

富山市とその周辺地域における室内外空気中のアルデヒド濃度

Surveys of Aldehyde Concentrations in Indoor and Outdoor Air in Toyama and Surrounding Area

高橋 ゆかり 王 齊¹ 雨谷 敬史¹
TAKAHASHI Yukari WANG Qi AMAGAI Takashi

2014年夏季、2015年冬季に富山市およびその周辺地域において、一般家庭の室内外のアルデヒド濃度調査を実施した。すべての試料中のホルムアルデヒド濃度およびアセトアルデヒド濃度は、屋外より室内の方が高かった。厚生省による室内環境中のホルムアルデヒド濃度指針値を超えた家庭はなく、アセトアルデヒド濃度指針を超えた家庭は1家庭であった。また、夏季の室内におけるホルムアルデヒド濃度とアセトアルデヒド濃度の間には有意な相関が見られた。

キーワード： 室内空気、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、一般家庭

1. はじめに

ホルムアルデヒド(HCHO)は、国際がん研究機関の発がん性評価でgroup1 (ヒトに対して発がん性がある) に分類されている [1]。また、いわゆるシックハウス症候群ならびに化学物質過敏症の原因物質の一つとして知られている [2]。ホルムアルデヒドは、建材や家具、壁紙、接着剤などに含まれていたり、有機物の不完全燃焼によって生成したりすることが知られている [2]。このため、厚生省により室内濃度のガイドラインが30分平均値で $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と定められた。アセトアルデヒド(CH_3CHO)は、接着剤や塗料中に含まれているほか、喫煙や加熱調理、灯油やガスによる暖房などによって発生することが知られている [3]。近年、これらに対する対策が進められており、ホルムアルデヒド放散量を低減した製品が開発されているものの、シックハウスによる体調不良を訴える人も存在する。しかしながら、富山県における一般家庭におけるアルデヒド類のデータは少ない。そこで、本研究では、富山市およびその周辺地域において一般家庭の室内外のアルデヒド調査を実施し、室内外のホルムアルデヒド濃度およびアセトアルデヒド濃度の実態を把握し、曝露評価のための一資料を得ることとした。

2. 方法

2. 1 調査期間および調査対象家庭

夏季 (2014年8~9月) および冬季 (2015年1~2月) に一般家庭において室内外空気調査を実施した。夏季は、富山市8家庭、射水市2家庭、上市町2家庭、滑川市1家庭の計13家庭を対象とし、

冬季は、富山市11家庭、滑川市1家庭の計12家庭を対象とした。各家庭の居間、寝室および屋外において試料を採取した。

2. 2 試料採取方法

試料の採取には、柴田科学社製のDNPHパッシブガスチューブ（アルデヒド・ケトン類用）を用いた。一般家庭の室内の壁から1m以上離れた場所で、床上から1m程度の場所に24時間放置することにより採取した。捕集したサンプルは、アルミニウムコーティングしてある付属の保存袋に入れて密封した状態でクーラーボックスに入れて実験室に持ち帰り、分析まで冷蔵庫で保管した。トラベルブランクサンプルは、少なくとも10サンプルに1本ずつ入れ、サンプルと同様に処理した。

2. 3 抽出・分析方法

パッシブサンプラーからアルデヒドを抽出する際には、サンプラー両端のPTFE栓をはずし、片方の端からHPLC用アセトニトリル6mLをゆっくり注入してアルデヒドのDNPH誘導体を溶出させた。抽出後、全量をアセトニトリルで10mLにメスアップし、高速液体クロマトグラフィーによる分離分析に供した。HPLC分離分析条件を表1に示した。

表1 HPLC 分析条件

HPLC装置:	Agilent Technologies 1200 Infinity Series	
検出器:	ダイオードアレイ検出器 (1290 DAD)	
検出波長:	360 nm	
カラム温度:	45°C	
注入量:	1 μL	
流速:	0.35 mL/min	
グラジエント条件		
時間(分)	メタノール (%)	蒸留水 (%)
0-5	30	70
5-10	30→90	70→10
10-16	90	10
16.1-20	30	70

