indoor Air Quality and Climate, Vol.2, pp657-662, 1990
- 9) Wallace, Clayton, “Volatile Organic Compounds in 600 U.S. Homes: Major Sources of Personal Exposure”, The 4th Int. Conf. on Indoor Air Quality and Climate, Berlin(West), Vol.1, pp183-186, 1987
- 10) USEPA Method 8315A, “Determination of Carbonyl Compounds By High Performance Liquid Chromatography(HPLC)”, 1996
- 11) 池田、松村、堀、木村、” 集合住宅における室内空気質実態調査 (その1) HCHOの測定”、第15回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究大会, pp373-376, 1997
- 12) 石川、吉澤、松村、” パッシブサンプラーを用いた換気量測定法に関する研究”, 日本建築学会計画系論文集, Vol. 467, pp47-54, 1995
- 13) 木村、池田、堀、松村、” 集合住宅における室内空気質実態調査 (その2) VOCの測定”、第15回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究大会, pp377-380, 1997
- 14) 坂本、岩下、木村、” 居住状態の戸建住宅における VOC's, HCHO濃度調査”、日本建築学会大会学術講演梗概集, pp739-740, 1997
- 15) 菅原、” 燃焼器具により発生するHCHO”、日本建築学会学術講演梗概集 (近畿)、pp753-754, 1996
- 16) 豊住、藤井、湯浅、鍵、田村、” 有機系ガスからみた住宅の空気質に関する研究”、第14回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究大会予稿集, pp161-164, 1996
- 17) 野崎、吉澤、池田、” 室内VOC、HCHO汚染に関する研究 (その1)、開放型石油暖房器具の非メタン炭化水素発生特性(Part 1)”、日本建築学会計画系論文報告集、1999. 3
- 18) 堀、楊、” 住宅における揮発性有機化合物汚染と測定法に関する考察”、人間と生活環境、Vol. 4, No. 1, pp61-69, 1996
- 19) 松村、村松、亀谷、” 室内空気汚染に関する研究 (第3報)、室内HCHO濃度について”、日本公衆衛生雑誌、Vol. 30, pp303-308, 1996
- 20) 宮崎、岩下、志波、高間、” 住宅における VOCs 濃度の低減を考慮した空気環境計画に関する研究 その1 リフォーム前の住宅及び新築住宅における VOCs 濃度測定”, 日本建築学会大会学術講演梗概集, pp759-760, 1997
- 21) 守屋、疋田、東実、新田、” 新築住宅における揮発性有機化合物の実測調査第1報冬期における揮発性有機化合物の実測調査”, 空気調和衛生工学学術講演論文集, pp53-56, 1997
- 22) 湯浅、藤井、鍵、潘、” 住宅の室内空気質に関する実態調査”、日本建築学会大会学術講演梗概集, pp743-744, 1997
- 23) 環境庁、” 有害大気汚染物質測定方法マニュアル”, pp45-46, 1997
- 24) 厚生省、” 快適で健康的な住宅に関する検討会議報告書”、pp28、居住状態における住宅室内の揮発性有機化合物に関する実態調査, 1998

(1998年6月10日原稿受理, 1999年3月10日採用決定)