室内空気中のアルデヒド類・ケトン類濃度(第1報)

立野 英嗣 恵花 孝昭 山本 優 浦嶋幸雄* 小塚信一郎 向原 紀彦* 藤田 晃三

要旨

札幌市では平成10年度から市内の一般住宅における室内空気中に含まれる各種化学物質の調査を行っている。このうち、ホルムアルデヒドの試料採取は2,4-DNPH捕集管を用いて行うが、この際他のアルデヒド類・ケトン類も同時に捕集される。そこで、ホルムアルデヒドの濃度調査と併せて、 EPA (Environental Protection Agency: アメリカ合衆国環境保護庁 Compendium Methods for the Determination of Toxic Organic Compounds in Ambient Air)TO-11及IP-6に示されているアルデヒド類・ケトン類濃度についても調査を行った。この結果、ホルムアルデヒドはすべての調査対象施設から検出され、その濃度は32.0~230 μ g/m³の範囲であった。また、その濃度は中古住宅より新築住宅の方が高い濃度を示す傾向が見られた。室内空気中のホルムアルデヒドは、建築時に用いられた建築材、内装材あるいは接着剤、塗料などから発生するものが大部分を占めていることが示唆された。また、室内空気は大気と異なり、プロピオンアルデヒド、ブチルアルデヒド、クロトンアルデヒド、ベンズアルデヒド、イソバレルアルデヒドなどが検出され、その総量は57.8~581.8 μ g/m³の範囲であった。

1. 緒 言

札幌市では平成10年度から市内の一般住宅における室内空気中に含まれる各種化学物質の調査を行っている。これらの化学物質のうちホルムアルデヒドは空気中の濃度も高く,毒性も強いことから他の化学物質とは区別して取り扱われている¹⁾。

また,市民の関心も他の物質と比較して高く,保健所などに対する苦情あるいは問い合わせも多い。

一般住宅の室内におけるホルムアルデヒドの主な発生源としては合板,壁紙,クロス,チップボ・ドなどがあげられ,その健康影響としては目,皮膚,結膜に対する刺激,頭痛,吐き気などがあげられる1)。

このホルムアルデヒドの室内空気における基準

等としてはWHO欧州地域専門家委員会におけるガイドライン値,厚生省の健康住宅関連基準策定専門部会化学物質小委員会指針値があり,いずれも「30分平均値で0.1mg/m³以下」となっている。

一方,一般住宅内では前述した建築材のほかにも 日常生活に密着した各種の化学物質が使用されて いることから室内空気中にはアセトアルデヒドを 始めとしたその他のアルデヒド類・ケトン類が含ま れていることが予想される。

今回,ホルムアルデヒドの濃度調査で使用した2, 4-DNPH捕集管による捕集方法^{2),3)}では,アセトアル デヒドを始めとする低級アルデヒド類・ケトン類も 同時に捕集される。

さらに,室内空気中のアルデヒド類・ケトン類濃

^{*}札幌市保健所

度に関する調査は、ホルムアルデヒドについては多くの報告があるが、それ以外のアルデヒド類・ケトン類についての報告は少ない^{4)~6)}。

そこで,今回,一般住宅における室内空気中のこ

れらアルデヒド類・ケトン類濃度について、ホルムアルデヒド濃度と併せて調査したので、その結果について報告する。

表1 調査対象施設の概要

施設番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	1 0
新築・中古の別	新築					中古				
建築形態	集合			戸建			1	集合	戸建	
測定場所	居間	LK	洋室	書斎	LDK	LDK	洋室	居間	LDK	居間
換気方式	機械	自然	自然	機械	機械	自然	自然	機械	自然	自然

2. 方 法

2-1 調査期間

平成10年7月から9月

2-2 調查対象施設

札幌市内の一般住宅10棟,集合住宅マンション等)及び戸建住宅それぞれ5棟づつを対象とした。

試料採取は、対象施設の居間、和室、リビングキッチンなどで行った。

対象施設の概要は表1のとおりである。ただし、 築後3月以内を新築、それ以外は中古と区分した。

2-3 測定対象物質

EPA(Environmental Protection Agency:アメリカ合衆国環境保護庁) Compendium of Methods for the Determination of Toxic Organic Compounds in Am bient Air)TO-11/IP-6に示されているアルデヒド類・ケトン類で以下に示した15物質を測定対象とした。

ホルムアルデヒド

アセトアルデヒド

アクロレイン

アセトン

プロピオンアルデヒド

クロトンアルデヒド

ブチルアルデヒド

ベンゾアルデヒド

イソバレルアルデヒド

バレルアルデヒド

0-トルアルデヒド

m-トルアルデヒド

p-トルアルデヒド

ヘキスアルデヒド

2.5-ジメチルベンズアルデヒド

2-4 試料採取用機器及び捕集剤

- ・試料採取用ポンプ:ダイアフラムポンプSP-201 AC(ジーエルサイエンス(株)製)
- ・ガスメータ :湿式ガスメ タ -W-NK-1B((株)品川製)
- ・オゾンスクラバ:Sep-Pak Ozone Scrubber (Waters社製)
- ·捕集管:DNPH Xposure Aldehyde Sampler (Waters社製)