2. 4 アルデヒド濃度の算出方法

以下の式を用いて室内外空気中のアルデヒド濃度を算出した [4]。

$$\text{アルデヒド濃度 } (\mu\text{g}/\text{m}^3) = \frac{W_A - W_B}{SR \times t_1} \times \frac{M_w}{22.414} \times \frac{273.15}{(273.15 + T)} \times 1000$$

ここで、

W_A : 検量線によるアルデヒドの捕集量 (μg)

W_B : ブランク値 (μg)

SR : サンプリングレート [$\mu\text{g}/(\text{ppm}/\text{hr})$] (ホルムアルデヒド: 5.1、アセトアルデヒド: 5.6)

t_1 : サンプリング時間 (hr)

M_w : アルデヒドの分子量 (ホルムアルデヒド: 30.031、アセトアルデヒド: 44.053)

T : 試料採取時の平均気温 ($^{\circ}\text{C}$)

3. 結果と考察

3. 1 室内外のアルデヒド濃度測定結果

調査結果の概要を表2および図1に示した。調査を実施したすべての家庭の室内外からホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドが検出され、いずれの家庭でも室内濃度の方が屋外濃度よりも高く、ホルムアルデヒドは屋外の1.2（居間、夏季）～43倍（居間、冬季）、アセトアルデヒドは屋外の1.4（居間、夏季）～42倍（居間、夏季）であった。

① ホルムアルデヒド

夏季におけるホルムアルデヒドの屋外濃度は $1.3\sim 3.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $2.2\pm 0.74\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $2.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、室内濃度は居間では $3.9\sim 47\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $23\pm 17\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $17\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、寝室では $6.7\sim 69\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $33\pm 23\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $26\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。このように、夏季のホルムアルデヒドの屋外濃度は、場所による差が室内と比較して小さく、最大値の最小値に対する比は3.0程度であった。一方、室内におけるそれは、夏季で12（居間）および10（寝室）と、家庭によってホルムアルデヒドの室内濃度が大きく異なることを認めた。しかし、室内環境中の濃度指針値である $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えていた家庭はなかった [5]。ホルムアルデヒドの室内濃度は、屋外の1.2～43倍であった。

雨谷らは、1999年8月に静岡県富士市においてアルデヒド類による室内外の汚染実態調査を実施した結果、ホルムアルデヒドの屋外濃度は $1.45\sim 3.47\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $2.61\pm 0.63\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $2.53\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、室内濃度は $7.35\sim 110\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $39.9\pm 33.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $27.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ であったことを報告している [6]。調査地域や調査対象の家庭が異なることから直接比較はできないものの、この結果と本研究の結果を比較すると、屋外や寝室

表2 富山県の一般家庭におけるアルデヒド測定結果（算術平均、幾何平均）

		(1) ホルムアルデヒド $(\mu\text{g}/\text{m}^3)$						
		算術平均			幾何平均		最大値	最小値
		平均	\pm 標準偏差	平均	標準偏差			
夏季	屋外	2.2	± 0.74	2.1	1.1	3.8	1.3	3.0
	居間	23	± 17	17	2.1	47	3.9	12
	寝室	33	± 23	26	1.9	69	6.7	10
冬季	屋外	0.99	± 0.51	0.90	1.2	2.3	0.41	5.6
	居間	16	± 11	13	2.0	38	2.2	17
	寝室	11	± 8.8	9.2	1.5	36	3.6	9.9

		(2) アセトアルデヒド $(\mu\text{g}/\text{m}^3)$						
		算術平均			幾何平均		最大値	最小値
		平均	\pm 標準偏差	平均	標準偏差			
夏季	屋外	1.5	± 0.42	1.5	1.1	2.7	1.1	2.4
	居間	10	± 7.7	7.5	1.9	25	2.2	11
	寝室	9.7	± 7.2	7.8	1.6	27	2.9	9.4
冬季	屋外	2.1	± 1.0	1.8	1.4	4.2	0.51	8.3
	居間	22	± 24	14	2.5	87	3.3	26
	寝室	13	± 9.0	11	1.6	31	3.6	8.4

