

生活環境におけるホルムアルデヒドの挙動に関する調査

Fate of Formaldehyde in Dwelling Environment

佐々木 ひとえ* 泉澤 啓 佐藤 真貴子
佐藤 好克 斎藤 善則 高橋 正弘

Hitoe SASAKI, Kei IZUMISAWA, Makiko SATO
Yoshikatsu SATO, Yoshinori SAITO, Masahiro TAKAHASHI

キーワード：室内環境，ホルムアルデヒド，アセトアルデヒド，揮発性有機化合物

Key Words : Dwelling Environment, Formaldehyde, Acetaldehyde, Volatile Organic Compounds

県内の室内空気汚染対策後の住宅について、入居前、及び入居後のホルムアルデヒド等の実態調査を実施した。その結果、ホルムアルデヒドは、入居前、及び入居後共に、指針値を超えたところはなく、低ホルムアルデヒド規格材使用による効果が確認できた。

アセトアルデヒドは、入居後に指針値を超えた住宅が1棟あったが、全体的に見れば入居後の方が低い傾向を示した。

VOCは、一部の化合物（トルエンは入居前、p-ジクロロベンゼンは入居後）が指針値を超えた。しかし、住宅完成後時間経過に伴い、低減する傾向が見られた。

常時換気システムの無い住宅は入居後に、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、VOCのほとんどの項目で濃度が上昇した。

ホルムアルデヒド濃度測定において、HPLC法と検知管法を比較したところ、検知管法による濃度レベルの確認は可能であった。

入居前に比べ入居後に濃度が高くなった化合物もあり、居住者が室内空気汚染を防止できるような生活スタイルを啓発していくことも重要と思われた。

1 はじめに

最近の住宅は快適性・省エネルギー性を追求した高气密・高断熱住宅が普及しており、この気密性の高まった室内でさまざまな空気汚染の問題が起きている。室内空気中のホルムアルデヒドについては、平成9年に厚生省（現厚生労働省）の室内空気汚染に関する検討会で指針値が設定された。また、平成12年には住宅の品質確保の促進に関する法律が施行され、こうした状況の中で、住宅メーカーにおいて、建材や内装材の低ホルムアルデヒド規格材の使用等による室内空気汚染防止対策が推進されている。

そこで今回、室内空気汚染対策が施された新築住宅について、入居前および入居後のホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、および揮発性有機化合物（以下VOCとする）の測定を実施し、汚染防止対策後の住宅の現状を把握するため実態調査を行った。

また、ホルムアルデヒドについて、検知管による簡易測定法との比較もあわせて実施した。

* 現 大崎広域水道事務所

2 調査対象住宅

低ホルムアルデヒドの建材を使用して建てられた新築の一般住宅について、入居前調査を6棟行った。さらに、協力の得られた4棟について入居後調査を入居3週間～5か月後に行った。

調査時期は平成13年10月から平成14年3月で、測定地点は室内と室外を1か所ずつ行い、室内は居間中央の高さ1.3m付近で測定した。また、室外は室内と同じ高さで外壁から1m以上離れた地点で行った。

アンケート調査は入居前には建物情報等、入居後には居住者の生活スタイル等についてアンケートを実施した。

3 方 法

採取方法、および分析方法は厚生労働省の室内空気中化学物質の測定マニュアルに基づいて行った。

3.1 採取方法

3.1.1 入居前調査

試料採取にあたり、住宅の開口部すべてを30分間開放した後5時間以上密閉し、吸引速度1 l/minで30分間空気

を採取した。なお、常時換気システムを有する住宅においては、密閉中も採取中も換気システムを稼働させた。

室内は30分間の試料採取を2回行い、測定値の平均値を得た。室外は吸引速度 1 l/minで30分間1回の採取とした。

空気捕集にはホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒドはWaters製Sep-Pak XpoSurアルデヒドサンプラー、VOCは柴田科学製活性炭チューブを使用した。

3.1.2 入居後調査

日常生活を普段どおりにしている状態で、入居前と同じ居間の空気を吸引速度100ml/minで24時間採取した。室外も同様に行った。空気捕集剤は入居前調査に同じ。

3.2 分析方法

3.2.1 ホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒド

空気中のホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒドをDNPH捕集剤で吸着、誘導体化させる。これをアセトニトリルで溶出し、高速液体クロマトグラフで測定した。測定条件を表 - 1 に示す。