2-5 試料採取方法

室内空気試料の捕集は、Sep-Pak DNPH Xposure2 本とOzone Scurubberとを接続し、ダイアフラムポン プを用いて毎分100mlの速度で24時間室内空気を捕 集した。

2-6 試薬等

- ·標準物質:EPA TO-11/IP-6 Carbonyl-DNPH mix 15物質,各々15 µ g/ml (SUPELCO社製)
 - ・アセトニトリル 高速液体クロマトグラフ用 (和光純薬工業(株)製)

2-7 分析方法

試料採取を終えた捕集管のうちOzone Scrubberは

廃棄し、DNPH Xposureの1段目及び2段目からアセトニトリル5mlを用いてヒドラゾン誘導体を溶出し、1段目の溶出液と2段目の溶出液を併せ、全量を10mlにメスアップしたものを試験液とした。

これを高速液体クロマトグラフ(以下「HPLC」という)により分析を行い、それぞれの室内空気中の濃度を算出した。HPLCの分析条件は既報⁷⁾のとおりである。本分析条件下では、ホルムアルデヒドを始めとした15物質を約15分で分析できた。

3. 結果及び考察

3-1 検量線の作成

TO-11/IP-6 Carbonyl-DNPH mixをアセトニトリルを用いて希釈し、0.15 µg/mlから0.60 µg/mlまで段階的に標準液を作成した。これをHPLCを用いて分析を行い、濃度とピーク面積とから検量線を作成した。 今回測定対象とした15成分いずれの物質についても相関係数0.99以上の良好な直線が得られた。

しかし、HPLCによる分析法ではトルアルデヒドのm-体とp-体は分離することは不可能であった。

3-2 検出下限値及び定量下限値の算出

検量線作成時の最低濃度の標準液を用いて5回の分析を行い、その分析結果の標準偏差()を求め、その10 を定量下限値とした。

表2に15物質の定量下限値を示した。

3-3 室内空気中のホルムアルデヒド濃度

今回の調査結果を表3に示した。このうちホルムアルデヒド濃度の測定結果は32~230 µ g/m³の範囲であり、WHOの指針値0.1mg/m³を超えたものは4棟あった。このうち3棟は築後1~2月の新築、残りの1棟も築後1年3月であり、いずれも建築後間もないものであった。一方新築にもかかわらずホルムアルデヒド濃度が低い施設も見受けられた。

室内大気中のホルムアルデヒドは,建築時に使用された建築材,内装材あるいは接着剤,塗料などに起因すると考えられるが,低濃度の施設については低ホルムアルデヒド建材などを使用しているものと推察される。

3-4 室内空気中のその他のアルデヒド類・ケトン 類濃度

今回調査した室内空気中からはホルムアルデヒド以外のアルデヒド類として,アセトアルデヒド,プロピオンアルデヒド,ブチルアルデヒド,クロトンアルデヒド,ベンズアルデヒド,イソバレルアルデヒドなどが検出され,ケトン類としてはアセトンが検出された。これらアルデヒド類・ケトン類の総量は57.8~581.8 µg/m³にも達した。しかし,新築・中古による濃度の差は認められなかった

表2 測定物質の定量下限値

測定物質	定量下限値
ホルムアルデヒド	0.4
アセトアルデヒド	0.3
アクロレイン	0.3
アセトン	0.5
プロピオンアルデヒド	0.4
クロトンアルデヒド	0.5
ブチルアルデヒド	0.9
ベンゾアルデヒド	0.9
イソバレルアルデヒヒド	0.4
バレルアルデヒド	0.5
o-トルアルデヒド	1.4
m-,p-トルアルデヒド	0.8
ヘキスアルデヒド	0.8
2,5-ジメチルベンズアルデヒド	1.5

単位: µ g/m³

3-5 室内空気と大気との比較

札幌市では平成9年度から市内で大気中のホルム アルデヒド及びアセトアルデヒドを始めとしたア ルデヒド類・ケトン類のモニタリングを行っている。

今回の測定結果と平成9年8月~平成10年7月まで のモニタリング結果の総括表を表4に示した。

大気では,ホルムアルデヒド,アセトアルデヒド及 びアセトンのみが検出され,その他のアルデヒド類・ ケトン類はすべて不検出であった。これに対し,室内 空気からは,プロピオンアルデヒド,ブチルアルデヒ