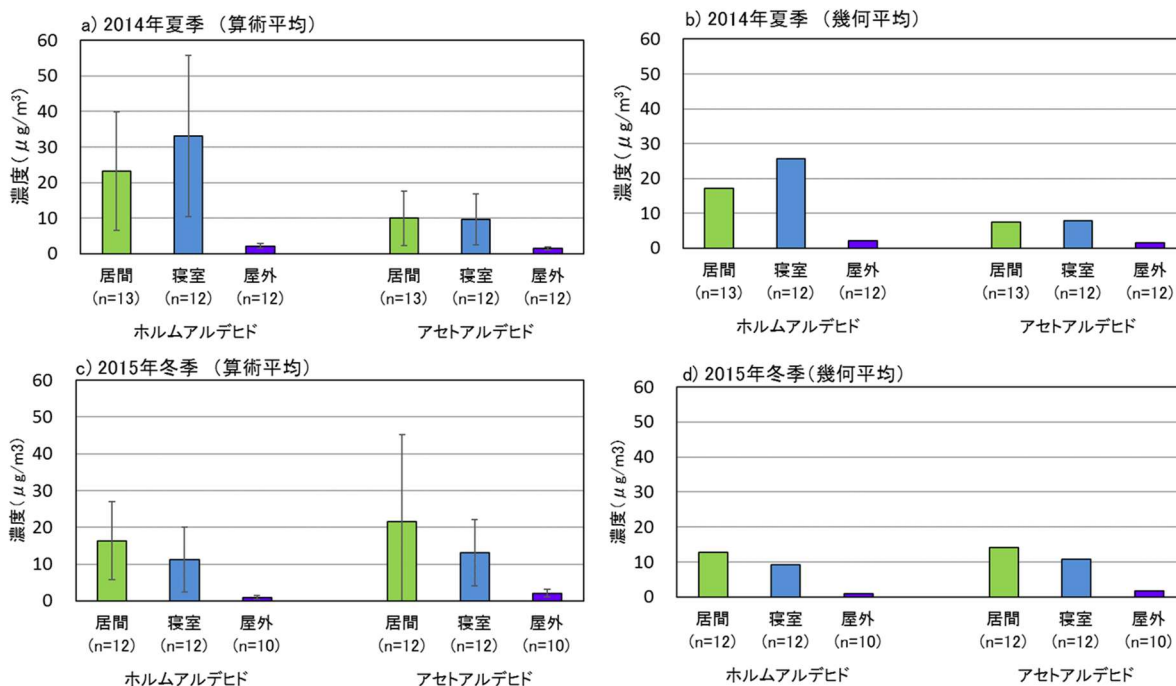


図1 富山県の一般家庭におけるアルデヒド測定結果 (算術平均、幾何平均)

については、ホルムアルデヒド濃度の幾何平均値に大きな差は見られなかったが、本研究では、ホルムアルデヒドの濃度指針値を上回る家庭は見られなかった。本研究では、調査対象とした家庭数が限られていたことや、調査対象とした13家庭のうち、9家庭の家屋が築年数10年以上であったことなど、ホルムアルデヒドが極端に高濃度になることが予想される家庭がなかったことによる可能性もある。また、築70年以上の家屋であっても室内からホルムアルデヒドが検出されたことから、家具をはじめとする生活用品などの室内発生源からアルデヒドが揮散したと考えられた。