なお、ホルムアルデヒドの定量下限値は未使用の捕集管5本について操作ブランクを求め、捕集量を入居前30L、入居後144Lとした場合の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) を算出し、その標準偏差 $\times 10$ の値とした。

3.2.2 VOC

空気中のVOCを活性炭に吸着させ、これを二硫化炭素で溶出し、GC/MSでVOC41化合物 (表 - 2) を測定した。測定条件を表 - 3 に示す。

VOCの定量下限値は検量線作成時の最低濃度0.1mg/lを5回測定し、捕集量を入居前30L、入居後144Lとした場合の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) を算出し、その標準偏差 $\times 10$ の値とした。

3.2.3 簡易測定法 (検知管法)

入居前住宅について、ガステック製ホルムアルデヒド検知管No91PLを使用し、吸引速度200ml/minで30分間空気を捕集し測定した。空気採取はDNPH-HPLC法と同時に行った。

表1 HPLC測定条件

機器	Waters製 2690		
カラム	Waters製 Symmetry C18 5 μm 3.9 \times 150mm		
移動相	A : 精製水	B : アセトニトリル	
グラジェント	min	A : %	B : %
		80	20
	10	40	60
	30	40	60
流速	1 ml/min		
検出	360nm		
注入量	20 μl		

表2 VOC測定対象化合物

脂肪族炭化水素	ヘキサン, ヘプタン, オクタン, ノナン, デカン, ウンデカン, ドデカン, トリデカン, テトラデカン, ペンタデカン, ヘキサデカン, 2,4-ジメチルペンタン, 2,2,4-トリメチルペンタン
芳香族炭化水素	ベンゼン, トルエン, エチルベンゼン, m-p-キシレン, o-キシレン, 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	- ビネン, リモネン
ハロゲン類	トリクロロエチレン, テトラクロロエチレン, クロロホルム, 1,1,1-トリクロロエタン, 1,2-ジクロロエタン, 1,2-ジクロロプロパン, p-ジクロロベンゼン, 四塩化炭素, クロロジプロモメタン
エステル類	酢酸エチル, 酢酸ブチル
ケトン類	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	ブタノール
アルデヒド類	ノナール, デカノール

表3 GC/MSの測定条件

カラム	J&W DB- 1 0.25mm \times 60m \times 1 μm
温度条件	40 (5分) 10 /min 280 (5分)
試料注入法	スプリットレス
試料注入量	1 μl
注入口温度	250
検出器温度	280
検出法	SIM

4 結果および考察

4.1 アンケート結果

4.1.1 入居前アンケート

調査住宅6棟は、一戸建住宅でそれぞれ完成直後ないし1年経過後までの住宅であった。そのうち、常時換気システム設置住宅は4棟であった。ホルムアルデヒド対応状況では、床フローリングは5棟がホルムアルデヒド放散量の1番低い日本農林規格 (JAS) のF_{co}規格を、1棟がF_{ci}規格を使用していた。壁および天井に使用されたビニルクロスや接着剤も低ホルムアルデヒド規格材を使用している住宅が多かった。

4.1.2 入居後アンケート

調査住宅4棟は、入居後3週間から5か月経過時に測定を行った。常時換気システム設置住宅は3棟であった。測定時期は冬場の暖房使用期間中で、電気による蓄熱式が2棟、石油ファンヒーター使用が2棟だった。在室時間では1棟が日中留守にしていた。居間に設置した購入3か月以内の家具は1~3個であった。また、防虫剤を居間に保存していた住宅が1棟あった。

4.2 調査結果

現在までに指針値が設定された化合物、および濃度は表 - 4のとおりである。

ホルムアルデヒドの入居前後の結果を図 - 1に、アセトアルデヒドの結果を図 - 2に示す。

VOCの入居前後の結果を図 - 3 ~ 7に示す。

また、入居前の住宅について住宅完成から調査日まで

の経過月数と濃度の関係を図 - 8 ~ 10に示す。

ホルムアルデヒド測定におけるHPLC法と検知管法との比較結果を図 - 11に示す。

なお、室外結果は検出下限付近の低濃度であった。

表 4 指 針 値

化合物名	指針値 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
トルエン	260
エチルベンゼン	3800
スチレン	220
キシレン	870
p-ジクロロベンゼン	240
ノナール	41
テトラデカン	330
ホルムアルデヒド	100
アセトアルデヒド	48
T V O C	400