ド,クロトンアルデヒド,ベンズアルデヒド,イソバレルアルデヒド,ヘキスアルデヒド等が検出された。

表3 室内空気中のアルデヒド類・ケトン類濃度

新築・中古の別	新築					中古				
建築形態	集合			戸建			集合		戸建	
ホルムアルデヒド	51.0	110	32.0	230	120	72.0	36.0	120	63.0	60.0
アセトアルデヒド	6.8	31.0	4.1	44,0	140	38.0	5.3	12.0	63.0	16.0
アクロレイン	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
アセトン	260	61.0	16.0	110	130	50.0	12.0	24.0	70.0	25,0
プロピオンアルデヒド	ND	1.8	ND	2.5	4.3	1.6	ND	ND	1.3	0.9
クロトンアルデヒド	ND	1.8	ND	2.5	4.3	1.6	ND	ND	1.3	0.9
ブチルアルデヒド	5.8	37.0	3.1	35.0	56.0	24.0	2.2	4.5	18.0	3.3
ベンズアルデヒド	2.5	6.9	ND	3.6	7.6	5.0	2.3	1.6	9.9	1.2
イソバレルアルデヒド	ND	1.0	ND	1.0	3.3	2.7	ND	ND	ND	ND
バレルアルデヒド	2.9	8.7	1.2	4.9	32.0	29.0	1.4	3.0	8.4	3.6
o-トルアルデヒド	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
m-,p-トルアルデヒド	1.6	1.4	ND	2.8	6.3	3.4	0.8	1.2	1.1	0.9
ヘキスアルデヒド	3.9	20.0	1.4	10.0	78.0	14.0	1.5	5.9	16.0	8.9
2,5-ジメチルベンズアル デヒド	ND	3.4	ND	ND	ND	ND	1.9	ND	ND	ND
Total	334.5	284.0	57.8	446.3	581.8	241.3	63.4	172.2	252.0	120.7

単位: µ g/m³

表4 室内空気及び大気の測定結果の総括表

ス [・] 主門上が及り入がの別た間木の地間代						
測定対象物質	室内	大 気				
ホルムアルデヒド	32.0 ~ 230	0.4 ~ 11.0				
アセトアルデヒド	4.1 ~ 140	0.5 ~ 9.6				
アクロレイン	ND	ND				
アセトン	12.0 ~ 260	1.6 ~ 27.0				
プロピオンアルデヒド	0.4 ~ 4.3	ND				
クロトンアルデヒド	0.9 ~ 4.3	ND				
ブチルアルデヒド	2.2 ~ 56.0	ND				
ベンズアルデヒド	1.2 ~ 9.9	ND				
イソバレルアルデヒド	1.0 ~ 3.3	ND				
バレルアルデヒド	0.7 ~ 32.0	ND				
o-トルアルデヒド	ND	ND				
m-,p-トルアルデヒド	0.5 ~ 6.3	ND				
ヘキサアルデヒド	1.4 ~ 78.0	ND				
2,5-ジメチルベンズアル デヒド	ND ~ 3.4	ND				

単位: µ g/m³

4.結 語

- 1) ホルムアルデヒドは対象施設すべてから検出され、その濃度は $32 \sim 230 \, \mu \, g/m^3$ の範囲であった。
- 2)新築住宅におけるホルムアルデヒド濃度は、中古住宅より比較的高い濃度を示す傾向が見られた。
- 3)室内空気は大気と異なり、その他のアルデヒド

類・ケトン類として、プロピオンアルデヒド、ブチルアルデヒド、クロトンアルデヒド、ベンズアルデヒド、イソバレルアルデヒド、ヘキスアルデヒド等が検出された。

4) 今回,測定した施設においては室内空気中に含まれるアルデヒド類・ケトン類濃度の総量は,57.8~581.8 µ g/m³の範囲であった。

5. 文献

- 1)堀 雅宏:化学物質による室内環境汚染.環境管理.33:133-143.1997
- 2)環境庁大気保全局:有害大気汚染物質測定方法マニュアル.平成9年2月
- 3)環境庁大気保全局大気規制課監修:有害大気汚染物質測の実際
- 4)堀 雅宏,楊 建平:人間と生活環境.4(1),61-69, 1996
- 5)堀 雅宏,田中 隆,山田篤志,他:空調·衛生工 学会,学術講演会講演論文集,1277-1280,1990
- 6)木村 洋,池田耕一,堀 雅宏,他:集合住宅にお

ける室内空気実態調査 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 大会予講集,377-380,1997 7) 立野英嗣,恵花孝昭,山本優,他:大気中のアルデヒド類,ケトン類濃度について.札幌市衛生研究所年報.25.59-63.1998

Concentration of Aldehydes and Ketones In Room Air at Sapporo City (part 1)

Hidetsugu Tateno, Takaaki Ebana, Masaru Yamamoto, Yukio Urashima, Shinichiro Kozuka, Norihiko Mukaihara and Kozo Fujita

Concentration of chemical substances in room air has been measured in Sapporo since 1998.

In1998, we measured concentration of aldehydes and ketones showen in EPA TO-5 and TO-11.

The results indicated formaldehyde was detected in all samples. The concentration of formaldehyde ranged $32.0-230 \,\mu \, \text{g/m}^3$ and total concentrations of aldehydes and ketones were ranged $57.8-581.8 \,\mu \, \text{g/m}^3$.

The concentration of formaldehyde in new house were higher than in old house. The most of formaldehyde in room air was caused of building materials, interior materials, adhesives, coatings and so on.

The room air was different from urban air, because propionaldehyde, buthylaldehyde, crotonaldehyde, benzaldehyde,isovalerualdehyde and so on were detected.