冬季におけるホルムアルデヒドの屋外濃度は $0.41\sim 2.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $0.99\pm 0.51\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $0.90\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、室内濃度は居間では $2.2\sim 38\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $16\pm 11\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $13\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、寝室では $3.6\sim 36\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $11\pm 8.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $9.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。このように、冬季のホルムアルデヒド濃度の幾何平均値は、夏季のそれと比較すると、低いことがわかる。一般にホルムアルデヒドの放散量は気温が高いほど多いことが知られている [7]。これらのことより、ホルムアルデヒドへの曝露量を軽減するためには特に夏季には意識的に換気を行う必要があると考えられた。特に、昼間使用しない寝室や昼間家を閉め切った状態にしがちな家庭ではホルムアルデヒド濃度が高くなる傾向があると考えられたことから、意識的に換気することが望ましいと考えられた。

本研究では、調査対象とした家庭数が限られていたことや、調査対象とした13家庭のうち、9家庭の家屋が築年数10年以上であったことなど、ホルムアルデヒドが極端に高濃度になることが予想される家庭がなかったことによる可能性もある。また、築70年以上の木造家屋であっても室内からホルムアルデヒドが検出されたことから、家具をはじめとする生活用品などの室内発生源からの揮散した可能性が極めて高いものと考えられた。

② アセトアルデヒド

夏季のアセトアルデヒドの屋外濃度は $1.1\sim 2.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $1.5\pm 0.42\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $1.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、室内濃度は居間では $2.2\sim 25\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $10\pm 7.7\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $7.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、寝室では $2.9\sim 27\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $9.7\pm 7.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $7.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。ホルムアルデヒドと同様、夏季のアセトアルデヒドの屋外濃度は、場所による差が室内と比較して小さく、最大値の最小値に対する比は2.4であった。一方、室内におけるそれは、夏季で11（居間）および9.4（寝室）と、アセトアルデヒドの室内濃度も各家庭のライフスタイルによって大きく異なることを認めた。夏季のアセトアルデヒド濃度は、ホルムアルデヒド濃度よりも低い傾向にあった。

冬季のアセトアルデヒドの屋外濃度は $0.51\sim 4.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $2.1\pm 1.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $1.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、室内濃度は居間では $3.3\sim 87\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $22\pm 24\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $14\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、寝室では $3.6\sim 31\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、算術平均値は $13\pm 9.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、幾何平均値は $11\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。ここからわかるように、冬季のアセトアルデヒド濃度は、夏季よりも若干高い傾向がみられ、特に居間において屋外や寝室よりも高濃度に検出される家庭があった。居間と屋外のアセトアルデヒド濃度を比較して、居間の方が30倍以上高濃度であった家庭が3件存在した。これらは暖房に灯油やガスを用いている部屋であった。調査件数が少なかったためはっきりしたことは言えないものの、換気が十分でない場合には、冬季の室内のアセトアルデヒド濃度が屋外よりもかなり高くなる可能性が示唆された。特に、居間で石油ファンヒーターを12時間使用していた1家庭では指針値 $48\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた。しかし、これらの家庭でも、暖房に灯油やガスを使用していない寝室では、居間ほど高濃度にならなかった。これらの結果より、冬季であっても室内発生源によってアルデヒド濃度が上昇する可能性があるため、こまめに換気することが重要であることがわかった。

3. 2 ホルムアルデヒド濃度とアセトアルデヒド濃度の相関

ホルムアルデヒド濃度を横軸に、アセトアルデヒド濃度を縦軸にプロットしたものを図2に示した。また、相関係数を表3に示した。ここからわかるように、夏季の室内におけるホルムアルデヒド濃度とアセトアルデヒド濃度の間に1%の危険率で有意な相関がみられた。一方、冬季や屋外では、これらの間に有意な相関は見られなかった。冬季には、家具などから揮散するアルデ