4.2.1 入居前結果

- ① ホルムアルデヒドはA住宅が指針値 ($100\mu\text{g}/\text{m}^3$) に近かったのを除くと $23 \sim 45\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。この住宅が高めの値を示したのは、床フローリング材が他の住宅より放散量の大きいF_{C1}規格だったことや、調査時に付いていたカーテンの加工剤による影響の可能性も考えられる。
- ② トルエンは最大 $1200\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、最小 $3.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ で指針値 ($260\mu\text{g}/\text{m}^3$) を超えた住宅が1棟あった。
- ③ 各住宅の最大濃度を示した化合物は3棟が -ピネン、残り3棟はトルエンであった。 -ピネンが高かった住宅はすべて木造在来工法であった。
- ④ ハロゲン類はすべての住宅で検出されなかった。
- ⑤ 総揮発性有機化合物 (TVOC) は最大 $2100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、最小 $23\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、完成後1か月以内に調査した住宅ではすべてTVOCは暫定目標値 $400\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていた。また、完成後5か月以上過ぎた住宅では数 $10\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。
- ⑥ 住宅完成から調査日までの経過月数と濃度の関係を見ると、ホルムアルデヒドは時間経過で低くなる傾向はみられなかったが、これは低ホルムアルデヒド建材 (F_{C0}) 使用により元々放散が少ないためと考えられる。アセトアルデヒドとVOCは住宅完成後時間経過に伴い低くなる傾向がみられた。また、VOCが低い値を示したB住宅、およびE住宅は夏以前に完成した住宅だったため、夏場の高温による自然のベイクアウト効果で化学物質が放散したため、調査時に低い値を示したものと考えられる。

4.2.2 入居後結果

- ① ホルムアルデヒドは $31 \sim 55\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲内となり、入居前に高かったA住宅は $37\mu\text{g}/\text{m}^3$ と低下した。常時換気システムの無いD住宅が上昇し、 $55\mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。

- ② アセトアルデヒドはD住宅が $76\mu\text{g}/\text{m}^3$ と入居前の2倍以上の値となり、指針値 ($48\mu\text{g}/\text{m}^3$) を超えた。
- ③ P-ジクロロベンゼンはD住宅が $310\mu\text{g}/\text{m}^3$ と指針値 ($240\mu\text{g}/\text{m}^3$) を超えた。これは居間に防虫剤を保存していたことが原因であった。
- ④ 暖房に開放式石油ファンヒーターを使用しているD、F住宅は、電気による暖房器具を使用しているA、C住宅に比べ、脂肪族炭化水素が高かった。
- ⑤ TVOCは最大 $1700\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、最小 $300\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。最大値を示したD住宅は常時換気システムの無い住宅であった。

4.2.3 入居前後の比較

- ① ホルムアルデヒドについては、A住宅を除けば入居前に比べ入居後は10~70%程度高くなった。居住者の持ちこんだ家具等の影響が考えられるが、平成11年度の東京都の調査結果とほぼ同程度であった。
- ② アセトアルデヒドについては、D住宅を除けば入居後の方が低い傾向を示した。これはVOCと同様調査時期の影響と考えられる。
- ③ TVOCではD住宅以外は入居後の方が低い傾向にあった。D住宅の入居前調査は12月で気温の低い時期だったが、入居後の調査は暖房による加温のため放散量が大きくなったものと考えられる。また、調査した居間に衣類の防虫剤を保存していたことや、換気システムの無い住宅であったことも一因と考えられる。