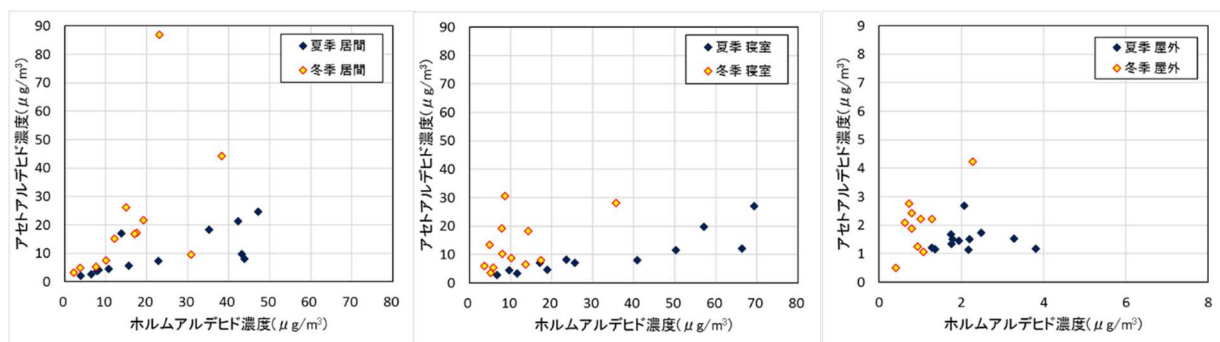


図2 ホルムアルデヒド濃度とアセトアルデヒド濃度の相関

ヒド量が減少することや、暖房などの発生源が存在することが考えられた。また、換気をほとんど行わなかった家庭では、アルデヒド濃度が高濃度になる傾向がみられた。

本研究で調査対象とした家庭では、すぐにアルデヒドによる健康影響が出る可能性は

低いものと考えられた。しかし、換気回数が少ない家庭の中にはアルデヒド濃度が比較的高濃度になった家庭も存在したことから、今後、幼児など化学物質に対する感受性が高いグループについては詳細な曝露評価やリスク評価をしていく必要があると考えられた。

表3 ホルムアルデヒド濃度とアセトアルデヒド濃度の相関

	対象物質		相関係数	p
夏季	HCHO(居間)	CH ₃ CHO(居間)	0.729**	**P<1%
	HCHO(寝室)	CH ₃ CHO(寝室)	0.867**	**P<1%
	HCHO(屋外)	CH ₃ CHO(屋外)	-0.002	
冬季	HCHO(居間)	CH ₃ CHO(居間)	0.534	
	HCHO(寝室)	CH ₃ CHO(寝室)	0.093	
	HCHO(屋外)	CH ₃ CHO(屋外)	0.254	

謝辞

室内環境調査にご協力くださった皆様に深く感謝申し上げます。本研究は富山第一銀行奨学財団の研究助成金を受けて行われました。関係各位に深く感謝申し上げます。

引用文献

- [1] IARC, “Formaldehyde, 2-Butoxyethanol, and 1-tert-Butoxypropan-2-ol,” *IARC Monographs on the Identification of Carcinogenic Risks to Humans*, 第 巻 88, 2006.
- [2] 中西準子、鈴木一寿, 詳細リスク評価書シリーズ 17 ホルムアルデヒド, 東京: 丸善株式会社, 2009.
- [3] 中西準子、篠原直秀、納屋聖人, 詳細リスク評価書シリーズ 11 アセトアルデヒド, 東京: 丸善株式会社, 2007.
- [4] 柴田科学, パッシブガスチューブ取扱説明書.
- [5] 厚生省, “ホルムアルデヒドの室内濃度指針値,” 著: 「快適で健康的な住宅に関する検討会議住宅関連基準策定部会 化学物質小委員会」報告, 1997.
- [6] 雨谷敬史、大浦健、杉山智彦、房屋正博、松下秀鶴, “富士市・夏季におけるアルデヒド類による室内外の汚染実態調査,” *室内環境学会誌*, 第 巻 3, 第 1, pp. 35-43, 2000.
- [7] 斎藤育江、瀬戸博、竹内正博, “住宅の室内ホルムアルデヒドおよび VOC 濃度の経時変化について,” *室内環境学会誌*, 第 巻 1, 第 2, pp. 57-58, 1998.