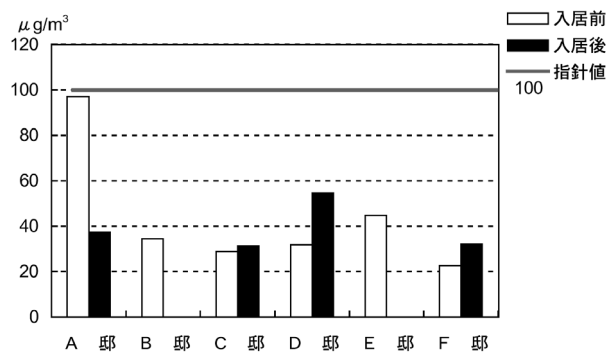


図 1 ホルムアルデヒド

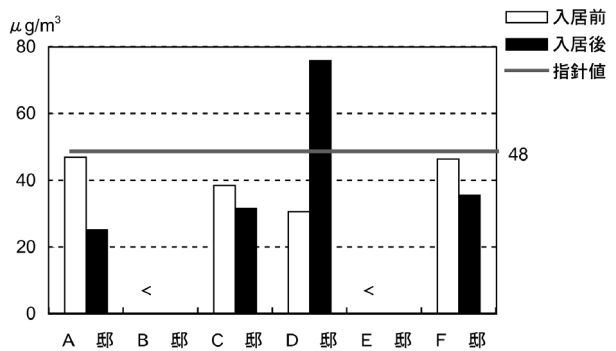


図 2 アセトアルデヒド

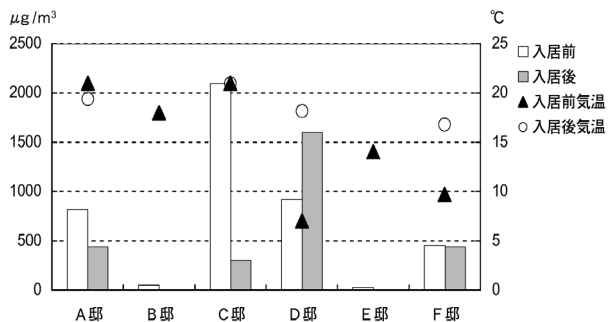


図3 TVOC (入居前後)

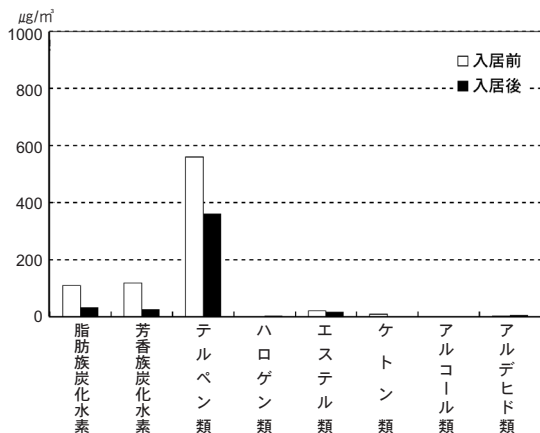


図4 A邸

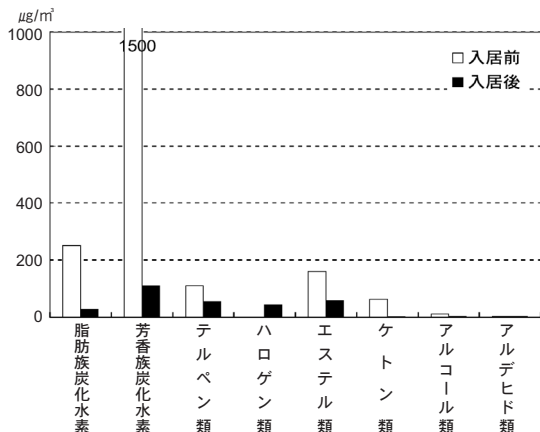


図5 C邸

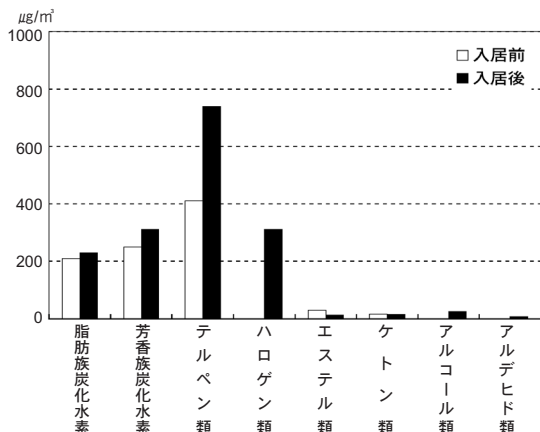


図6 D邸

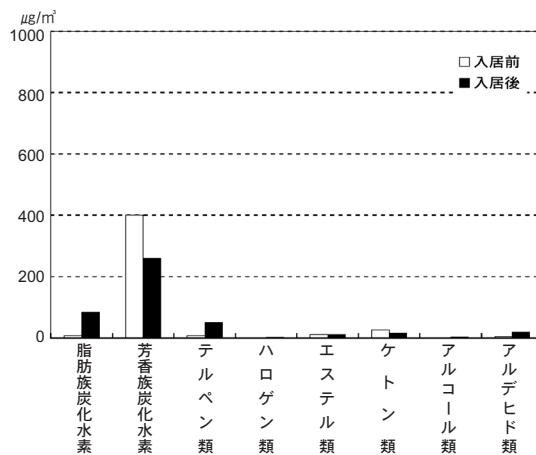


図7 F邸

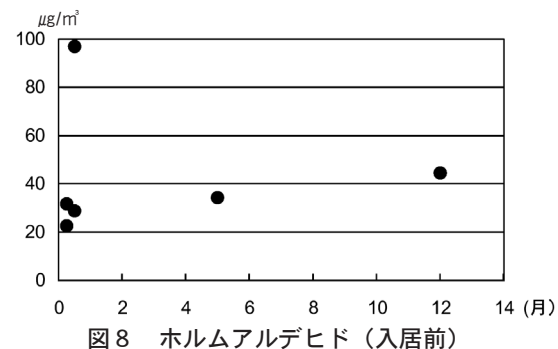


図8 ホルムアルデヒド (入居前)

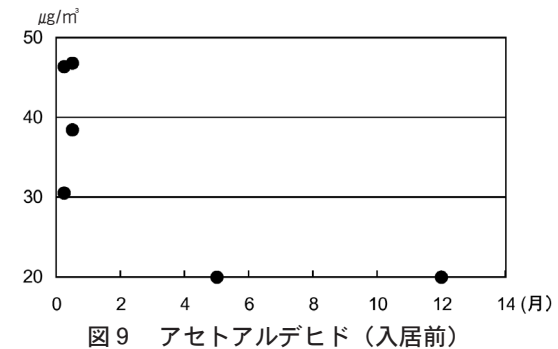


図9 アセトアルデヒド (入居前)

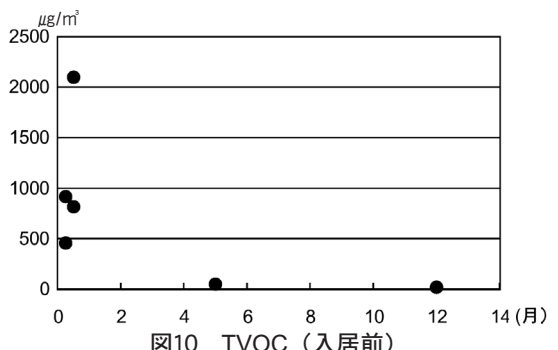


図10 TVOC (入居前)

4.2.4 HPLC法と検知管法との比較

- ① 両方法を比較すると、0.03ppm以上では検知管法が低値を示し、それ以下では高めになる傾向がみられた。相関係数は0.773であった。
- ② 今回の調査では低ホルムアルデヒド材を使用した住宅での調査のため、全体的に低濃度域での比較だったこ

とや試料数が少なかったため、明確な比較結果は得られなかった。しかし、検知管法での濃度レベルの確認は可能と思われた。

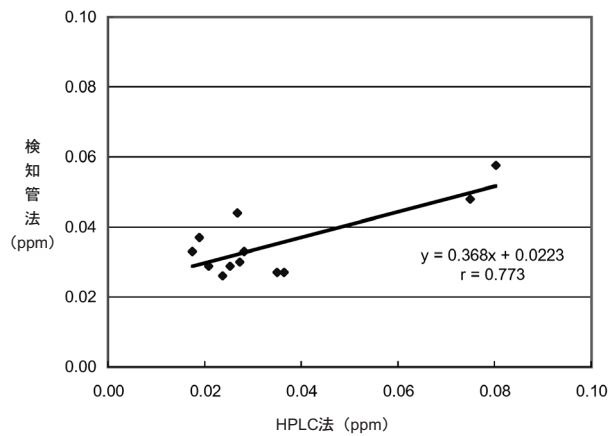


図11 HPLC法と検知管法との比較

5 ま と め

今回の調査結果からホルムアルデヒドについては、指針値を超えたところはなく、低ホルムアルデヒド規格材の使用による室内空気汚染防止対策の効果が確認できた。VOCについては一部の化合物の個別指針値が設定されたものの、その対応についてはまだ不十分で、一部指針値を超過した。しかし、住宅完成後時間経過に伴いVOCが低減する傾向がみられたことから、入居前に十分にVOCを放散させ換気を行うこと（ベイクアウト）により、VOCの低減は可能と推察された。

また、入居前に比べ入居後に濃度が高くなった化合物もあり、居住者が室内空気汚染を防止できるような生活スタイルを啓発していくことも重要と思われた。

参 考 文 献

- 1) 瀬戸博他：東京都立衛生研究所年報，51，p229（2000）